



Phénomènes de transferts en lits fluidisés

Régis Andreux

► To cite this version:

Régis Andreux. Phénomènes de transferts en lits fluidisés. Génie des procédés. Institut National Polytechnique de Toulouse, 2009. <tel-04398235>

HAL Id: tel-04398235

<https://hal.science/tel-04398235v1>

Submitted on 16 Jan 2024

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.



HAL Authorization

Institut National Polytechnique de Toulouse

Mémoire d'Habilitation à Diriger des Recherches

Régis Andreux

Phénomènes de transfert en lits fluidisés :
de l'échelle locale à l'échelle du procédé.
Approches expérimentale, théorique et numérique
pour le développement des procédés de conversion
thermochimique de la biomasse

Membres du jury :

Jamal CHAOUKI	Rapporteur
Gilles FLAMANT	Rapporteur
Khalil SHAKOURZADEH	Rapporteur
Christophe BOYER	Examineur
Gilbert CASAMATTA	Examineur
Mehrdji HEMATI	Examineur (tuteur)
Olivier SIMONIN	Examineur

Soutenue le 09 décembre 2009

Résumé et mots clés

FCC – Conversion thermochimique – Biomasse – CFD – Expérimentation – NTE

Ce mémoire d'Habilitation à Diriger des Recherches présente la synthèse de mes activités de recherche, d'encadrement et d'enseignement. Il couvre une période qui a commencé en 1998 et qui s'étend jusqu'en septembre 2009, durant laquelle j'ai été accueilli par les équipes du LUMEN du LEMTA, UMR 7563 ; du groupe Ecoulement Et Combustion de l'IMFT, UMR 5502 ; du département Réaction-Mélange-Séparation du LGC, UMR 5503 ; du laboratoire de Génie des Procédés de Poly-Montréal, Canada ; du département Génie Chimique de la Division Procédé de l'IFP-Lyon.

Mes activités de recherche se focalisent sur l'étude des transferts en écoulements gaz-particules réactifs, appliquée au développement des procédés à lits fluidisés gaz-particules. Les outils mis en œuvre sont expérimentaux, théoriques et numériques, à la fois suivant les approches classiques du Génie des Procédés et de la Mécanique des Fluides : pilotes représentatifs de conditions industrielles, techniques expérimentales associées, modélisation corrélative monodirectionnelle, et modélisation locale.

Ce mémoire est organisé en trois parties. La première retrace ma trajectoire professionnelle et liste mes activités et les valorisations scientifiques et industrielles qui en ont découlé. La deuxième présente les temps forts de mes activités de recherche, leurs contextes, leurs objectifs et les principaux résultats obtenus. La troisième est consacrée à mes perspectives de recherche, qui concernent le développement des procédés des nouvelles technologies de l'énergie dédiés à la conversion thermochimique de la biomasse en réacteur gaz-particules.

Remerciements

De nombreuses personnes ont compté depuis le jour où j'ai mis le doigt dans l'engrenage de la recherche scientifique, en mars 1998 : celles qui m'ont donné le goût de la recherche, celles qui m'ont transmis un peu de leur savoir, celles qui m'ont aidé à saisir des opportunités, celles avec qui j'ai travaillé, celles qui m'ont encouragé, ... Elles sont disséminées aux quatre coins du monde, dans les villes où je me suis installé successivement (à Nancy, Toulouse, Montréal, et aujourd'hui Lyon), là où nos vies professionnelles se sont un temps croisées (à Paris, au Havre, ...) ou bien dans les villes et pays où elles se sont implantées par la suite. Il m'est impossible de toutes les remercier ici nominativement, et j'espère donc qu'elles se reconnaîtront et ne m'en tiendront pas rigueur si leur nom n'apparaît pas dans ces lignes. Certaines d'entre elles se verront toutefois nommées un peu plus loin dans ce mémoire, lorsque j'évoquerai les faits les plus marquants de mes 11 années de recherche.

Merci aux rapporteurs et aux examinateurs qui me font l'honneur de juger mes travaux de recherches en participant au jury de ma soutenance d'Habilitation à Diriger des Recherches.

Mes remerciements les plus chaleureux vont au professeur Hémati, qui m'a accueilli dans son équipe de recherche au Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse entre 2007 et 2009, après avoir été mon co-directeur de thèse entre 1998 et 2001. Durant ces deux dernières années, il m'a offert de nombreuses opportunités, du point de vue de la recherche, des relations industrielles, de l'encadrement d'étudiants, de l'enseignement, et a mis à ma disposition d'importants moyens humains, techniques et financiers pour atteindre mes objectifs scientifiques. Je lui témoigne ici toute ma gratitude, mon respect, et aussi mon amitié.

Je veux ensuite remercier les professeurs Oesterlé, Simonin, et Chaouki, qui ont été respectivement mon responsable de stage DEA, mon directeur de thèse, et mon responsable de postdoc. Par leurs compétences scientifiques et certains aspects de leurs personnalités, ils m'ont marqué et ont largement contribué à me transmettre le virus de la recherche. Je leur en suis reconnaissant, et je leur adresse toute mon amitié.

Mes remerciements vont ensuite à M. Gauthier, chef de projet Fluid Catalytic Cracking à l'IFP-Lyon, pour m'avoir offert de nombreuses opportunités liées à mes activités sur ce procédé. Elles ont positivement influé directement ou indirectement sur ma trajectoire professionnelle depuis la fin de ma thèse en 2001.

Une bonne partie des activités de recherche que je présente dans ce mémoire sont liées aux deux années que je viens de passer au LGC en tant que chercheur contractuel du CNRS. Quant à mes perspectives de recherche, elles en sont dans une certaine mesure le prolongement logique, comme le lecteur pourra s'en rendre compte. Ainsi, je veux remercier les personnes qui m'ont apporté leur soutien technique et administratif lorsque j'ai monté fin 2006-début 2007 mon projet de mise en disponibilité de l'IFP pour activités de recherche au CNRS : les professeurs Mehrdji Hémati, Olivier Simonin, et Jamal Chaouki ; M. Joël Bertrand ; M. Michel Trinité ; Mme Béatrice Biscans ; M. Daniel Steinmetz ; Mme Sophie Jullian ; M. Luc Nougier ; la DRH de l'IFP-Lyon.

Enfin, les travaux présentés ici sont avant tout un travail d'équipe : je veux donc remercier les personnes qui y ont participé, celles sans qui ils n'auraient pu aboutir : directeurs des laboratoires et centres de recherche qui m'ont accueilli (LUMEN/LEMTA, IMFT, LGC, Poly-Montréal, IFP-Lyon, Axens) ; responsables d'équipes de recherche ; professeurs des universités et maîtres de conférences ; directeurs, chargés, et ingénieurs de recherche du CNRS ; techniciens ; ingénieurs ; personnels administratifs ; étudiants, stagiaires et thésards. Ils ont été mes collègues, et le sont encore aujourd'hui pour certains, mais ce sont aussi ceux, familles et amis, qui m'ont aidé à prendre du recul et à "décompresser" après le travail. Ces derniers se reconnaîtront sans peine...

Sommaire

Résumé et mots clés.....	3
Remerciements.....	5
Avant-propos.....	4
Glossaire.....	6
 Rapport de soutenance et rapports d'évaluation.....	 11
 Partie 1 : Résumé de carrière.....	 23
 1 Curriculum Vitae résumé.....	25
2 Curriculum Vitae détaillé.....	26
2.1 Etat civil.....	26
2.2 Trajectoire professionnelle.....	26
2.3 Formation et titres universitaires	26
3 Contexte des activités de recherche : centres et laboratoires de recherche d'accueil, programmes et financements.....	28
3.1 Les centres et laboratoires d'accueil.....	28
3.1.1 L'IFP.....	28
3.1.2 Les laboratoires de recherche.....	28
3.1.3 La Fédération de Recherche FERMAT, FR 3089.....	28
3.2 Programme de recherche : le projet GAYA de GDF-Suez.....	28
3.3 Financement complémentaire : les prestations pour le compte d'industriels.....	29
4 Expertise industrielle des procédés de l'IFP.....	29
4.1 Réalisation de Process Book.....	29
4.2 Participation aux missions de démarrage d'unités industrielles.....	29
4.3 Développement industriel et assistance technique.....	29
5 Revue d'articles.....	30
6 Participation à jury de thèse.....	30
7 Encadrement scientifique.....	30
8 Enseignement et formation.....	33
9 Liste des publications, brevets, conférences et prix.....	35
9.1 Revues internationales avec comité de lecture.....	35
9.2 Brevets.....	36
9.3 Conférences internationales avec comité de lecture et actes.....	36
9.4 Conférences internationales sans comité de lecture, colloques, séminaires, conférence invitée	37
9.5 Rapports industriels.....	38
10 Prix.....	38
11 Responsabilités collectives.....	39

Partie 2 : Synthèse des travaux de recherche.....	41
1 Introduction.....	43
2 Les procédés à lits fluidisés par l'exemple.....	44
2.1 Le procédé de Fluid Catalytic Cracking.....	44
2.1.1 Un peu d'histoire.....	44
2.1.2 Principe général du procédé.....	44
2.1.2.1 Les conditions de fonctionnement.....	44
2.1.2.2 Les zones réactionnelles.....	45
2.1.3 Problématiques des transferts dans les différentes zones du procédé.....	46
2.1.3.1 La zone de craquage (riser).....	47
2.1.3.2 Le désengageur-stripper.....	47
2.1.3.3 Le régénérateur.....	48
2.1.3.4 Les standpipes.....	49
2.1.4 Conclusions : problématiques scientifiques et technologiques.....	50
2.2 Le procédé de vapo-gazéification de la biomasse en lits fluidisés croisés à haute température (800-950°C).....	51
2.2.1 Contexte scientifique.....	51
2.2.2 Principe de la conversion thermochimique de la biomasse en lits fluidisés croisés à haute température (800-950°C).....	52
2.2.2.1 Description du fonctionnement des zones réactionnelles.....	52
2.2.2.2 Récapitulatifs des phénomènes majoritaires dans la zone de conversion	54
2.2.2.3 Récapitulatifs des phénomènes majoritaires dans la zone de conversion	55
2.2.3 Conclusions : problématiques scientifiques et technologiques.....	57
3 Chronologie et fil conducteur.....	58
3.1 DEA et premiers pas dans la recherche (1998).....	58
3.1.1 Contexte et problématique.....	58
3.1.2 Méthodologie et principaux résultats.....	58
3.2 Doctorat et rencontre avec le Génie des Procédés (1998-2001)	59
3.2.1 Contexte et problématiques.....	59
3.2.2 Principaux résultats.....	60
3.2.3 L'enseignement.....	65
3.3 Post-doctorat, expatriation et premier projet de recherche (2002).....	65
3.3.1 Contexte.....	65
3.3.2 Problématiques, méthodes et principaux résultats.....	66
3.4 L'IFP, ou comment acquérir une expertise industrielle (2003-2007).....	69
3.4.1 Développement de l'expertise du procédé de FCC (2003).....	69
3.4.2 Ouverture vers d'autres procédés (2004).....	72
3.4.3 Réorientation vers la recherche (2005-2007).....	74
3.5 L'expérience CNRS (2007-2009).....	81
3.5.1 Pourquoi un congé sans solde pour activité de recherche au CNRS ?.....	81
3.5.2 L'IFP comme partenaire scientifique historique.....	82
3.5.3 La conversion thermochimique de la biomasse en lits fluidisés : collaboration industrielle, brainstorming et projet ADEME.....	86
3.5.4 La modélisation des écoulements gaz-particules réactifs.....	88
3.5.5 Le développement des outils expérimentaux et numériques d'investigation.....	91
4 Conclusions.....	95

Partie 3 : Perspectives de recherche.....	97
1 Introduction : quelle recherche, pour quelles applications et avec quels outils ?.....	99
2 Problématiques scientifiques et actions de recherche.....	101
2.1 L'hydrodynamique locale et globale des réacteurs.....	101
2.1.1 Présentation de la problématique	101
2.1.2 Etude expérimentale de la manutention des particules de biomasse par techniques radioactives non-intrusives : tomographie et traçage de particules par désintégration γ , émission positronique, et rayon X.....	102
2.1.2.1 Pourquoi et comment ?	102
2.1.2.2 Principes généraux du traçage de particule par émission de rayon γ	103
2.1.3 Etude numérique de la manutention des particules de biomasse par "Discrete Element Method".....	106
2.1.4 Etude expérimentale des effets du transfert de masse particule-gaz	106
2.1.4.1 Objectif.....	106
2.1.4.2 Méthodologie.....	107
2.1.5 Etude des transfert de quantité de mouvement entre gaz et particules par "Direct Numerical Simulation".....	109
2.1.6 Etude numérique des effets d'échelles, de pression et de température par simulation RANS.....	110
2.2 Les mécanismes de fragmentation, attrition et érosion des particules de biomasse au sein des écoulements gaz-particules.....	111
2.2.1 Présentation de la problématique	111
2.2.2 Caractérisation mécanique des particules de biomasse au cours de la conversion.....	111
2.2.3 Etude globale par l'approche expérimentale.....	111
2.2.4 Etude locale par simulation numérique (couplage RANS/DEM/FEA).....	112
2.3 Etudes cinétiques du craquage thermique et catalytique des goudrons en lit fluidisé.....	113
2.4 Capitalisation scientifique : intégration des outils d'expérimentation numérique dans un code unique.....	114
3 Conclusions.....	117
Références.....	119

Avant-propos

CET MÉMOIRE D'HDR présente mes activités de recherche académique et industrielle, de développement de procédés, d'assistance technique et de démarrage d'unités de production, d'enseignement et d'encadrement. Il couvre une période qui a commencé en 1998 et qui s'étend jusqu'en septembre 2009, durant laquelle j'ai été accueilli par les équipes du LUMEN du LEMTA, UMR 7563 ; du groupe Ecoulement Et Combustion de l'IMFT, UMR 5502 ; du département Réaction-Mélange-Séparation du LGC, UMR 5503 ; du laboratoire de Génie des Procédés de Poly-Montréal, Canada ; du département Génie Chimique de la Division Procédé de l'IFP-Lyon.

J'ai voulu décrire mes activités d'un point de vue personnel, comme une histoire, de telle sorte que le lecteur perçoive mes envies, mes doutes, et qu'il comprenne ainsi les raisons de mes choix et de mes orientations scientifiques au fil des années. C'est en particulier le cas dans la deuxième moitié de la partie consacrée à la synthèse de mes travaux de recherche. Le lecteur pourrait dans un premier temps y être surpris par le style que j'emploie pour décrire la chronologie et le fil conducteur de mes recherches. Il me semble que ce style devrait néanmoins lui permettre de mieux percevoir la façon dont j'ai évolué et acquis mes compétences, à travers mes différentes expériences professionnelles.

Par ailleurs, j'ai pris le parti de retracer ces expériences tantôt du point de vue du numéricien et de l'expérimentateur, tantôt du point de vue du chercheur académique et de l'industriel. Vaste programme un brin schizophrène, qui implique d'utiliser les concepts et les vocabulaires de chacun de ces corps de métier, comme je tente de le faire chaque jour dans mes activités de recherche.

Pour cette raison, il m'a paru important, pour accompagner le lecteur, expert ou néophyte, de réaliser un glossaire de quelques mots clés régulièrement utilisés entre chercheurs ou industriels spécialistes des thématiques présentées. Ce vocabulaire forme un jargon ayant la fâcheuse tendance à sembler intuitif lorsqu'il est utilisé régulièrement, et qui mélange les concepts de la Mécanique des Fluides et du Génie des Procédés.

Mon curriculum vitae est ensuite détaillé dans une première partie intitulée "Résumé de carrière".

Le lecteur y trouvera les informations relatives à ma trajectoire professionnelle, que j'ai retracée avec le souci de présenter équitablement mes expériences de recherche académique, de R&D, d'activités industrielles, d'encadrement de recherche et d'enseignement.

Les phénomènes de transferts dans les écoulements gaz-particules réactifs sont au cœur de mes activités : avec les phénomènes réactionnels qui leurs sont couplés, ils sont à l'origine du comportement des procédés. Le lecteur trouvera dans une deuxième partie le fil conducteur de mes activités de recherche selon ce qui me semble être l'originalité de ma méthode : le couplage des approches locale à l'échelle de la particule, globale à l'échelle du réacteur industriel, semi-locale à l'échelle des structures hydrodynamiques formées au sein des écoulements, et les approches expérimentale et numérique.

J'ai pris soin d'introduire préalablement les problématiques industrielles et scientifiques qui sont associées aux transferts, en les décrivant dans le contexte du procédé de Fluid Catalytic Cracking et de la conversion thermochimique de la biomasse en lits fluidisés croisés : ce sont les procédés sur lesquels j'ai majoritairement travaillé. Le lecteur pourra aisément transposer ces problématiques dans la plupart des procédés mettant en œuvre les écoulements gaz-particules, comme par exemple le traitement thermique de la biomasse, la clinkerisation, ou le transport de la poudre d'alumine pour l'alimentation des cuves de production d'aluminium.

Mes activités de recherche sont détaillées selon leur ordre chronologique. J'ai mis l'accent sur la cohérence entre elles, tant d'un point de vue scientifique que d'un point de vue personnel. Mes thématiques de recherche ont été : la séparation rapide et les écoulements du procédé de Fluid Catalytic Cracking ; les lits fluidisés réactifs ; les transferts de masse, de quantité de mouvement et de chaleur dans les écoulements gaz-particules ; l'assistance technique et l'expertise des procédés du raffinage pétrolier ; la modélisation de la conversion thermochimique de la biomasse en lit fluidisé ; le développement des outils expérimentaux, théoriques et logiciels d'investigation.

Enfin, le lecteur trouvera mes perspectives de recherche dans une troisième et dernière partie. Résolument appliquées dans le domaine de l'énergie, elles resteront à la fois théoriques, expérimentales et pragmatiques pour répondre aux besoins du développement des nouveaux procédés en lits fluidisés qui sont aujourd'hui au cœur de grands projets nationaux et internationaux : la conversion thermochimique de la biomasse.

J'espère que le lecteur trouvera à travers mes réflexions et mes écrits quelques enseignements qui lui sembleront originaux. Peut-être lui occasionneront-ils quelques idées qui viendront compléter celles qu'il avait avant la consultation de ces pages. Dans tous les cas, je le remercie par avance du temps qu'il consacrera à lire ce document.

Toulouse, août 2009

Lyon, septembre 2009

Glossaire

Lorsqu'elles sont spécifiées, les abréviations MF et GdP précisent que la définition relève du domaine de la Mécanique des Fluides ou du Génie des Procédés.

Assistance technique	AT. Mission d'expertise pour la résolution d'un problème sur une unité industrielle ou pour la préconisation de recommandations d'opération de l'unité.
Axens	Filiale de l'IFP dans le secteur pétrolier.
Bulle	Phase gaz discrète représentant les cavités supposées vides de particules dans les lits fluidisés denses. Utilisée dans les modèles type Génie des Procédés pour décrire le comportement des lits fluidisés denses. Cohabite avec la phase émulsion.
C/O	Catalyst – Oil ratio. Désigne le rapport entre les débits massiques du catalyseur et des vapeurs d'hydrocarbures dans la zone de craquage du FCC.
Catalyseur coké	Dans le cas du procédé FCC, désigne la poudre de catalyseur après craquage de la coupe pétrolière et contenant le coke déposé. Par opposition au catalyseur frais.
Catalyseur frais	Dans le cas du procédé FCC, désigne la poudre de catalyseur avant craquage de la coupe pétrolière et après combustion du coke déposé. Par opposition au catalyseur coké.
Coke	Dans le procédé de FCC, désigne le résidu solide carboné issu de la réaction de craquage de la coupe pétrolière lourde, déposé sur les particules de catalyseur.
Cyclone	Séparateur fluide – particules par centrifugation grâce à la mise en rotation de l'écoulement.
Démarrage	Mise en route d'une unité industrielle, suite à sa construction ou à son revamp.
Dégoutlotter	Action de repousser les limites de production d'une unité industrielle.
Désengageur	Voir Désengageur-Stripper.
Désengageur-Stripper	Zone servant à la séparation des particules de catalyseur et des produits gazeux issus du craquage, puis au strippage des particules de catalyseur, dans le procédé de FCC. Parfois désigné sous la seule appellation stripper ou désengageur.
Dipleg	Conduite verticale située à la base d'un cyclone et collectant les particules qui ont été séparées. L'écoulement dans une dipleg est un écoulement dense gaz-particules vertical descendant. Diffère du standpipe principalement par sa longueur et son diamètre, et, éventuellement, son débit de particules par unité de surface.
DTS	Distribution de Temps de Séjour. Courbe établie en mesurant en un point d'un réacteur (souvent à la sortie), la concentration d'un traceur que l'on aura injecté en un autre point du réacteur (souvent à l'entrée)

	sous une forme choisie à l'avance (impulsion, marche). Permet de modéliser la zone localisée entre les deux points par une ou plusieurs équations de convection-diffusion.
DNS	Direct Numerical Simulation. Simulation numérique des écoulements fluides au cours de laquelle toutes les échelles de la turbulence sont calculées, des grandes échelles aux plus petites dissipatives (à l'échelle de Kolmogorov). Les équations de Navier-Stokes sont alors résolues sans terme de modélisation de la turbulence ou des effets de sous-maillages.
Emulsion	Phase gaz-particules homogène dont la concentration volumique en particules est de l'ordre de 50 %. Utilisée dans les modèles type Génie des Procédés pour décrire le comportement des lits fluidisés denses. Cohabite avec la phase bulle.
Estet-Astrid	Voir Neptune.
FCC	Fluid Catalytic Cracking. Procédé de craquage catalytique de coupes pétrolières lourdes en lit fluidisé transporté. Le catalyseur est sous forme de particules, la coupe pétrolière, vaporisée, est en phase gaz.
Grass-root	Qualificatif d'une nouvelle unité industrielle. Utilisé pour faire la distinction avec les unités modifiées, "revampées".
HDH+	Procédé de conversion de coupes pétrolières lourdes en slurry. Développé dans le cadre d'une collaboration entre Intevep, l'Institut Français du Pétrole et sa filiale Axens.
IFP	Institut Français du Pétrole. Organisme public de recherche et de formation, à l'expertise internationalement reconnue, dont la mission est de développer les technologies et matériaux du futur dans les domaines de l'énergie, du transport et de l'environnement.
LES	Large Eddy Simulation. Simulation numérique des écoulements fluides au cours de laquelle les grandes échelles de la turbulence sont calculées, et les petites échelles modélisées par un terme additionnel de sous-maille dans les équations de Navier-Stokes.
Loading	Taux de chargement. Masse de particules par masse de gaz dans un écoulement gaz-particules.
Perte de charge	Fréquemment utilisée pour caractériser les lits fluidisés denses ou transportés. Assimilée à la différence de pressions entre deux points.
Pilote	Installation représentative d'une unité industrielle, dont la capacité de production est toutefois inférieure. Peut être conçue dans la phase de développement du procédé pour l'étude du couplage des transferts et des réactions, mais aussi au cours de la dernière phase, celle de la validation des concepts du procédé. On parle alors de pilote de démonstration industrielle.
Mélange	Transfert de masse intra-phase au sein d'un réacteur. Souvent quantifié en établissant la Distribution de Temps de Séjour de la phase dans le réacteur.
Neptune	Projet de co-développement (EDF R&D, CEA, Areva-NP, IRSN) d'une plate-forme de simulation multi-échelles d'écoulements multiphasiques réactifs. Le code de calcul industriel Neptune a remplacé Saturne, qui lui-même avait remplacé Estet-Astrid.
Opération	Opération de l'unité. Action de faire fonctionner l'unité ou certaines

parties de l'unité dans certaines conditions de fonctionnement.

Opérateur	Personnel technique qui fait fonctionner, qui "opère", une unité.
Piston	Réacteur piston. Qualificatif de l'écoulement étudié avec la mesure de DTS et dont le transfert de matière est bien décrit par une équation de convection-diffusion dont le terme de diffusion est négligeable.
Process Book	Guide de procédé. Document rédigé lors de la conception d'une unité "grass-root" ou "revampée", qui contient toutes les spécifications techniques, les schémas, les dimensions, des zones réactionnelles, des utilitaires, ...
Ramshorn	Une génération des séparateurs rapides dédiés au procédé de FCC. Technologie développée par l'IFP, Axens, Total et SWEC.
RANS	Reynolds-Averaged Navier-Stokes. Simulation numérique des écoulements fluides au cours de laquelle sont calculées les composantes moyennes du mouvement ainsi que les composantes fluctuantes (turbulentes), sur la base de la décomposition de Reynolds.
Régénérateur	Zone de combustion du résidu solide carboné de la réaction de craquage dans le procédé de FCC.
Revamp	Qualificatif d'une unité industrielle modifiée. Utilisé pour faire la distinction avec les unités "grass-root".
Riser	Zone de craquage catalytique de la coupe pétrolière lourde dans le procédé de FCC. Par abus de langage, un écoulement de riser désigne un écoulement dilué gaz-particules co-courant vertical ascendant.
RPA	Réacteur Parfaitement Agité. Qualificatif de l'écoulement étudié avec la mesure de DTS et dont le transfert de matière est bien décrit par une équation de convection-diffusion dont le terme de convection est négligeable.
RS ²	Une génération des séparateurs rapides dédiés au procédé de FCC. Technologie développée par l'IFP, Axens, Total et SWEC.
R2R	Technologie du procédé de FCC, partagée par l'IFP, Axens, Total et SWEC.
Saturne	Voir Neptune.
Séparateur rapide	Séparateur gaz-particules dont la fonction première est de séparer rapidement le gaz et les particules entre lesquelles une réaction est en cours. Utilisé en particulier en sortie de la zone de craquage du FCC pour diminuer le craquage thermique au profit du craquage catalytique, afin d'optimiser la structure de rendement de l'unité.
Sélectivité	Spécifie la quantité de produit désiré formé au cours d'une réaction chimique par rapport au nombre de moles consommées du réactif limitant.
Similitude	Utilisé pour exprimer le degré de ressemblance entre deux systèmes, réactifs ou non. Concept souvent utilisé lors du développement d'un procédé ou d'une mission d'assistance technique lorsque des expériences sont nécessaires pour comprendre les phénomènes apparaissant dans l'unité industrielle. En théorie, les phénomènes observés dans deux systèmes respectant parfaitement la similitude sont identiques. En pratique, la similitude ne peut pas être respectée

	complètement.
Standpipe	Elément du procédé de FCC. Conduite de transfert des particules de la zone de combustion à la zone de craquage et vice-versa. Par abus de langage, un écoulement de standpipe désigne un écoulement dense gaz-particules vertical descendant. Il peut être co-courant ou contre-courant suivant les conditions opératoires.
Structure de rendement	Composition des produits d'une réaction pour des réactifs donnés.
Stripper	Voir "Désengageur-Stripper".
Troubleshooting	Action de résoudre un problème mis en évidence dans une unité industrielle. Va de pair avec la mission d'assistance technique.
Turbulence (MF)	Mode d'écoulement d'un fluide dans lequel se superpose au mouvement moyen un mouvement d'agitation aléatoire. La turbulence se caractérise par l'existence de transferts de matière s'effectuant dans des directions différentes de la direction moyenne de l'écoulement
Turbulence (GC)	Souvent utilisé pour désigner le mélange d'une phase dans un réacteur, principalement dû aux mouvements convectifs aux grandes échelles.
Unité	Unité de production industrielle.
UOP	Fournisseur international de licences de technologies, catalyseurs, unités de productions et services du secteur pétrolier, constitué en 1914.
WWW	Withdrawal well. Puits de soutirage du procédé de FCC. Zone de soutirage des particules de catalyseur au fond du régénérateur ou du stripper.

***Rapport de soutenance et rapports
d'évaluation***

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

présentée par Monsieur Régis ANDREUX

RAPPORT DE SOUTENANCE

dans lequel le Président du jury donnera le maximum d'appréciations, sur la capacité du candidat à concevoir, diriger, animer et coordonner des activités de recherche et de valorisation.

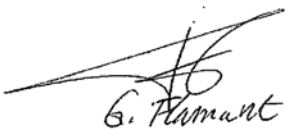
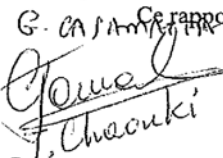
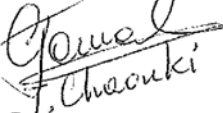
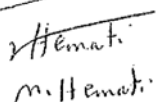
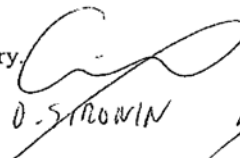
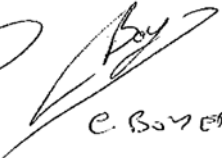
Monsieur Régis ANDREUX a présenté un exposé respectant scrupuleusement le temps qu'il s'était imparti. Le jury a apprécié la structuration de sa présentation, l'enchaînement didactique, et son aptitude pédagogique à délivrer des messages clairs. Le candidat a ainsi mis en évidence un parcours professionnel polyvalent, aussi bien du point de vue des fonctions exercées, entre Recherche & Développement Industrielle et Recherche Universitaire, que de celui d'une mobilité géographique naturellement accompagnée de mobilité thématique. Le candidat a embrassé le champ scientifique particulièrement vaste des écoulements de milieux particuliers, incluant des transferts thermiques et des transferts de matière réactifs aux applications diverses. Du point de vue thématique, Monsieur Régis ANDREUX a positionné ses recherches dans un triptyque modélisation fine, simulation fine et expérimentation, en exploitant pleinement les carrefours disciplinaires ainsi ouverts.

Le jury a également apprécié la valorisation qu'il a faite de sa recherche et sa production scientifique, en remarquant la présence de sept brevets.

A l'occasion de la discussion, il a établi un véritable dialogue scientifique avec les membres du jury, en montrant la solidité, la largeur de ses compétences et la maturité de sa réflexion. Il a prouvé qu'il savait intégrer des angles de vue multiples entre enjeux applicatifs et approches académiques ; cela lui confère un positionnement original qui doit lui permettre de mener une carrière épanouie aussi bien dans le milieu universitaire que dans la R&D industrielle.

Le jury a donc tout naturellement accordé à Monsieur Régis ANDREUX l'Habilitation à Diriger des Recherches et l'a félicité pour le travail accompli.

Fait à Toulouse, le 14 décembre 2009


 G. Hamant
 Ce rapport sera contresigné par l'ensemble du jury.

 G. Carmona

 J. Chacuki

 M. Hemati

 D. Sironin

 C. Boyer



ET UDES ET VIE UNIVERSITAIRE

Toulouse, le 27 novembre 2009

Monsieur Régis ANDREUX

Monsieur,

Suite aux avis favorables émis par les rapporteurs chargés d'examiner le dossier de synthèse de vos activités scientifiques, je vous autorise à présenter en soutenance vos travaux en vue de l'obtention du diplôme :

Habilitation à diriger des recherches

La soutenance aura lieu le 09 décembre 2009 à 14h00 à l'adresse suivante :

ENSIACET - 4, allée Emile Monso - BP 74233 - 31432 Toulouse Cedex 4.

La soutenance sera publique.

Je vous prie d'agréer, Monsieur, l'expression de mes salutations distinguées.

Le Président,

Gilbert CASAMATTA

• INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE TOULOUSE •

6, allée Emile Monso - ZAC du Palays - BP 34038 - 31029 Toulouse Cedex 4
Tél. : +33 (0)5 34 32 30 00 - Fax : +33 (0)5 34 32 31 00 - Fax scolarité : +33 (0)5 34 32 30 46
Courriel : sevu@inp-toulouse.fr - Internet : www.inp-toulouse.fr



Rapport d'évaluation du Mémoire d'habilitation à Diriger des Recherches
du Dr. Régis ANDREUX
intitulé

«Phénomènes de transfert en lits fluidisés : de l'échelle locale à l'échelle du procédé.
Approches expérimentale, théorique et numérique pour le développement des procédés de
conversion thermochimique de la biomasse»

Novembre 2009

Le mémoire est organisé en 3 parties : la trajectoire professionnelle du candidat, un résumé de ses réalisations scientifiques et enfin une description de ses perspectives de recherche.

Partie 1 : Résumé de carrière

La trajectoire professionnelle du candidat est doublement hétérogène : d'une part une union entre l'université (Toulouse, Polytechnique), l'industrie (Ingénieur à l'IFP) et un centre de recherche (CNRS, IFP) et d'autre part un mélange entre la France et le Canada. Ce qui lui procure beaucoup d'avantages : une approche franco-américaine de la recherche et une vision intégrée et équilibrée entre l'industrie et l'université. DE plus, le candidat a enseigné plusieurs cours avec différentes pédagogies (cours magistraux aux futurs ingénieurs, aux ingénieurs, TD, TP...). Le nombre d'articles publiés (9 articles sur 5 ans) est moyen mais le nombre de brevets est impressionnant. C'est un profil unique qui est une prémisse pour des réalisations exceptionnelles.

Partie 2 : un résumé de ses réalisations scientifiques

Le fil conducteur des travaux de recherche du candidat est le développement de modèles type Navier-Stokes à deux phases gaz-solide principalement eulériens à 2 ou 3D, leurs résolutions et leurs vérifications et validations. Plusieurs logiciels ont été utilisés (Fluent, Neptune et OpenFOAM). Les validations expérimentales ont permis d'utiliser des méthodes globales (Distribution des Temps de Séjour...) ou locales (fibres optiques...). Plusieurs réalisations scientifiques ont ainsi été mises de l'avant : articles, brevets... De plus, plusieurs étudiants diplômés ont été formés.

Partie 3 : une description de ses perspectives de recherche

Le candidat pense maintenant s'attaquer au développement des procédés dédiés à la conversion thermochimique de la biomasse en lits fluidisés gaz-solides. La problématique est très bien décrite et la méthodologie recherche est assez bien expliquée. Il manque cependant une revue de la littérature concernant :

- L'hydrodynamique des lits fluidisés à hautes pressions et températures (apparition de forces interparticulaires...);
- la gazéification avec les défis à relever (alimentation, production de goudrons, séparation à hautes températures gaz-solide...).

Le candidat a toutes les compétences et les capacités intellectuelles requises pour relever ces défis et faire ce type d'étude critique de la littérature.

Par ailleurs, le candidat amène une originalité de « première génération », c'est-à-dire qu'il met en commun des techniques qui ont fonctionnées chacune seule mais n'ont pas été mises en commun. C'est un peu dommage!! Le candidat devrait pousser ses investigations vers de véritables innovations technologiques, surtout qu'il a le background et les compétences pour y arriver.

En conclusion, le parcours du candidat est exceptionnel par la diversité géographique où il a poursuivi ses études, la multitude des positions qu'il a eues et par la nature, la qualité et la quantité du travail réalisé. Ceci lui permet une pluralité de la réflexion et une profonde pensée. Ses réalisations sont multiples et très variées : articles scientifiques, brevets, cours, formations de plusieurs chercheurs... Les perspectives de recherche qu'il a décrites sont très audacieuses et ont des applications industrielles très importantes. Il pourrait cependant oser un peu plus et y mettre plus d'innovations d'autant plus qu'il a toutes les capacités requises.

Je considère que le travail soumis démontre très largement que les contributions scientifiques et techniques ont la qualité, l'originalité et la portée requise pour un diplôme d'habilitation à diriger des recherches. Par conséquent, je ne peux que recommander très fortement sa candidature.

A handwritten signature in blue ink, appearing to read 'Jamal', with a long horizontal line extending to the right.

*Prof. Jamal Chaouki, ing. Ph.D., M.A.C.G.
Directeur du Centre Bioraffinage
Département de génie chimique
École Polytechnique de Montréal*



Rapport sur le dossier d'habilitation à diriger des recherches de Régis Andreux

HDR Présentée à l'Institut National Polytechnique de Toulouse

Rapport rédigé par Gilles Flamant, Directeur de Recherche au CNRS.

Régis Andreux présente un document intitulé : « Phénomènes de transferts en lits fluidisés : de l'échelle locale à l'échelle procédé. Approches expérimentale, théorique et numérique pour le développement des procédés de conversion thermochimiques de la biomasse ».

Éléments de la carrière et de la production scientifique de Régis Andreux

Régis Andreux a un parcours jalonné par une alternance d'expériences industrielles et universitaires. Ingénieur ESSTIN en 1998 (plus DEA INPL), il soutient une thèse IFP/TOTAL/EdF/INPT préparée en collaboration entre le LGC et l'IMFT à Toulouse en 2001. Son sujet concerne *l'étude expérimentale et numérique d'un séparateur gaz-solide en sortie du riser d'un pilote froid de FCC*. Après un post-doctorat de un an au Canada (Equipe de J. Chaouki), il intègre l'IFP-Solaize entre 2003 et 2007. Il retourne ensuite à la recherche universitaire pendant 2 ans, entre septembre 2007 et septembre 2009, au LGC de Toulouse grâce à un contrat de chercheur CNRS. Il est retourné depuis la fin de ce contrat à l'IFP-Solaize.

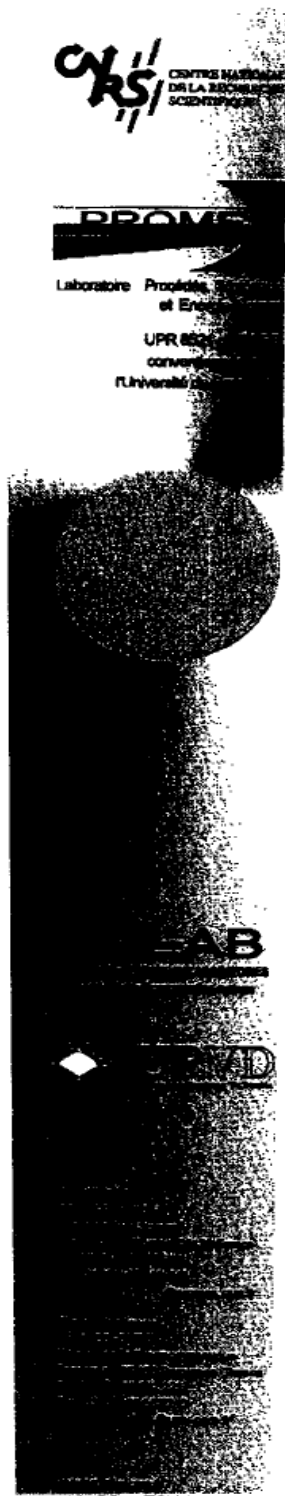
Régis Andreux est co-auteur de neuf articles dans des revues internationales à comité de lecture dont 3 dans AIChE J. (7 articles publiés et 2 sous presse). Il est également co-inventeur de sept brevets et a présenté dix conférences internationales avec actes et comités de lecture.

Encadrement et responsabilité de projets de recherche

Régis Andreux a co-encadré deux thèses soutenues et co-encadre un troisième doctorant avec M. Hémati depuis 2008. Il a été responsable de nombreux projets de recherche depuis son post-doctorat comme en témoigne le nombre de rapports industriels dont il est l'auteur (13) et le nombre de brevets. Enfin, il a été actif dans le domaine de l'enseignement (159h au total) en particulier à l'INPT (105h de CM en formation continue) et à l'INSA Toulouse (39h TP).

Points forts de son activité scientifique

Le rapport présenté par Régis Andreux résume son activité de recherche de façon chronologique. Malgré les différents postes qu'il a occupés, on note une continuité thématique très riche car elle a été éclairée par les approches



différentes, mais complémentaires, de la recherche industrielle et universitaire.

A mon sens le point fort de la recherche de R. Andreux dans le domaine de l'hydrodynamique des écoulements gaz-solide est sa capacité à faire des ponts entre les approches mettant en œuvre des simulations numériques avancées, mais dont les temps de calcul sont souvent incompatibles avec la résolution de problèmes industriels, et celles du génie des procédés, plus globales, mais aptes à franchir les étapes nécessaires pour extrapoler les procédés. Son activité scientifique s'est développée autour des éléments suivants : expérimentation, simulation numérique, modélisation pour le dimensionnement.

Expérimentation

Les méthodes développées sont destinées à caractériser l'hydrodynamique locale et globale des lits fluidisés : bi-sondes optiques (bulles, émulsion), pressions différentielles (porosité ...), traçage (DTS des phases gaz et particules). Son apport concernant la caractérisation locale par sonde optique est particulièrement intéressant.

Simulation numérique

Ses travaux sont basés sur l'approche Euler-Euler mise en œuvre dans les codes Estet-Astrid et Mélodif développés par l'équipe de O. Simonin (EDF puis IMFT). Dans ce contexte, R Andreux n'est pas un simple utilisateur mais modifie les codes en particulier pour les adapter aux écoulements denses. Ces travaux lui permettent de simuler convenablement des écoulements co-courant ascendants, les profils de concentration en solide dans les séparateurs (ramshorn) et d'aborder récemment le couplage entre hydrodynamique et réaction chimique solide-gaz. Par ailleurs, il a mené une comparaison entre des résultats de simulations 3D instationnaires de Fluent 6.3 et des résultats expérimentaux pour des lits fluidisés du groupe A de Geldart. On note, à chaque étape, l'attachement de R. Andreux à établir des bases de données expérimentales aptes à nourrir les approches de simulation. Enfin, une réflexion sur les avantages et inconvénients des codes existants montrent sa maturité scientifique.

Modélisation pour le dimensionnement

Cette méthodologie qui est associée au génie des procédés a été développée dès la thèse pour dimensionner le séparateur construit au LGC. Elle s'est enrichie par l'expérience industrielle de R Andreux et a montré sa pertinence par la modélisation des écoulements denses verticaux descendants proposée au cours du dernier séjour de R. Andreux au LGC.

Conclusion, mon évaluation

Régis Andreux est un spécialiste du procédé FCC qui veut étendre son domaine d'expertise vers les procédés de valorisation de la biomasse par gazéification en lit fluidisé. Le projet phare associé est Gaya coordonné par GDF-Suez. Dans ce contexte, R. Andreux propose un projet de recherche très bien structuré qui comprend des phases : de caractérisation du comportement hydrodynamique des particules réactives dans le milieu gaz-solide par tomographie γ , de simulation de ces mêmes particules par DEM (Discrete Element Method), de simulation par DNS des transferts de quantité de mouvement entre gaz et particules, de simulations 3D instationnaires par approches RANS des écoulements complets, des mécanismes de dégradation mécanique des particules de biomasse et de la cinétique de craquage thermique des goudrons en lit fluidisé.

17/01/2008

UNIVERSITÉ DE LILLE

04669302940

11:11 6002/11/08



PROMES

Laboratoire Procédés
et Energies

UPR 8521

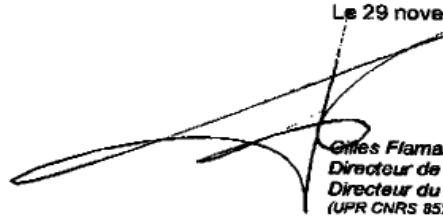
conventionné

l'Université de

L'ensemble des contributions de Régis Andreux dans le domaine des écoulements gaz-solide denses constitue un apport original très riche qui a été reconnu par la publication d'articles dans les meilleurs journaux de la discipline. Il fait preuve d'une maturité scientifique indéniable en particulier par sa capacité à relier les différentes approches permettant de qualifier et d'optimiser les systèmes gaz-solide denses, réacteurs ou séparateurs.

Avis très favorable.

Le 29 novembre 2009


Gilles Flamant
Directeur de Recherche au CNRS
Directeur du laboratoire PROMES
(UPR CNRS 8521)

EAB

EVD

Compiègne, le 16 nov.2009



Rapport concernant les travaux de Monsieur Régis ANDREUX en vue de l'obtention de l'Habilitation à Diriger des Recherches.

Par K. Shakourzadeh
Docteur d'Etat ès Sciences Physiques
Enseignant-Chercheur à l'Université de Technologie de Compiègne

Parcours du candidat

Après avoir obtenu son diplôme d'Ingénieur et un DEA en Mécanique/Energétique, M. Andreux a préparé une thèse de doctorat à l'INPT et l'IFP dans le domaine Energétique/Dynamique des fluides. Ensuite, M. Andreux a passé un an en Post-Doctorat à l'Ecole Polytechnique de Montréal après quoi il a travaillé à l'Institut Français du Pétrole en tant qu'ingénieur de recherche avec deux ans d'affectation à l'unité CNRS de LGC de Toulouse UMR5503.

Travaux de recherche

Les travaux de recherche de M. Andreux sont essentiellement réalisés dans le domaine de la fluidisation et plus particulièrement autour des Lits Fluidisés Circulants. Ces travaux vont de la conception et de l'exploitation des prototypes de laboratoire aux techniques de mesures et à la modélisation numérique des écoulements régissant ce type de dispositifs.

Une partie importante des travaux de M. Andreux, est consacrée au procédé de Craquage Catalytique du Pétrole (FCC) et les divers dispositifs qui le composent (i.e., la chambre de séparation et les parties cycloniques à la sortie du riser). L'utilisation de diverses techniques de mesures (champs de pression, fibres optiques, etc.) permet à M. Andreux d'explorer les mécanismes fondamentaux qui régissent le système d'écoulement plutôt complexe de ce type de dispositif.

La combinaison des trois composantes ci-dessus : Mesures, Expérimentation et Modélisation, a permis au candidat de créer un fil conducteur valorisable et des perspectives intéressantes pour ses travaux recherche à venir. Ainsi, dans son rapport, il se propose d'aller plus loin dans l'exploration des phénomènes qui gouvernent les réacteurs à lits fluidisés par le biais des techniques de mesures plus sophistiquées (traçage par émission mono-photonique, par exemple) et une modélisation plus approfondie.



K. Shakourzadeh (shakou@utc.fr)
Université de Technologie de Compiègne - BP 20529 - Compiègne - France
Tél. (33) 03 44 23 46 28 - Fax (33) 03 44 23 19 80

Publications et Valorisation

Monsieur Andreux a publié une dizaine d'articles, souvent dans des revues scientifiques de valeur, une dizaine de communications dans des congrès internationaux avec comité de lecture et enfin quelques cinq communications dans des séminaires autres.

Quant à la valorisation par dépôt de Brevet, elle est incontestablement le point fort du mémoire de M. Andreux. En effet, il est le co-auteur de sept brevets dont trois où son nom est placé en premier. Certes l'environnement dans lequel il a effectué ses recherches (IFP) a été propice à ce type de valorisation, toutefois l'abondance des brevets portant son nom en premier montre intérêt et la qualité de ses travaux.

Monsieur Andreux est également auteur de quelques treize rapports scientifiques.

Activité d'enseignement

Cette activité s'est essentiellement déroulée à INSA de Toulouse et à l'INPT sous forme de cours magistraux et travaux dirigés sur les thèmes « Modélisation Numérique » et « Machines Thermiques ».

Encadrement

Monsieur Andreux a co-encadré 3 thèses de doctorat et 2 stages de Master.

Conclusion

Dans son mémoire et par ses travaux, Monsieur Régis ANDREUX démontre ses qualités à développer une recherche originale et fait preuve de sa capacité à encadrer des doctorants. Je donne un **avis très favorable** à cette demande d'Habilitation à Diriger des Recherches.

K. Shakourzadeh
Compiègne, le 16-11-2009



K. Shakourzadeh (shakou@utc.fr)
Université de Technologie de Compiègne - BP 20529 – Compiègne – France
Tél. (33) 03 44 23 46 28 – Fax (33) 03 44 23 19 80

Partie 1 : Résumé de carrière

1 Curriculum Vitae résumé

ANDREUX Régis
 18 allée Athéna
 69230 St-Genis Laval
 06-31-233-778, regis.andreux@ifp.fr
 Nationalité française. Né le 18/08/1975. Pacsé, 2 enfants

Domaine d'expertise : réacteurs gaz-particules réactifs

FORMATION ET TITRES UNIVERSITAIRES

2002	Post-Doctorat expatrié	IFP-Lyon/Poly-Montréal
2001	Doctorat Energétique/Dynamique des Fluides	INPT/IFP/TOTAL/EdF
1998	DEA Mécanique/Energétique	INPL/UHP-Nancy 1
1998	Ingénieur Mécanique/Energétique	ESSTIN

TRAJECTOIRE PROFESSIONNELLE

09/2009 – ...	Ingénieur de Recherche en CDI, IFP-Solaize
09/2007 – 08/2009	Chercheur Contractuel CNRS au LGC UMR5503, Toulouse
02/2003 – 08/2007	Ingénieur de Recherche en CDI, IFP-Solaize

ACTIVITÉS D'ENSEIGNEMENT

159 heures de Cours Magistraux, Travaux Dirigés et Pratiques. 1 projet de Fin d'Etudes

ENCADREMENT ET CO-ENCADREMENT DE TRAVAUX DE RECHERCHE

3 thèses, 2 stages de Master

ACTIVITÉS DE RECHERCHE

Conception de pilotes à lits fluidisés denses et de techniques de mesures. Expérimentation
 Modélisation et simulation numérique (CFD) de réacteurs polyphasiques réactifs

EXPERTISES, ASSISTANCES TECHNIQUES ET DÉMARRAGES

Recherche et développement sur 5 procédés industriels de Bio-énergie et de raffinage pétrolier
 Dimensionnement et démarrage de 2 unités de production de l'industrie de raffinage pétrolier

PRODUCTION SCIENTIFIQUE, VALORISATION INDUSTRIELLE ET PRIX

9 publications, 14 communications (10 actes), 1 conférence, 7 brevets, 13 rapports industriels, Prix AFTP 2006

ACTIVITÉS ADMINISTRATIVES

2009	Elu à la CCP 1 du CNRS
1995 – 1998	Elu étudiant au CA de l'UHP-Nancy 1

2 Curriculum Vitae détaillé

2.1 Etat civil

Nom : Andreux
Prénom : Régis
Date et lieu de naissance : 8 Août 1975 à Nancy (54)
Nationalité : Française
Situation familiale : Pacsé, 2 enfants
Adresse personnelle : 18 allée Athéna
69230 St-Genis Laval
Tel : 06-31-233-778
mail : randreux@yahoo.fr
Adresse professionnelle : IFP-Lyon
Rond-point de l'échangeur de Solaize
BP 3
69360 Solaize
Tel : 04-78-02-56-90
mail : regis.andreux@ifp.fr

2.2 Trajectoire professionnelle

Depuis 09/2009 : Ingénieur de Recherche en CDI, IFP-Solaize.

09/2007 – 08/2009 : Congé sans solde pour activité de recherche au Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse, UMR5503, dans l'équipe "Traitement et Mise en Forme" du Professeur Hémati, Département Réaction, Mélange, Séparation, en tant que chercheur contractuel du CNRS.

02/2003 – 08/2007 : Ingénieur de Recherche en CDI, IFP-Solaize.

2.3 Formation et titres universitaires

Poste de recherche post-doctorale :

- Localisation : Ecole Polytechnique de Montréal (Canada).
- Responsable : Professeur Jamal Chaouki.
- Période : 2002.
- Partenaire : Institut Français du Pétrole.
- Sujet de recherche : Etude expérimentale et numérique de l'hydrodynamique des lits fluidisés.

Thèse de doctorat (Allocation de recherche ENSPM) :

- Localisation : Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (UMR 5502) et Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse (UMR5503).
- Responsables : Professeurs Olivier Simonin et Mehdi Hématy.
- Période : Octobre 1998 – Novembre 2001.
- Partenaires : INPT/IFP/TOTAL/EdF.
- Ecole doctorale : Energétique/Dynamique des Fluides, INP Toulouse.
- Sujet de recherche : Etude expérimentale et numérique d'un séparateur rapide gaz-particules. Application au procédé de Fluid Catalytic Cracking.

DEA Mécanique/Energétique :

- Localisation : Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (UMR 7563), équipe de l'ESSTIN.
- Responsable : Professeur Benoît Oesterlé.
- Période : Février – Juin 1998.
- Ecole doctorale : Mécanique/Energétique, INP Lorraine.
- Sujet de recherche : Etude dynamique et thermique des effets liés aux interactions turbulence-particules dans un écoulement gaz-solide en conduite.

Ingénieur Mécanique/Energétique :

- Localisation : Ecole Nationale Supérieure des Sciences et Technologies de l'Ingénieur de Nancy.
- Période : Septembre 1993 – Juin 1998.
- Spécialisation : Mécanique des Fluides et Energétique.

3 Contexte des activités de recherche : centres et laboratoires de recherche d'accueil, programmes et financements

3.1 Les centres et laboratoires d'accueil

3.1.1 L'IFP

Une majeure partie de mes activités de recherche ont été financées dans le cadre de projets de l'IFP, que ce soit durant ma thèse, mon post-doctorat, ou encore mes activités d'ingénieur R&D de l'IFP-Lyon.

Les principaux programmes de l'IFP qui m'ont permis de réaliser mes activités de recherche sont :

- convention de collaboration entre l'IFP et l'Institut National Polytechnique de Toulouse ;
- convention de collaboration entre l'IFP et l'Ecole Polytechnique de Montréal, Canada ;
- convention de collaboration entre l'IFP, Axens, Total et SWEC, sur le procédé R2R de Fluid Catalytic Cracking ;
- convention de collaboration entre l'IFP, Axens et Intevap, sur le procédé HDH+ de conversion de coupes pétrolières lourdes.

3.1.2 Les laboratoires de recherche

Les laboratoires de recherche qui m'ont accueilli sont :

- le Laboratoire d'Énergétique et de Mécanique Théorique et Appliquée, UMR 7563 ;
- l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, UMR 5502 ;
- le Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse, UMR 5503 ;
- l'Ecole Polytechnique de Montréal, Canada.

3.1.3 La Fédération de Recherche FERMAT, FR 3089

Une partie de mes activités de recherche en tant que doctorant (1998-2001) et de chercheur contractuel du CNRS (2007-2009) a fait partie du thème "Réacteur et contacteur polyphasique RECOP" de la Fédération de Recherche FERMAT (Fluides, Energie, Réacteurs, Matériaux et Transferts), FR 3089.

3.2 Programme de recherche : le projet GAYA de GDF-Suez

En tant que chercheur contractuel du CNRS (2007-2009), j'ai contribué à l'élaboration du

programme de recherche que le LGC va réaliser dans le cadre du projet GAYA, soutenu par les Fonds Démonstrateur de Recherche de l'ADEME.

Le projet GAYA, labellisé par le pôle de compétitivité TENERDIS, vise à démontrer la validité technique, économique, environnementale et sociétale, de la production de biocarburants gazeux par voies thermochimique. Le projet regroupe dix partenaires français dont l'équipe "Traitement et Mise en Forme" du professeur Hémati du Département Réaction, Mélange et Séparation du Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse, UMR 5503.

3.3 Financement complémentaire : les prestations pour le compte d'industriels

En tant que chercheur contractuel du CNRS (2007-2009), j'ai réalisé plusieurs prestations pour le compte d'industriels. Ces activités m'ont permis de contribuer à l'auto-financement d'études à caractère académique de l'équipe de recherche à laquelle j'ai été intégré. Pour des raisons de confidentialités, les résultats de ces études ne seront pas présentés.

Les entreprises concernées sont :

- GDF-Suez ;
- Alcan-RioTinto.

4 Expertise industrielle des procédés de l'IFP

4.1 Réalisation de Process Book

En tant qu'ingénieur de R&D à l'IFP-Lyon, j'ai participé à la conception du Process Book de deux unités de Fluid Catalytic Cracking pour le compte d'Axens.

4.2 Participation aux missions de démarrage d'unités industrielles

En tant qu'ingénieur de R&D à l'IFP-Lyon, j'ai participé aux missions de démarrage des unités de Fluid Catalytic Cracking de la raffinerie de Tamoil, Suisse (grass-root), et de la raffinerie de Valero, Ardmore, Oklahoma, USA (revamp).

4.3 Développement industriel et assistance technique

Les développements industriels auxquels j'ai participé sont les suivants :

- développement d'un séparateur rapide pour la zone de craquage des unités de FCC ;
- développement d'un séparateur primaire pour la zone de combustion des unités de FCC ;
- développement d'un appareil permettant le craquage catalytique de deux coupes pétrolières distinctes dont une composée d'oligomères dans une unité de FCC ;
- analyse de données industrielles sur les unités de FCC ;
- préconisation pour le dimensionnement d'un séparateur haute pression gaz-liquide-particules dédié à un procédé de conversion profonde en slurry ;
- procédure de récupération des pertes de charge normale à travers les lits des unités industrielles

du procédé Eluxyl.

5 Revue d'articles

J'ai été rapporteur de quatre propositions de publications :

- une publication sur la mise au point d'une technique expérimentale de caractérisation en lit fluidisé, en 2005, pour Chemical Reactor Engineering Journal ;
- une publication sur l'utilisation conjointe de la simulation numérique et de la caractérisation expérimentale sur la problématique de la biomasse en lit fluidisé, en 2009, pour la revue Journal of Fluids Engineering ;
- une publication sur la simulation numérique des phénomènes de transferts en lits fluidisés denses, en 2009, pour la revue AIChE Journal ;
- une publication sur la mise en œuvre de réactions d'oxydation d'hydrocarbure en phase gazeuse en lit fluidisé transporté, en 2009, pour Applied Catalysis A.

6 Participation à jury de thèse

- Petit G. Contribution à l'étude expérimentale et numérique du comportement des phases gaz et solide dans un lit fluidisé circulant: application au procédé FCC. Thèse de Doctorat. Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse, UMR 5503, Institut National Polytechnique de Toulouse. France. 2005 ;
- Aguilar Corona A. Agitation des particules dans un lit fluidisé. Thèse de Doctorat. Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse, UMR 5503, Institut National Polytechnique de Toulouse. France. 2008.

7 Encadrement scientifique

2008 – 2009 :

En tant que Chercheur Contractuel du CNRS, mes activités d'encadrement de recherche ont été :

- Un co-encadrement de thèse financée sur les fonds propres de l'équipe du LGC :

Detournay M. Etude de propriétés de particules de biomasse au cours de la réaction de gazéification en lit fluidisé. Caractérisation expérimentale et modélisation. Thèse de Doctorat. Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse, UMR 5503, Institut National Polytechnique de Toulouse. France. Soutenance prévue fin 2011.

- Un co-encadrement de thèse CIFFRE/IFP/LGC :

Tavares E. Etude expérimentale et numérique du soutirage de particules d'un lit fluidisé. Application au cas industriel du Fluid Catalytic Cracking. Thèse de Doctorat. Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse, UMR 5503, Institut National Polytechnique de Toulouse. France. Soutenance prévue fin 2009.

- Un encadrement de stage Master Recherche GPE Cycle N au Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse :

Kouo Mbillé S. Etude expérimentale de l'hydrodynamique d'un lit fluidisé bi-dimensionnel. Janvier – Août 2009.

2003 – 2006 :

En tant qu'ingénieur de R&D à l'IFP, mes activités d'encadrement de recherche ont été :

- Un encadrement de stage Master de l'Université Technique de Lisbonne :

Tavares E. Numerical Simulation of dense fluidized bed of Geldart-A particles. Rapport de stage Master. Institut Français du Pétrole. Mars – Août 2006.

- Un co-encadrement de thèse CIFFRE/IFP/LGC/IMFT :

Petit G. Contribution à l'étude expérimentale et numérique du comportement des phases gaz et solide dans un lit fluidisé circulant: application au procédé FCC. Thèse de Doctorat. Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse, UMR 5503, Institut National Polytechnique de Toulouse. France. 2005.

Tableau 1: Récapitulatif de mes encadrements d'étudiants sur la période 1998-2009.

Période	Etablis- sement	Thématique	Contexte	Niveau d'étude	Valorisation
Octobre 2002 à Novembre 2005	IFP LGC IMFT	Transfert de matière et de quantité de mouvement en écoulement gaz- particules vertical ascendant co-courant	Procédé de craquage catalytique	Etude Doctorale (CIFRE)	1 mémoire 1 publication en revue 4 congrès
Octobre 2006 à Novembre 2009	IFP LGC	Transfert de matière et de quantité de mouvement en écoulement gaz- particules dense vertical descendant	Procédé de craquage catalytique	Etude Doctorale (CIFRE)	1 mémoire 2 congrès <i>en cours</i>
Octobre 2008 à Novembre 2011	LGC	Bio-énergie	Développement d'un procédé de gazéification de biomasse	Etude Doctorale (Fonds Propres)	<i>en cours</i>
Mars à Août 2006	UTL ^(a) IFP	Validation de simulation numérique	Procédé de craquage catalytique	Master	1 mémoire
Novembre 2008 à Juin 2009	LGC	Développement de techniques de mesure	Recherche fondamentale	Stage Master	1 mémoire
Octobre 2007 à Février 2008	LGC A7 ^(b)	Bio-énergie	Pré- dimensionnement d'un réacteur de gazéification de biomasse	Stage de Fin d'Etude	1 mémoire

^(a)Universités Technique de Lisbonne, Portugal^(b)Ecole Nationale Supérieure des Ingénieurs en Arts Chimiques et Technologiques

8 Enseignement et formation

2008 – 2009 :

En tant que Chercheur Contractuel du CNRS, mes activités d'enseignement ont été :

- Un cours magistral à l'Ecole Nationale Supérieure des Ingénieurs en Arts Chimiques et Technologiques (5 heures, janvier 2009) :

Valorisation de la biomasse à Haute Température.

- Une formation continue pour ingénieurs à l'INP de Toulouse (105 heures, 2008) :

Simulation numérique des écoulements denses gaz-particules.

- Un encadrement de Projet de Fin d'Etudes à l'Ecole Nationale Supérieure des Ingénieurs en Arts Chimiques et Technologiques (2008).

Detournay M, Errahi A, Favrais J, Figueiredo Fernandez M, Tognola M, Pointu L. Projet de Fin d'Etudes : procédé de vapogazéification du bois. Rapport de stage de 3ème année, Ecole Nationale Supérieure des Ingénieurs en Arts Chimiques et Technologiques. 2008.

2003 – 2006 :

En tant qu'intervenant industriel de l'Institut Français du Pétrole, mes activités d'enseignement ont consisté en :

- Une conférence invitée à l'Université Technique de Lisbonne, Portugal (13/09/2006) :

CFD in the Industry : Application to the FCC Reactor Design and Development.

- Un cours magistral à l'Ecole Nationale Supérieure du Pétrole et des Moteurs (4h, 05/04/2007) :

Utilisation de la simulation numérique pour le développement des procédés industriels.

1998 – 2001 :

J'ai été invité durant ma thèse à dispenser une formation sous la forme de Travaux Pratiques à l'Université de Delft, Hollande, dans le cadre de l'Ecole d'Été ERCOFTAC "CFD for Two-phase flows" (5-8/07/1999) :

Introduction à la simulation euler-euler des écoulements diphasiques à l'aide du code de calcul industriel Estet-Astrid.

En tant que vacataire à l'INSA de Toulouse durant ma thèse, mes activités d'enseignement ont consisté en une session de Travaux Pratiques (39 heures, 26 heures équivalent TD, 2001) :

Machines Thermiques, INSA 4ème année.

Tableau 2: Récapitulatif de mes enseignements sur la période 1998-2009.

Année scolaire	Etablissement	Matière	Type	Niveau d'étude	Nombre d'heures
1999	Université de Delft, Hollande. ERCOFTAC ^(a) SummerSchool	Simulation numérique d'écoulements diphasiques	Travaux Pratiques	Industriels et Etudiants	4
2000-2001	INSA Toulouse	Machines Thermiques	Travaux Pratiques	4 ^{ème} année	39
2006	Université Technique de Lisbonne, Portugal	Utilisation de la simulation numérique dans l'industrie pétrolière	Conférence	Etudiants	-
2007	ENSPM ^(b)	Simulation numérique d'écoulements industriels	Cours magistral (formation initiale)	Master	4
2008	INPT ^(c)	Simulation numérique des écoulements denses gaz-particules	Cours magistral (formation continue)	Ingénieurs de recherche	105
2009	A7 ^(d)	Valorisation de la biomasse à haute température	Cours magistral (formation initiale)	3 ^{ème} année	5
2009	A7	Valorisation de la biomasse à haute température	Travaux Dirigés	3 ^{ème} année	2

■ Travaux Pratiques ■ Travaux Dirigés ■ Cours magistraux ■ 1 conférence

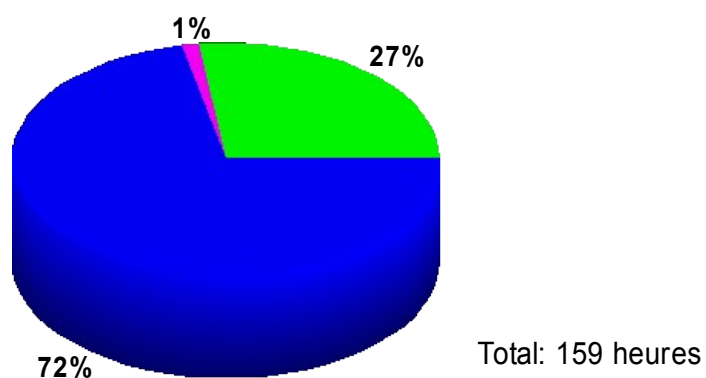


Figure 1 : Répartition de mes enseignements selon leur type (TP, TD, Cours magistraux, conférence)

^(a)European Research Community on Flow, Turbulence And Combustion

^(b)Ecole Nationale Supérieure du Pétrole et des Moteurs

^(c)Institut National Polytechnique de Toulouse

^(d)Ecole Nationale Supérieure des Ingénieurs en Arts Chimiques et Technologiques

9 Liste des publications, brevets, conférences et prix

9.1 Revues internationales avec comité de lecture

- [1] Detournay M, Andreux R, Hémati M. Biomass vapogasification in fluidized bed of inert or catalytic particles: comparison between experimental results and thermodynamic equilibrium predictions, Powder Techn. (*soumise*).
- [2] Andreux R, Hémati M. CFD modeling of sodium carbonate monohydrate dehydration in a circulating fluidized bed, Int. J. of Chem. React. Eng. (*acceptée avec corrections mineures*).
- [3] Andreux R, Hémati M. Modeling the downward dense heterogeneous gas-particle flows. AIChE J. (*sous presse*)
- [4] Dounit S, Hémati M, Andreux R. Modelling and experimental validation of a fluidized bed reactor freeboard region: application to natural gas combustion, Chem. Eng. J. 2008;140(1-3):457-465.
- [5] Andreux R, Chaouki J. Behaviors of the bubble, cloud and emulsion phases in a fluidized bed, AIChE J. 2008;54(2):406-414.
- [6] Andreux R, Petit G, Hémati M, Simonin O. Hydrodynamic and solid residence time distribution in a circulating fluidized bed: Experimental and 3D computational study, Chem. Eng. Proc. : Process Intensification. 2008;47(3):463-473.
- [7] Andreux R, Ferschneider G, Hémati M, Simonin O. Experimental study of a fast gas-particle separator, Chem. Eng. Res. Des. 2007;85(A6):808-814.
- [8] Andreux R, Gauthier T, Chaouki J, Simonin O. New Description of Fluidization, AIChE J. 2005;51:1125-1130.
- [9] Gauthier T, Andreux R, Verstraete J, Roux R, Ross J. Industrial development and operation of an efficient riser separation system for FCC units, International Journal of Chemical Reactor Engineering. 2005;3(A47).
- [10] Boulet P, Moissette S, Andreux R, Oesterlé B. Test of an Eulerian–Lagrangian simulation of wall heat transfer in a gas-solid pipe flow, Int. J. Heat and Fluid Flow. 2000;21:381-387.

9.2 Brevets

- [1] Andreux R, Gauthier T, LeCoz J, Leroy P. Nouveau système de séparation gaz-solide pour les régénérateurs des unités de craquage catalytique en lit fluidisé. Institut, Français Du Pétrole (1 & 4 Avenue de Bois-Préau, 92852 Rueil Malmaison Cédex, FR). French Patent 2.909.987. 20/06/2008.
- [2] Ross J, Gauthier T, Andreux R. Novel reactor with two fluidized reaction zones with an integrated gas/solid separation system. Institut, Français Du Pétrole (1 & 4 Avenue de Bois-Préau, 92852 Rueil Malmaison Cédex, FR). United States Patent 20070213573. 09/13/2007.
- [3] Ross J, Gauthier T, Andreux R. Reactor comprising two fluidized reaction zones and an integrated gas/solid separation system. Institut, Français Du Pétrole (1 & 4 Avenue de Bois-Préau, 92852 Rueil Malmaison Cédex, FR). European Patent EP1800742. 06/27/2007.
- [4] Gauthier T, Le Coz J, Andreux R. New system for gas-solid separation and for stripping for fluidised bed catalytic cracking units. Institut Français Du Pétrole (1 & 4 Avenue de Bois-Préau, 92852 Rueil Malmaison Cédex, FR). European Patent EP1800728. 06/27/2007.
- [5] Andreux R, Duplan J. Device and process for the catalytic cracking of two distinct hydrocarbon feeds. Inst, Francais Petrol DU. (FR). European Patent EP1656989. 05/17/2006.
- [6] Gauthier T, Le Coz J, Andreux R. System for gas-solid separation and for stripping for fluidized-bed catalytic cracking units. Institut, Français Du Pétrole (1 & 4 Avenue de Bois-Préau, 92852 Rueil Malmaison Cédex, FR). United States Patent 20070181463. 12/20/2006.
- [7] Andreux R, Duplan J. Apparatus and process for catalytic cracking of two distinct hydrocarbon feeds. Institut, Français Du Pétrole (1 & 4 Avenue de Bois-Préau, 92852 Rueil Malmaison Cédex, FR). United States Patent 20060113217. 11/09/2005.

9.3 Conférences internationales avec comité de lecture et actes

- [1] Andreux R, Hémati M. CFD Modeling of Sodium Carbonate Monohydrate Dehydration in a Circulating Fluidized Bed. In: A. Luckos and P. Smit. Johannesburg: South African Institute of Mining and Metallurgy (Ed.). IFSA Industrial Fluidization South Africa. 2008.
- [2] Tavares Dos Santos E, Andreux R, Hémati M. Influence of aeration taps spacing in standpipe flows. In: A. Luckos and P. Smit. Johannesburg: South African Institute of Mining and Metallurgy (Ed.). IFSA industrial fluidization south africa. 2008.
- [3] Tavares E, Andreux R, Hémati M, Ferschneider G. Bubble and emulsion behaviours during defluidization of Geldart-A particles. Proceeding of the 18Th International Congress of Chemical And Process Engineering. Chisa. Prague, Czech Republic. 2008.
- [4] Andreux R, Verstraete J, Gauthier T, Roux R, Ross J. An Efficient FCC Riser Separation System : From R&D to Industrial Practice. In: A. Luckos and P. Smit. Johannesburg : South African Institute of Mining and Metallurgy (Ed.). IFSA Industrial Fluidization South Africa. 2005. 225-244.
- [5] Petit G, Hémati M, Simonin O, Andreux R. Experimental and 3D Computational Study of Multiphase Flow Behaviour in a Riser of a FCC Process. In: Kefa Cen (Ed.). Proc. of the 8th

International Conference on Circulating Fluidized Beds, Hangzhou (China). 10-13/052005. 321-327.

[6] Petit G, Hémati M, Simonin O, Andreux R. Hydrodynamique de l'Ecoulement Gaz-Solide dans un Riser FCC : Etude Expérimentale et Simulation Numérique 3D. In: SFGP X, Proc. of the 10Th Congress of the Société Française De Génie Des Procédés, Toulouse (France). 20-22/09/2005.

[7] Petit G, Hémati M, Simonin O, Andreux R. Simulation Numérique d'Ecoulement Gaz/Solide dans un Riser FCC. In: Lavoisier (Ed.). Proc. of the 4th Symposium on Powder Science and Technology, Compiègne, France. 4-6/05/2004.

[8] Andreux R, Hémati M, Simonin O, Ferschneider G. Hydrodynamic investigation of a CFB: numerical study and experimental validation. In: Grace, J.R., Zhu, J., de Lasa, H. (Ed.). Circulating Fluidized Bed Technology 7. Csche, Ottawa, Canada. 2002. 403-410.

[9] Andreux R, Simonin O, Hémati M. Development of second-order two-fluid modelling for gas-solid fluidization. In: Proc. Of the 16th International Conference on Fluidized Bed Combustion, Reno (Usa). 2001.

[10] Andreux R, Boulet P, Oesterlé B. Test of an Eulerian-Lagrangian simulation of wall heat transfer in a gas-solid pipe flow. In: W. Rodi and Laurence (Ed.). Eng. Turbulence Modeling And Experiments-4, Elsevier Science, Amsterdam. 1999. 913-922.

9.4 Conférences internationales sans comité de lecture, colloques, séminaires, conférence invitée

[1] Detournay M, Andreux R, Hémati M. Biomass vapogasification in fluidized bed of inert or catalytic particles: comparison between experimental results and thermodynamic equilibrium predictions. In: Colloque Science et Technologie des Poudres et Matériaux Frittés STPMF2009, Montpellier, France. 2009. Poster.

[2] Andreux R, Delsart O. CFD Use for Gas - Solid Flow Simulation in an FCC. In: 7th Axens-S&W FCC Forum, Lyon, France. 2007.

[3] Petit G, Hémati M, Simonin O, Andreux R. In: Journées du groupe de travail « solides divisés » de la SFGP : les procédés de traitement et de mise en forme des solides divisés en voie sèche, Toulouse, France. 16-17/05/2006.

[4] Andreux, R. CFD in the Industry: Application to the FCC Reactor Design and Development. Conférence à l'Université Technique de Lisbonne, Portugal (IST). 13/09/2006.

[5] Andreux R. Turbulence gaz dans les séparateurs rapides gaz-solide du procédé R2R de Fluid Catalytic Cracking. Conférence Journée Club CFD. IFP-Lyon. 24/11/2006.

9.5 Rapports industriels

- [1] Andreux R, Hémati M. Analyse de risques liés à l'extrapolation de 2 MWe à 5,7 MWe d'une installation de co-génération par gazéification de biomasse en lit fluidisé. Rapport de prestation pour la société Gaz De France. 2008.
- [2] Detournay M, Andreux R, Hémati M. Etude de modélisation de la gazéification en lit fluidisé. Rapport de prestation pour la société Gaz De France. 2008.
- [3] Andreux R, Hémati M. Optimisation de la distribution de l'air de fluidisation dans un procédé de transport horizontal de particules en phase hyper-dense. Rapport de prestation pour la société Rio Tinto Alcan. 2008.
- [4] Andreux R. High Temperature High Pressure Separator analysis for HDH+/SHP Process. Rapport IFP 60130. 2007.
- [5] Andreux R. Analysis of radioactive tracing performed in a FCCU using dispersive plug flow modeling and CFD. Rapport IFP 59937. 2007.
- [6] Tavares Dos Santos, E, Andreux, R. Numerical simulation of a dense fluidized bed of Geldart-A particles. Rapport IFP 59838. 2007.
- [7] Andreux R. Complete design laws for standard and compact RS2. Rapport IFP 59580. 2006.
- [8] Andreux R. CFD validation for the simulation of a gas-particle separating device in the FCC process. Rapport IFP 59473. 2006.
- [9] Andreux R. Etude d'un séparateur primaire pour le régénérateur du FCC de la raffinerie de Donges. Rapport IFP 59336. 2006.
- [10] Andreux R, Pavone, D, Darmancier, D. Normal pressure drop recovery for Eluxyl beds with fine layers. Rapport IFP 58823. 2005.
- [11] Andreux R. Retour Industriel FCC, Tamoil, Colombey, Suisse. Rapport IFP 58730. 2005.
- [12] Andreux R. Faisabilité du craquage d'oligomère dans le riser d'une unité de FCC. Rapport IFP 57850. 2004.
- [13] Andreux R. Validation of the numerical approach (CFD) in the gas-solid bubbling and turbulent fluidization regimes. Application to Geldart-B particle fluidization. Rapport IFP 58037. 2004.

10 Prix

Andreux R, Bayle J, Courtheuse G, Duplan J-L, Gauthier T, Lepage J-P, Verstraete J, Leroy P, Ross J, Roux R. Prix 2006 de l'Association Française des Techniciens et Professionnels du Pétrole. Journée Annuelle du Pétrole, Palais des Congrès de Paris, France. 2006. Récompense décernée pour le développement du séparateur rapide RS² dédié au craquage catalytique.

11 Responsabilités collectives

- Représentant des agents non titulaires du CNRS:

Elu à la Commission Consultative Paritaire du CNRS, 2009.

Durant mes années d'études à l'ESSTIN, mes responsabilités collectives ont été les suivantes :

- Participation à l'organisation de manifestation culturelle nancéenne :

Festival de court-métrages « Prix De Court ». 1995.

- Membre de l'équipe dirigeante de l'association des étudiants de l'ESSTIN :

Responsable de la vie étudiante et du Club Photo de l'ESSTIN. 1995-1998.

- Représentant élu des étudiants :

Conseils d'Administration et Commission Disciplinaire de l'Université H. Poincaré, Nancy 1. 1996-1998.

Partie 2 : Synthèse des travaux de recherche

1 Introduction

LE LECTEUR TROUVERA dans cette partie la description de mes activités de recherche et de développement entre mars 1998 et septembre 2009.

Les grandes lignes des procédés de Fluid Catalytic Cracking et de la conversion thermochimique de la biomasse en lits fluidisés croisés sont tout d'abord décrites. Ce sont en effet ces deux procédés qui ont fait l'objet de la majorité de mes recherches.

Pour chacun d'eux, le fonctionnement des zones réactionnelles est décrit. Les verrous scientifiques liés aux mécanismes de transferts de masse, de quantité de mouvement et de chaleur qui apparaissent lors de la conversion d'une phase solide ou liquide en phase gaz dans un réacteur à lit fluidisé sont présentés.

La chronologie des mes activités est ensuite présentée.

Dans un premier temps, les travaux que j'ai menés au cours de mon stage de DEA sont décrits.

Dans un deuxième temps, la période relative à ma thèse sur l'étude de la séparation rapide dédiée au procédé de Fluid Catalytic Cracking est détaillée.

Dans un troisième temps, mon année d'expatriation à l'Ecole Polytechnique de Montréal et le post-doc que j'y ai réalisé.

Dans un quatrième temps, mes 4 années d'activité de R&D et d'expertise industrielle à l'IFP-Lyon.

Le chapitre se termine sur les 2 années que j'ai passées au CNRS en tant que chercheur contractuel dans le cadre d'un congé sans solde de l'IFP pour activité de recherche.

2 Les procédés à lits fluidisés par l'exemple

2.1 Le procédé de Fluid Catalytic Cracking

2.1.1 Un peu d'histoire

LE PROCÉDÉ de fluid catalytic cracking est un procédé de conversion de coupes pétrolières lourdes, initialement étudié durant les années 1920 et laissé de côté durant la période de la crise économique d'après 1929. Il a été remis au goût du jour à la fin des années 1930 par le consortium Catlytic Research Associates impliquant cinq compagnies pétrolières (Standard Oil of New Jersey, Standard Oil of Indiana, Anglo-Iranian Oil, Texas Oil and Dutch Shell), deux sociétés d'engineering (M.W. Kellogg and Universal Oil Products), et une compagnie chimique (I.G. Farben).

Le procédé de FCC a été développé pour répondre à deux problématiques clés :

- permettre la production en continu de produits pétroliers à haute valeur ajoutée, obtenus en cassant les chaînes carbonées longues constituant des coupes pétrolières lourdes ;
- contourner les brevets de l'ingénieur français Eugène Houdry, qui ont permis, dès 1936 dans la raffinerie de Sun Oil Company à Paulsboro, New Jersey, USA, la production industrielle de ces produits pétroliers par un procédé catalytique semi-continu et basé sur une technologie à lits fixes.

La première unité de démonstration est mise en activité en mai 1940 à la raffinerie de la compagnie Standard Oil of New Jersey, à Baton Rouge, Louisiane, USA. La première unité de production, le FCC Model I, d'une capacité de 17 000 barils par jour, y est ensuite mise en service en mai 1942.

Aujourd'hui, le procédé de Fluid Catalytic Cracking a totalement supplanté les procédés semi-continus à lits fixes et continus à lits mobiles développés par Eugène Houdry. Environ 400 unités de FCC sont aujourd'hui en fonctionnement.

2.1.2 Principe général du procédé

2.1.2.1 Les conditions de fonctionnement

LE PROCÉDÉ repose sur le principe de casser, de "craquer", les chaînes carbonées longues constituant des coupes pétrolières lourdes afin d'obtenir des produits à haute valeur ajoutée : gaz légers (hydrogène, méthane, éthane, éthylène, butane, butylènes, propane et propylène) et naphtas.

Les propriétés typiques des coupes pétrolières lourdes traitées sont les suivantes :

- température d'ébullition supérieure à 340 °C à pression atmosphérique ;
- poids moléculaire compris entre 200 et 600 g/mol.

Le craquage est réalisé en phase gaz à des températures de l'ordre de 500-600 °C. Le catalyseur se présente sous la forme d'une poudre d'alumine poreuse amorphe, de densité d'environ 1500 kg/m³, et avec une distribution granulométrique comprise entre 10 µm et 150 µm.

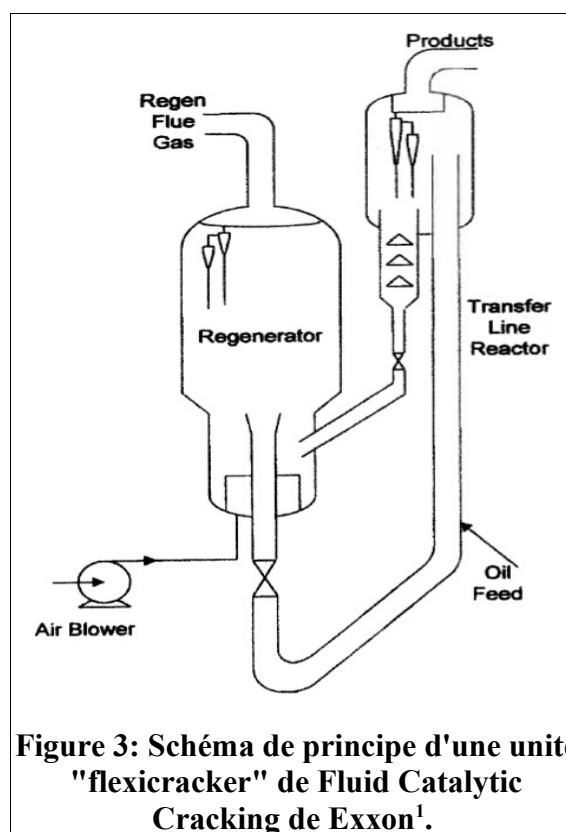
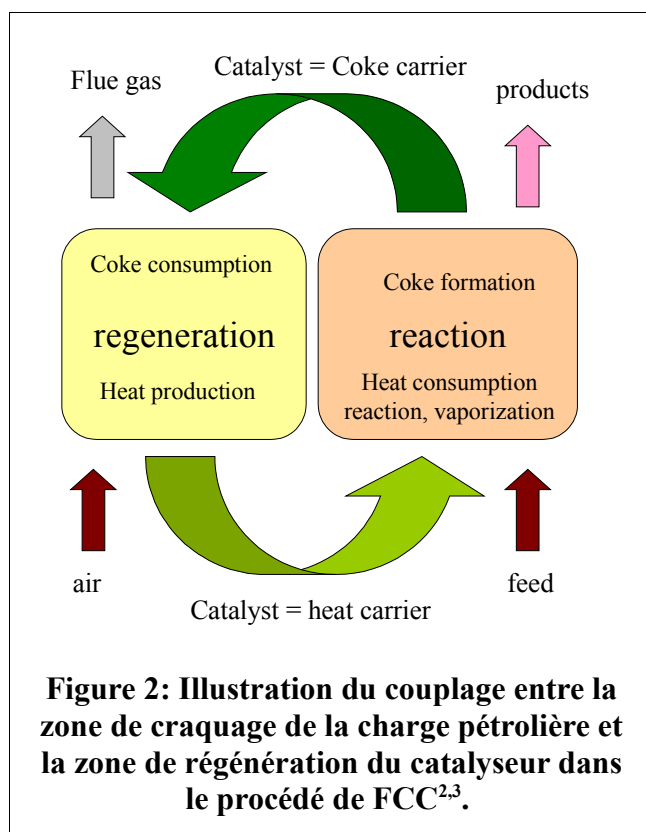
Deux résidus de la réaction sont produits :

- le slurry, coupe lourde dont la température d'ébullition est supérieure à 500 °C, constituée des chaînes carbonées les plus longues et contenant plusieurs centaines de ppm de particules de catalyseur et des métaux lourds ;
- le coke, produit solide déposé sur et dans les particules de catalyseur, composé de carbone et d'une dizaine de pourcents massiques d'hydrogène.

Le coke est éliminé en continu par combustion au sein même du procédé de Fluid Catalytic Cracking. La chaleur ainsi dégagée permet de porter les particules de catalyseur à des températures supérieures à 700 °C, et d'entretenir la réaction de craquage endothermique. Le slurry est réinjecté dans le procédé ou traité dans d'autres procédés aval.

2.1.2.2 Les zones réactionnelles

LE CRAQUAGE CATALYTIQUE de la coupe pétrolière lourde et la combustion du résidu carboné sont mis en œuvre dans deux zones réactionnelles distinctes entre lesquelles la poudre de catalyseur est transférée en continu. La Figure 2 schématise le couplage entre les deux zones réactionnelles.



Les différentes zones du procédé de FCC sont schématisées dans la Figure 3. Ce sont :

- La zone de craquage, dénommée ici comme la "Transfert Line Reactor" sur la droite de la

figure, qui consiste en un tube vertical dont les dimensions caractéristiques sont :

- une hauteur de l'ordre de vingt mètres ;
- un diamètre de l'ordre du mètre.
- La zone de séparation des produits de craquage et de la poudre de catalyseur en tête de la zone de craquage, constituée d'un cylindre appelé "désengageur – stripper" dont les dimensions caractéristiques sont :
 - une hauteur de l'ordre de dix mètres ;
 - un diamètre de l'ordre de cinq mètres.
- La zone de combustion du coke, dénommée ici comme le "Regenerator" sur la gauche de la figure, qui consiste en un cylindre dont les dimensions caractéristiques sont :
 - une hauteur de l'ordre de dix mètres ;
 - un diamètre généralement compris entre cinq et dix mètres.

La poudre de catalyseur est transférée en continu entre les deux zones réactionnelles par des tubes verticaux, parfois inclinés sur de courtes distances, dont le diamètre est de l'ordre du mètre. Ces lignes de transferts sont identifiables sur la figure par leur vanne de régulation, et traditionnellement désignées sous l'appellation de "standpipe".

Des éléments supplémentaires sont visibles sur la figure, tels les cyclones permettant la séparation gaz-particules, identifiables à leur géométrie en forme de cône inversé au sommet et à l'intérieur de chaque zone réactionnelle.

La structure de rendement typique du procédé est présentée dans le Tableau 3.

Tableau 3: Structure de rendement typique des gaz produits par le procédé de Fluid Catalytic Cracking (sce : ENSPM Formation Industrie).

Produits	Rendement (% masse)
Gaz C ₂ et H ₂ S	3 – 5
Coupe C ₃ (propane, propylène)	5 – 9
Coupe C ₄ (butane, butène)	6 – 12
Essences C ₅ – C ₁₁	45 – 55
Gazole (LCO)	15 – 20
Coupes lourdes	6 – 10
Coke	4 – 6

2.1.3 Problématiques des transferts dans les différentes zones du procédé

2.1.3.1 La zone de craquage (riser)

LA COUPE PÉTROLIÈRE lourde préalablement chauffée est atomisée en fines gouttelettes de quelques centaines de microns de diamètre à l'aide d'injecteurs (Figure 4), dans une atmosphère constituée :

- des particules chaudes de catalyseur issues de la zone de combustion ;
- d'une atmosphère gazeuse composée de vapeur d'eau et de coupe pétrolière vaporisée et partiellement craquée.

Sous l'action du transfert de chaleur avec le milieu environnant, les gouttelettes subissent un transfert de masse liquide – gaz et se vaporisent. La vitesse d'injection des gouttelettes, celle d'introduction de la poudre de catalyseur et l'augmentation du volume gazeux liée à la vaporisation, engendrent des transferts de quantité de mouvement gaz-gouttelettes et gaz-particules. Simultanément, les réactions de craquage agissent sur les transferts de masse, de quantité de mouvement et de chaleur :

- en phase homogène, dans la phase liquide et dans la phase gazeuse ;
- en phase hétérogène, entre les particules de catalyseur et les phases liquide et gazeuse.

L'écoulement résultant dans le tube de la zone de craquage est vertical ascendant gaz-particules co-courant, le long duquel les transferts s'établissent. Au sommet du tube :

- la coupe pétrolière lourde injectée est totalement vaporisée ;
- le craquage catalytique est terminé ;
- le craquage thermique subsiste et peut être qualifié de lent ;
- la composition de la phase gazeuse est proche de celle indiquée dans le Tableau 3 ;
- les transferts de quantité de mouvement intra-phases sont majoritairement convectifs mono-directionnels dans le sens de l'écoulement et minoritaires diffusifs perpendiculairement. Les transferts de quantité de mouvement inter-phases sont constants ;
- les transferts thermiques sont négligeables : compte tenu de la lenteur du craquage thermique qui subsiste, les températures du gaz et des particules sont identiques, homogènes et isotropes.

Les particules de catalyseur sont ensuite séparées des vapeurs de craquage par les systèmes de séparation positionnés à l'intérieur du "désengueur – stripper".

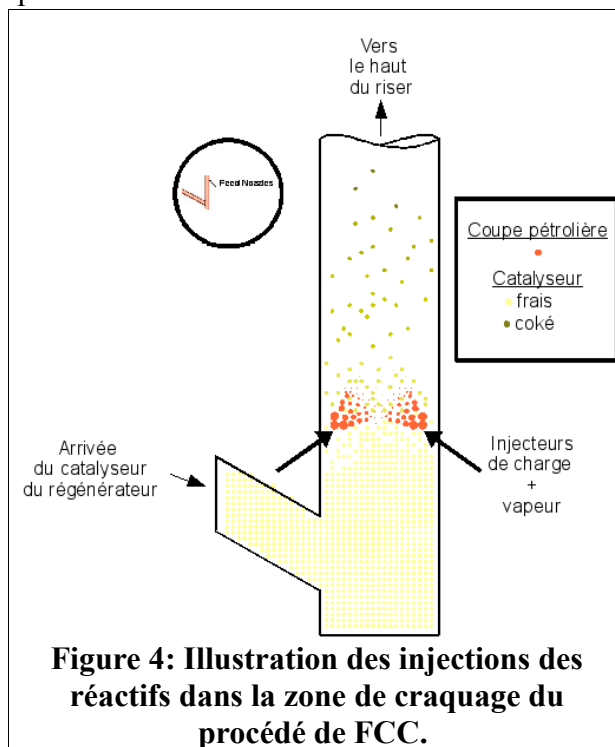


Figure 4: Illustration des injections des réactifs dans la zone de craquage du procédé de FCC.

2.1.3.2 Le désengueur-stripper

LA SUSPENSION de gaz et de particules pénètre dans le désengageur. l'atmosphère y est composée des vapeurs de craquage, de vapeur d'eau surchauffée éventuellement injectée, et des particules de catalyseur en suspension non collectées. La séparation des particules est réalisée suivant deux processus :

- la sédimentation, qui résulte de la compétition "naturelle" entre la gravité et les transferts verticaux de quantité de mouvement particules-particules et gaz-particules ;
- la séparation "forcée" par centrifugation des particules, qui résulte de la compétition entre la gravité et les transferts horizontaux et verticaux de quantité de mouvement particules-particules et gaz-particules. Le séparateur ramshorn le RS², le VSS, les "closed-cyclones", sont les technologies classiques de la séparation forcée du FCC.

Les vapeurs de craquage et les particules sont en contact avec les parois internes du désengageur, ce qui engendrent :

- des transferts de quantité de mouvement particules-paroi liés au frottement et aux rebonds inélastiques ;
- des transferts de chaleur gaz-paroi liés à la présence de parois dites "froides" ;
- des transferts de masse gaz-paroi liés au dépôt éventuel des vapeurs de craquage avec les parois dites "froides", favorisés par des conditions locales spécifiques en terme de température, composition, et temps de séjour.

Les vapeurs sont ensuite évacuées vers les procédés de traitements aval. Les particules de catalyseurs collectées et accumulées dans la zone base du désengageur – stripper sont envoyées vers la zone de combustion du coke, en circulant à travers les standpipe, qui seront décrits dans le dernier paragraphe de cette section.

2.1.3.3 Le régénérateur

LES PARTICULES pénètrent dans le régénérateur. l'air injecté pour la combustion du coke a une vitesse superficielle de l'ordre du mètre par seconde. A cette vitesse, les transferts de quantité de mouvement gaz-particules engendrent des instabilités hydrodynamiques qui induisent :

- des hétérogénéités de la concentration volumique en particules, alors comprise entre 1 % à 50 % ;
- des transferts de masse au sein des phases gaz et particules, conduisant au phénomène de brassage désigné comme le mélange.

Le régime hydrodynamique de fluidisation dense est illustrée par la photographie de la Figure 5. L'approche classique du Génie des Procédés l'assimile à un écoulement ascendant vertical de bulles de gaz pratiquement vides de particules à travers une émulsion homogène composée de particules compactes traversée par un faible courant gazeux.

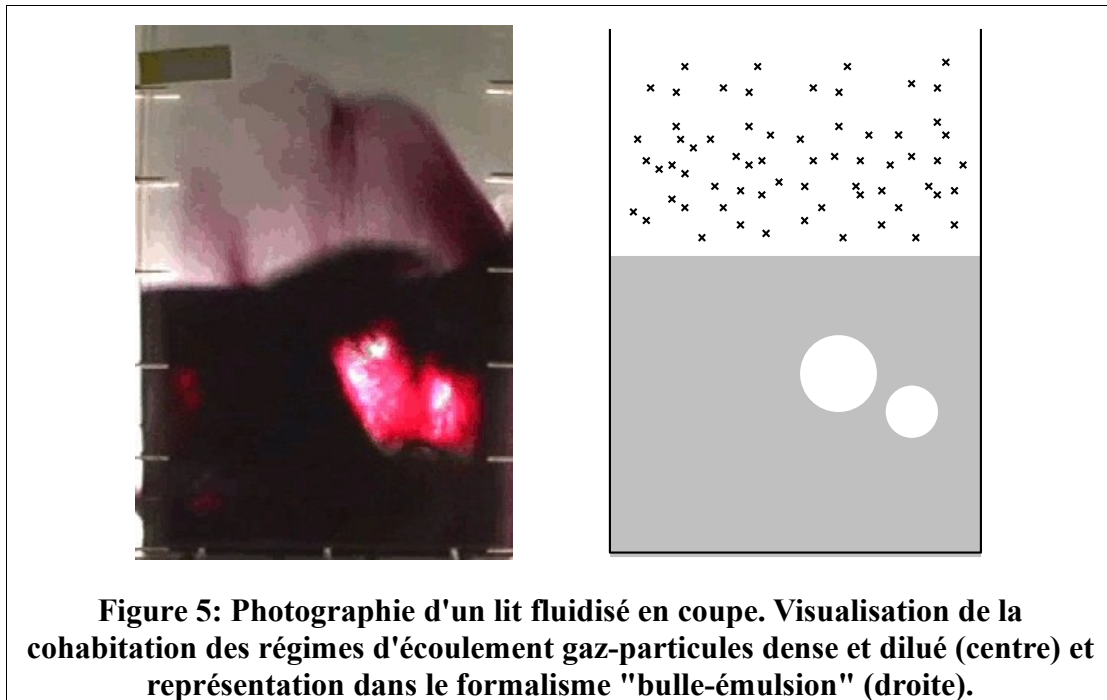


Figure 5: Photographie d'un lit fluidisé en coupe. Visualisation de la cohabitation des régimes d'écoulement gaz-particules dense et dilué (centre) et représentation dans le formalisme "bulle-émulsion" (droite).

A l'échelle locale d'une particule, les transferts se font entre une particule et le gaz et dépendent de leurs propriétés (forme, porosité, dimensions, état de surface de la particule, viscosité, densité, capacité calorifique, vitesse relative du gaz).

A l'échelle semi-locale d'une bulle, les transferts se font entre l'émulsion et les bulles et dépendent de leurs propriétés (forme, dimension, vitesse relative, concentration volumique en solide). Ils sont le résultat des transferts à l'échelle locale.

Après combustion complète du coke, la poudre de catalyseur retourne dans la zone de craquage en descendant dans un tube vertical, le standpipe.

2.1.3.4 Les standpipes

EN SORTIE du régénérateur et du stripper, la poudre de catalyseur pénètre dans le standpipe, sous la forme d'une suspension dense. La fonction du standpipe est double :

- transférer la poudre en continu, sans interruption ;
- assurer une charge hydraulique constante de l'ordre de 1 - 1.5 bars, impérative pour le fonctionnement du procédé. Pratiquement, ceci implique que l'état de la suspension reste identique le long du standpipe, c'est-à-dire dense et traversée par un faible contre-courant gazeux.

Ce type d'écoulement est proche de celui observé dans le régénérateur, à deux différences majeures près :

- la suspension a un mouvement descendant ;
- la vitesse superficielle relative du gaz est de l'ordre du centimètre par seconde.

2.1.4 Conclusions : problématiques scientifiques et technologiques

Les problématiques sont liées aux points suivants :

- les transferts particule-gaz lors de la combustion du coke déposé sur les particules de catalyseur ;
- les transferts gouttelette-gaz lors de la vaporisation de la coupe pétrolière lourde ;
- les transferts particule-gaz lors de la combustion du coke déposé sur les particules de catalyseur ;
- les mécanismes d'attrition des particules de catalyseurs ;
- les transferts gaz-gaz dans le riser liés aux mélanges des flux des gaz issus du craquage de la coupe pétrolière et de la vapeur d'eau injectée ;
- les transferts gaz-gaz dans le régénérateur liés aux mélanges des flux des gaz issus de la combustion et de l'air de combustion ;
- les mécanismes d'érosion des parois des réacteurs ;
- la caractérisation expérimentale de ces phénomènes ;
- la prédiction des zones réactionnelles du procédé et du couplage entre les phénomènes détaillés ci-dessus.

2.2 Le procédé de vapo-gazéification de la biomasse en lits fluidisés croisés à haute température (800-950°C)

2.2.1 Contexte scientifique

LA CONVERSION THERMOCHIMIQUE à haute température ($>700^{\circ}\text{C}$) de la biomasse est une voie alternative aux énergies fossiles (pétrole, charbon) pour la fabrication de produits à haute valeur énergétique directement utilisables en tant que carburant (gaz de synthèse, carburants liquides) ou pour la fabrication de produits intermédiaires utilisés par les procédés de synthèse tels que le procédé Fischer-Tropsch^(a). La viabilité économique et la nécessité stratégique de cette énergie renouvelable sera de plus en plus importante une fois le pic pétrolier atteint et prévu pour 2010-2020. Les techniques de gazéification de la biomasse sont à la fois complexes et variées. Elles font appel à un savoir-faire qui ne s'improvise pas et qui manque encore de recul sur le plan scientifique et technique. Elles sont de deux types, les lits fixes et les lits fluidisés.

Le principal avantage des procédés à lits fixes réside dans leur simplicité de mise en œuvre. Cependant, ils ne s'appliquent en général que pour des installations à usage thermique, dans le cas du contre-courant et pour des installations de cogénération de petites et moyennes puissances (inférieures à 500 kW électriques) pour le co-courant.

Les fondamentaux techniques des procédés à lits fluidisés, développés dans les années 1980 pour la gazéification du charbon sont en cours d'adaptation à la biomasse. Cette dernière, préalablement broyée (0,5 – 6 cm) et partiellement séchée, est introduite dans un lit fluidisé de particules catalytiques ou non telles que le sable ou la dolomite qui améliorent les transferts. Ces procédés sont également plus flexibles que les lits fixes au niveau de la nature et du conditionnement de la biomasse entrante. Ils apportent également des améliorations majeures sur l'efficacité de conversion et le rendement énergétique global ainsi que sur le contrôle de la réaction et de la charge dans le réacteur. Les procédés à lit fluidisé peuvent être classés en trois catégories selon le régime de fluidisation : les lits fluidisés denses, les lits fluidisés circulants et les lits entraînés. On assiste aujourd'hui à une situation où les installations de gazéification de petite puissance sont quasiment toutes tournées vers le lit fixe à co-courant et les unités de grosses puissances, vers le lit fluidisé.

Encore loin d'atteindre la maturité des lits fixes mais disposant de potentialités plus prometteuses, les lits fluidisés concentrent actuellement une grande partie des efforts de recherche. Ces procédés présentent des avantages techniques et économiques majeurs par rapport aux lits fixes et apparaissent plus pertinents dans le cadre d'une valorisation du gaz de synthèse en cogénération (Pouvoir Calorifique Inférieure du gaz élevé) ou en production catalytique de bio-méthane.

Deux visions industrielles complémentaires émergent actuellement sur la filière thermochimique :

- la gazéification en lit fluidisé très haute température ($>1200^{\circ}\text{C}$) avec une valorisation du gaz de synthèse par la synthèse Fischer-Tropsch. La synthèse Fischer-Tropsch est actuellement centrée sur des procédés destinés à produire un gaz riche en hydrogène et en monoxyde de carbone, dépourvu de méthane et d'espèces condensables telles que les « goudrons ». Ces procédés sont généralement de type lits entraînés sous pression et fonctionnent à des températures supérieures

^(a)La synthèse Fischer-Tropsch est une réaction chimique catalysée, le plus souvent par le fer ou le cobalt, entre le monoxyde de carbone et l'hydrogène en vue de produire un carburant liquide synthétique à partir de charbon ou de gaz.

à 1200 °C ;

- la gazéification en lit fluidisé haute température (800 – 950°C) avec une valorisation soit en cogénération, soit en production de gaz naturel « vert » (GNS) ou en production de mélanges méthane/hydrogène « verts ». Ces procédés permettent de conserver le méthane produit à l'issue de la gazéification, tout en éliminant partiellement les « goudrons » formés et les autres espèces indésirables par reformage catalytique complété par un lavage à froid. La présence d'une proportion élevée de méthane (supérieure à 10 %) permet d'obtenir un gaz de synthèse dont le Pouvoir Calorifique Inférieur élevé (environ 12,5 MJ/Nm³) est valorisable aisément en cogénération. Le rapport hydrogène sur monoxyde de carbone élevé (supérieur à 2) associé à la production importante de méthane au cours de la gazéification rend également particulièrement attractive une valorisation ultérieure en méthanation.

Les modes de valorisation en cogénération et méthanation apparaissent donc très complémentaires et permettent de capitaliser le savoir-faire et l'expérience acquise sur la gazéification de biomasse en lit fluidisé avec un ajustement adéquat de l'étape de purification du gaz de synthèse.

2.2.2 Principe de la conversion thermochimique de la biomasse en lits fluidisés croisés à haute température (800-950°C)

LE PRINCIPE de ce procédé repose sur les lits fluidisés couplés avec circulation de particules caloportrices (catalytiques ou non) entre un pôle où elles apportent l'énergie nécessaire à la réaction endothermique de gazéification et un pôle où la combustion du résidu solide de la gazéification permet leur échauffement.

2.2.2.1 Description du fonctionnement des zones réactionnelles

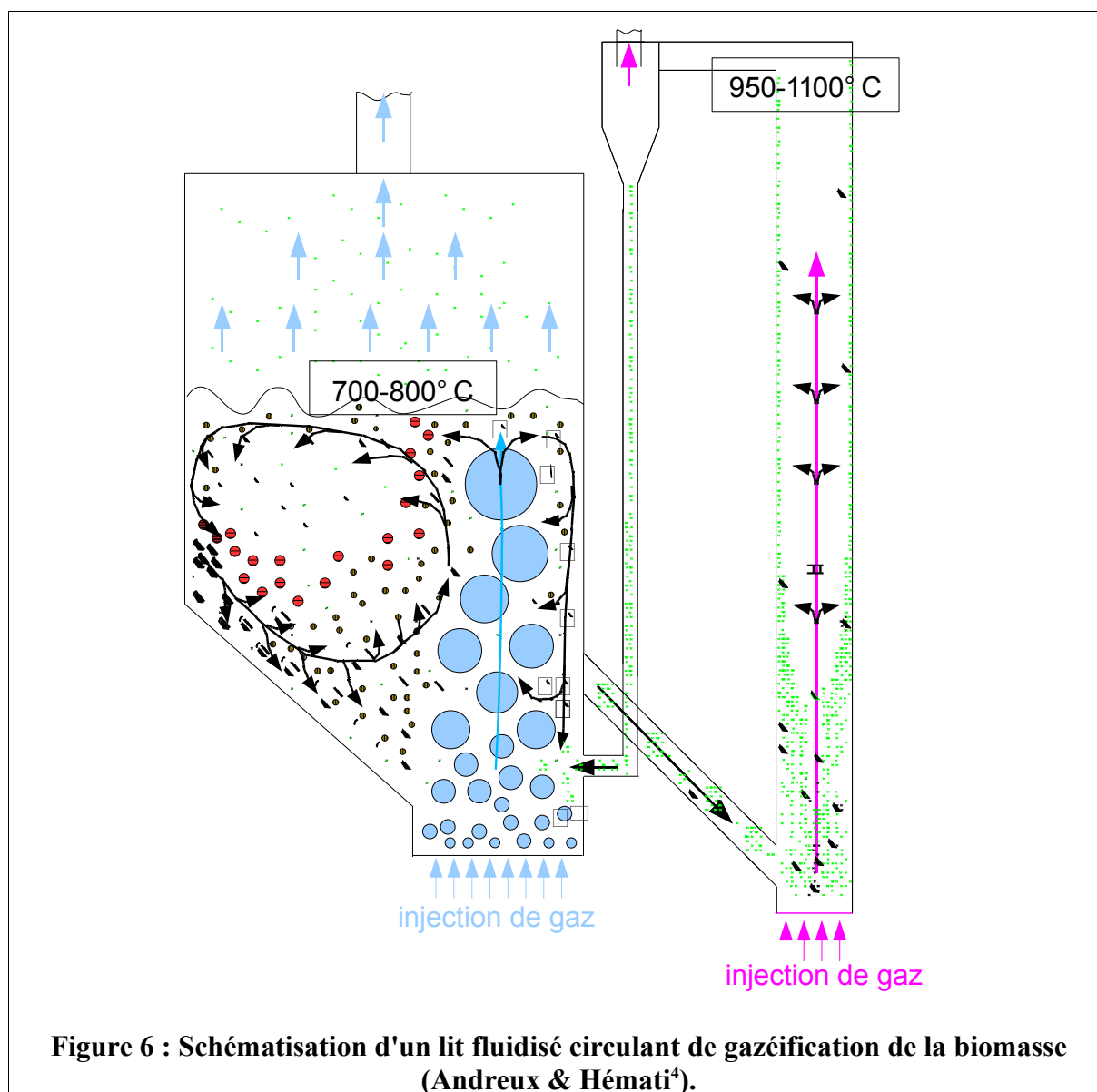
LE PROCÉDÉ DE CONVERSION thermochimique de la biomasse en lits fluidisés croisés à haute température comporte deux zones réactionnelles (Figure 6):

- un lit fluidisé dense, dans lequel la biomasse est convertie en gaz incondensables (le gaz de synthèse, composé de méthane, hydrogène, monoxyde de carbone, éthylène, éthane, dioxyde de carbone) et condensables (goudrons, vapeur d'eau, ...), et en résidus solides carbonés (char) : le gazéifieur ;
- un lit fluidisé transporté, dans lequel les résidus solides ou une partie du gaz de synthèse sont brûlés : le combusteur.

Des particules catalytiques ou non (média fluidisé) de quelques centaines de micromètres de diamètre circulent en permanence d'une zone à l'autre. Elles facilitent la fluidisation de la biomasse, transfèrent le résidu solide de la zone de conversion à celle de combustion, et apportent à la zone de conversion la chaleur produite par la combustion du char.

La biomasse (bâtonnets, "chips", lamelle, ...) est introduite dans le gazéifieur en un point dont la température est de l'ordre de 700-850°C. Elle subit une pyrolyse endothermique rapide (quelques secondes) en produisant des gaz et le char. Ces gaz s'échappent vers le haut du lit sous la forme de cavités vides de particules (bulles) dont la vitesse caractéristique est de l'ordre du mètre par seconde en subissant un craquage thermique et éventuellement catalytique au contact du char et du média fluidisé. Le char est mélangé dans le lit par les mouvements aux grandes échelles et subit une gazéification endothermique lente (quelques minutes), au cours de laquelle se forment de nouveaux gaz. Les propriétés des particules de char (diamètre, densité, résistance mécanique)

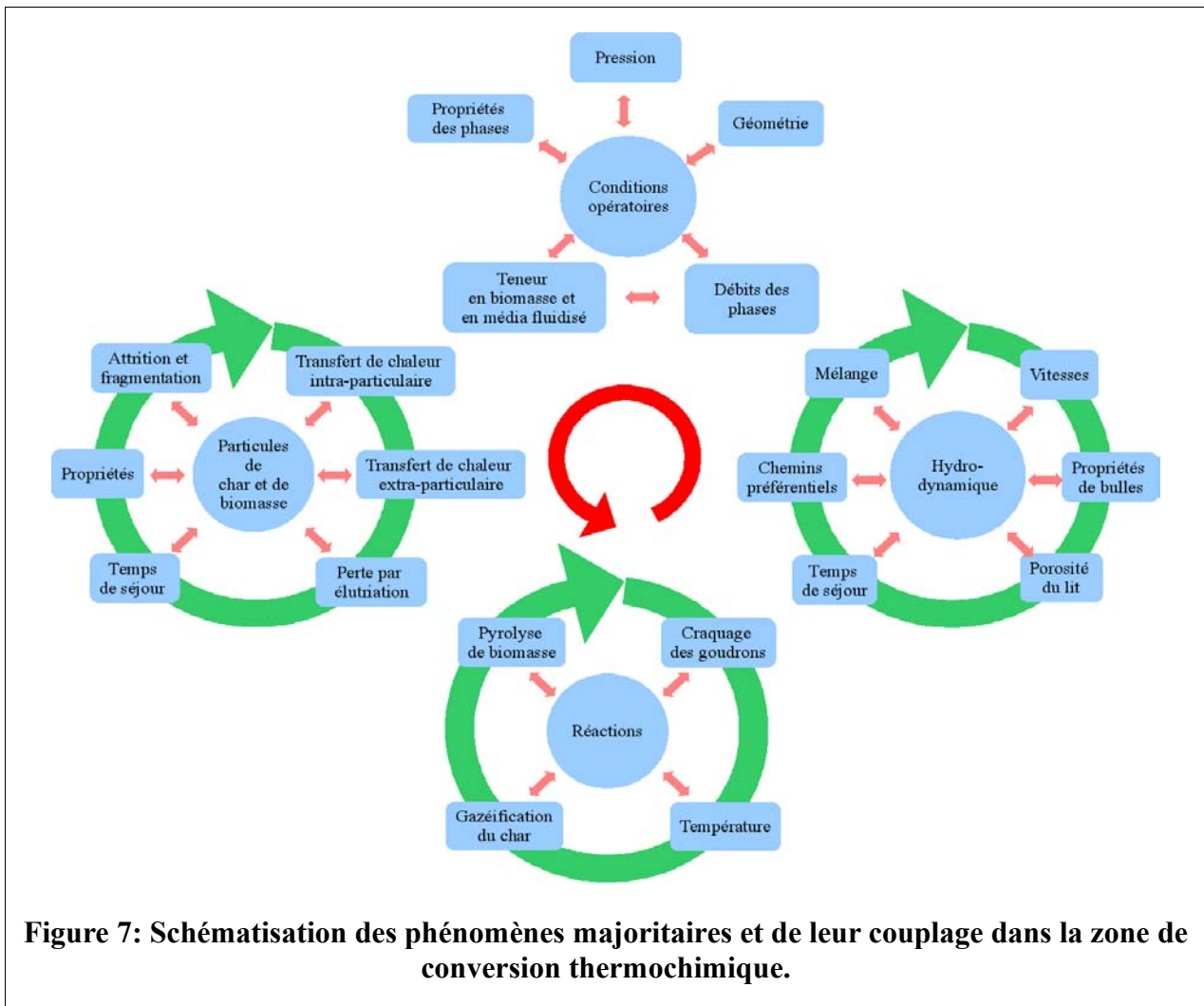
évoluent tout au long de leur séjour dans le gazéifieur sous l'effet de la réaction, de l'attrition et de la fragmentation par le média fluidisé. De la vapeur d'eau est introduite en permanence au bas du gazéifieur pour assurer la fluidisation et entretenir les réactions de vapocraquage et de gazéification. La conversion de la biomasse génère une augmentation du débit gazeux le long du lit, qui conduit à une géométrie évasée afin de maintenir la vitesse de fluidisation constante. Le média fluidisé est soutiré en continu du gazéifieur et dirigé vers la base du combusteur en entraînant les particules de char. L'air qui y est injecté en continu assure la combustion totale du char et le transport du média fluidisé. Les températures atteintes sont de l'ordre de 950-1100°C au sommet du lit fluidisé transporté. Le média est ensuite réinjecté dans le gazéifieur afin d'entretenir les réactions endothermiques de pyrolyse et de gazéification.



2.2.2.2 Récapitulatifs des phénomènes majoritaires dans la zone de conversion

LES PARAMÈTRES et les phénomènes couplés dans la zone de conversion sont (Figure 7) :

- Les conditions opératoires : géométrie, pression, débits et propriétés des phases gaz et particules, teneur du lit fluidisé en biomasse et média fluidisé ;
- L'hydrodynamique du réacteur :
 - les propriétés locales en terme de porosité et structure locale de bullage ;
 - les chemins préférentiels de gaz et les propriétés des bulles de gaz consécutifs à la conversion des particules de biomasse en gaz. Les corrélations de la littérature donnent une estimation (Davidson et Harrison⁵) des temps caractéristiques de l'ascension des bulles, de l'ordre de quelques secondes ;
 - le mélange de gaz et de particules.
- Les phénomènes à l'échelle des particules de char et de biomasse :
 - les mécanismes d'attrition et de fragmentation. Leurs cinétiques et leurs temps caractéristiques dépendent des propriétés mécaniques au cours de la réaction et sont inconnus ;
 - la ségrégation et l'élutriation ;
 - les transferts thermiques intra et extra particulaires. Les temps caractéristiques sont très variables (instantanés à quelques secondes) et dépendent des propriétés des particules et de leur environnement hydrodynamique ;
 - le temps de séjour des particules. Il est fixé par les cinétiques réactionnelles et les limitations des transferts imposées par l'hydrodynamique. Il est de l'ordre de quelques minutes.
- Les réactions :
 - la pyrolyse des particules de biomasse. A des températures supérieures à 800°C, les temps caractéristiques sont de l'ordre de la seconde (Hémati⁶) et dépendent de la cinétique réactionnelle, des propriétés des particules, des transferts de masse et de chaleur intra et extra particulaires et de la température ;
 - la gazéification des particules de char. Les temps caractéristiques sont de plusieurs minutes et dépendent de la cinétique réactionnelle, des propriétés des particules, des transferts de masse et de chaleur intra et extra particulaires, de la température, et du temps de séjour des particules ;
 - le vapocraquage thermique et/ou catalytique des goudrons. Les temps caractéristiques dépendent de leur composition, de la cinétique réactionnelle, des transferts de masse et de chaleur, de la température, et du temps de séjour des gaz issus de la pyrolyse et de la gazéification.

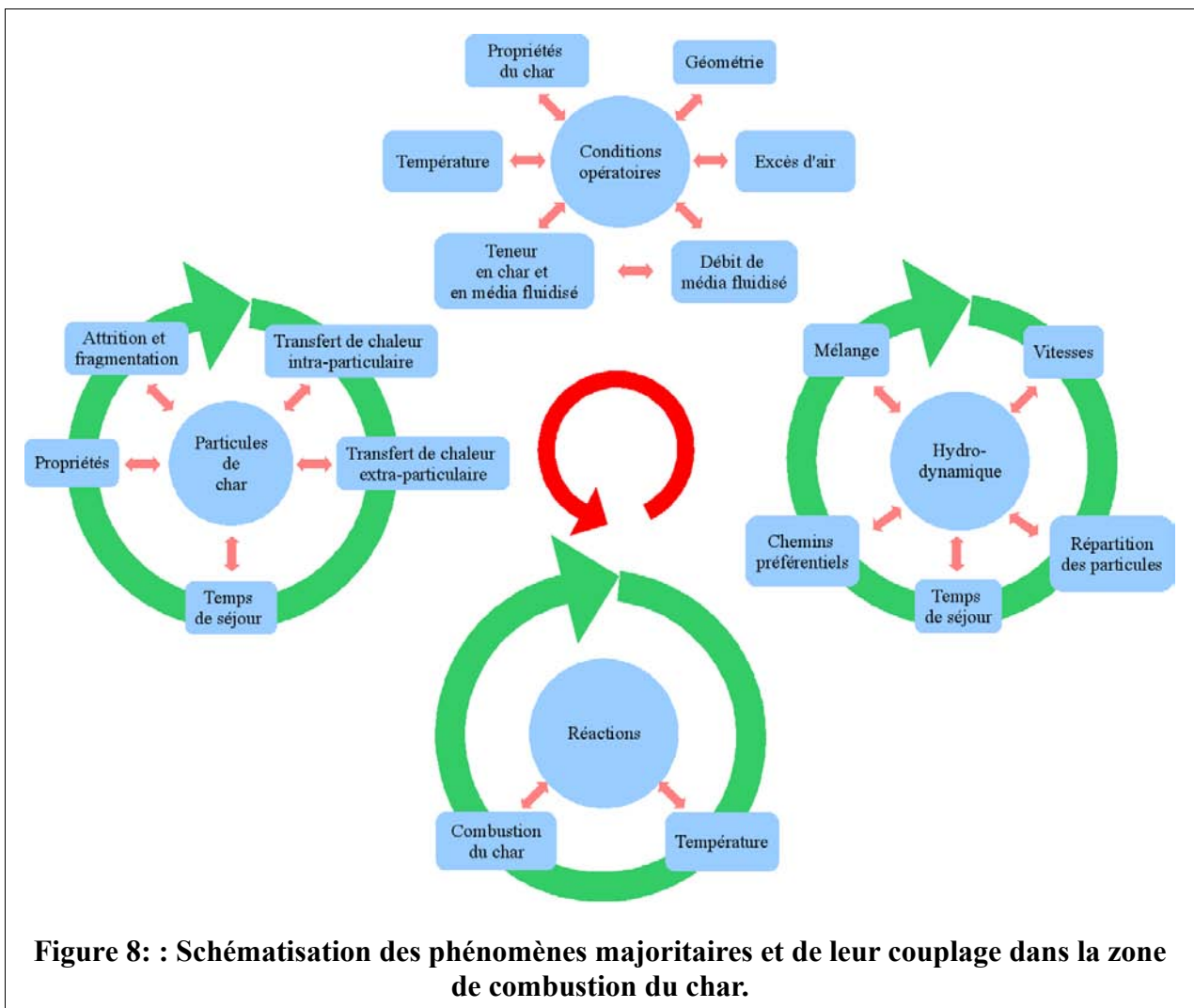


2.2.2.3 Récapitulatifs des phénomènes majoritaires dans la zone de conversion

LES PARAMÈTRES et les phénomènes couplés dans la zone de combustion sont (Figure 8) :

- Les conditions opératoires : géométrie, pression, débits et propriétés des phases gaz et particules, teneur du lit fluidisé en char et média fluidisé.
- L'hydrodynamique du réacteur :
 - la répartition horizontale des particules le long du réacteur ;
 - les vitesses relatives entre le gaz et les particules ;
 - les chemins préférentiels ;
 - le mélange de gaz et de particules.

- Les phénomènes à l'échelle des particules de char :
 - les mécanismes d'attrition et de fragmentation ;
 - les transferts thermiques intra et extra particulaires. Ils dépendent des propriétés des particules et de leur environnement hydrodynamique ;
 - le temps de séjour des particules. Il est fixé par les cinétiques réactionnelles et les limitations des transferts imposées par l'hydrodynamique. Il est de l'ordre de la seconde ;
- Les réactions :
 - la combustion des particules de char. Les cinétiques de combustion du carbone sont relativement bien établies. Le temps caractéristique de la combustion totale des particules de char est de l'ordre de la seconde.



2.2.3 Conclusions : problématiques scientifiques et technologiques

Les problématiques sont liées aux points suivants :

- les transferts particule-gaz lors de la conversion de la biomasse ;
- les mécanismes de fragmentation de la biomasse au cours de sa conversion ;
- les transferts particule-particule ;
- les transferts gaz-gaz liés aux mélanges des flux des gaz issus de la conversion de la biomasse et de la vapeur d'eau injectée dans le réacteur ;
- l'effet de la géométrie et de l'échelle du gazéifieur ;
- les cinétiques réactionnelles en phase homogène et hétérogène des vapeurs de pyrolyse et des vapeurs de gazéification ;
- les propriétés mécaniques de la biomasse et des catalyseurs particuliers utilisés ;
- la caractérisation expérimentale de ces phénomènes ;
- la prédiction du procédé, de ses zones réactionnelles et du couplage entre les phénomènes détaillés ci-dessus.

3 Chronologie et fil conducteur

CE CHAPITRE présente la chronologie de l'ensemble de mes activités, entre le début de mon stage de DEA jusqu'à aujourd'hui. Les principaux résultats y sont synthétisés. Compte tenu de la confidentialité de certaines de mes activités de R&D, quelques points ne sont que brièvement évoqués.

3.1 DEA et premiers pas dans la recherche (1998)

3.1.1 Contexte et problématique

EN MARS 1998, j'intègre l'équipe du professeur Oesterlé au Laboratoire Universitaire de Mécanique et d'Energétique de Nancy pour y réaliser mon stage de Diplôme d'Etudes Approfondies de l'INP Lorraine, option Mécanique des Fluides et Energétique. C'est aussi ma dernière année de l'Ecole Supérieure des Sciences et Technologies de l'Ingénieur de Nancy, école à prépa intégrée, dans laquelle je suis entré en septembre 1993. Mon stage porte sur l'Etude dynamique et thermique des effets liés aux interactions turbulence-particules dans un écoulement gaz-solide en conduite" (Andreux).

3.1.2 Méthodologie et principaux résultats

ENCADRÉ PAR LE PROFESSEUR OESTERLÉ, co-encadré par le maître de conférences Pascal Boulet^a, mon objectif est de reprendre les sources du code de calcul des écoulements turbulents gaz-particules faiblement chargés en conduite lisse développé par l'équipe, et d'y intégrer les transferts thermiques. Un modèle k- ϵ standard modélise la turbulence du fluide, et un modèle de Prandtl turbulent le transfert thermique au sein du fluide. Un modèle lagrangien de calcul de trajectoires des particules est utilisé, avec prise en compte des collisions particule-particule et particule-paroi par une approche stochastique Monte-Carlo. Le couplage gaz-particules hydrodynamique (par la force de traînée) et thermique (par la convection) est réalisé aux grandes échelles et à celles de la turbulence. Les équations sont discrétisées par une méthode de différences finies. Après avoir montré, en comparant les prédictions numériques aux données expérimentales hydrodynamiques et thermiques de la littérature (Tsuji et al.⁷, Depew et al.⁸, Jepson et al.⁹), que le domaine de validité de l'approche est limité aux taux de chargement inférieurs à 3 % (Figure 9), j'ai proposé des voies d'amélioration de la modélisation basées sur l'expérimentation et la simulation. Ce travail a fait l'objet d'une communication (Andreux et al.¹⁰) et d'une publication dans Int. J. Heat and Fluid Flow (Boulet et al.¹¹). Le LUMEN est aujourd'hui intégré au LEMTA, UMR 7563, et les travaux de l'équipe du professeur Oesterlé portent sur les écoulements dispersés et les transferts radiatifs couplés dans les milieux complexes.

^aPascal Boulet est aujourd'hui Professeur au LEMTA.

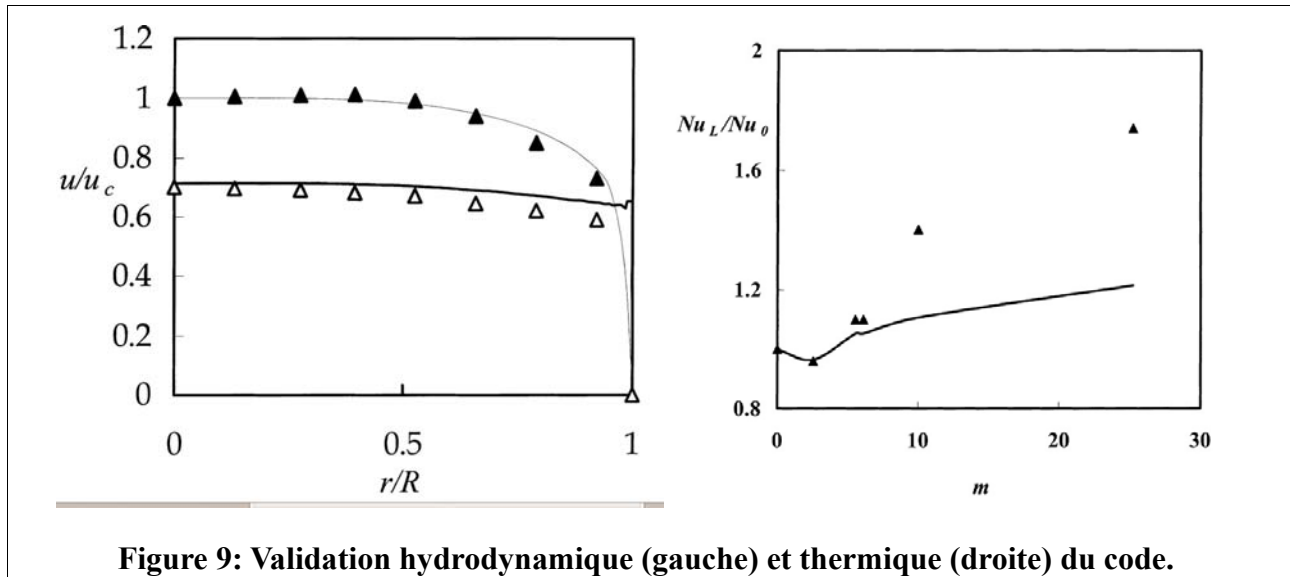


Figure 9: Validation hydrodynamique (gauche) et thermique (droite) du code.

3.2 Doctorat et rencontre avec le Génie des Procédés (1998-2001)

3.2.1 Contexte et problématiques

LES SUJETS FONDAMENTAUX traités par le lumen me donnent le goût de la recherche théorique en mécanique des fluides. Je cherche alors une thèse dans ce domaine, préférentiellement hors de ma Lorraine natale, désireux de changer de région après y avoir réalisé toutes mes études.

En juin 1998, le professeur Oesterlé me permet de rencontrer le professeur Simonin au congrès de l'ICMF^a qui se tient à Lyon. Celui-ci, alors professeur PAST-EDF à l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, est directeur "pressenti" d'une thèse financée par une bourse de l'ENSPM^b et proposée par l'Institut Français du Pétrole, dont l'Ingénieur de R&D Gilles Ferschneider sera le tuteur. Je n'entrevois alors que la partie supérieure de cet iceberg scientifique, qui me semble consister à développer la modélisation locale afin de mieux représenter l'hydrodynamique d'un écoulement de gaz et de particules circulant à travers un coude à 180°. J'entrevois donc la possibilité de mettre en œuvre les perspectives dégagées lors de mon stage de DEA, en particulier l'étude des interactions turbulence-particules et particules-paroi par expérimentations expérimentales et numériques.

^aInternational Congress of Fluid Mechanic

^bEcole Nationale Supérieure du Pétrole et des Moteurs

En réalité, le coude à 180° est un séparateur gaz-particule complexe, le ramshorn (Figure 10), développé quelques années plus tôt dans le cadre d'une Alliance IFP-Axens-Total-SWEC, et utilisé dans le procédé de Fluid Catalytic Cracking. A l'échelle industrielle, ce système fonctionnant à des températures de l'ordre de 500-550°C, traversé par des débits de gaz et de particules de l'ordre de 10 t/min, dont le diamètre hydraulique d'entrée est de l'ordre du mètre, est bien loin de la représentation que je m'en fais. Il est clair que l'outil expérimental ne sera pas un simple coude en pvc étudié avec une nappe laser, et que l'outil numérique ne sera pas une boîte périodique de DNS. En définitive, je vais établir une base de données expérimentales de grandeurs locales et globales me permettant d'une part de corrélérer le comportement hydrodynamique du séparateur, d'autre part de valider la modélisation euler-euler implantée dans le code de calcul polyphasique industriel Estet-Astrid d'EDF. L'objectif final pour l'IFP étant de disposer d'un outil mature utilisable pour le dimensionnement des séparateurs industriels et l'établissement de leurs règles d'extrapolations de l'échelle du laboratoire à industrielle.

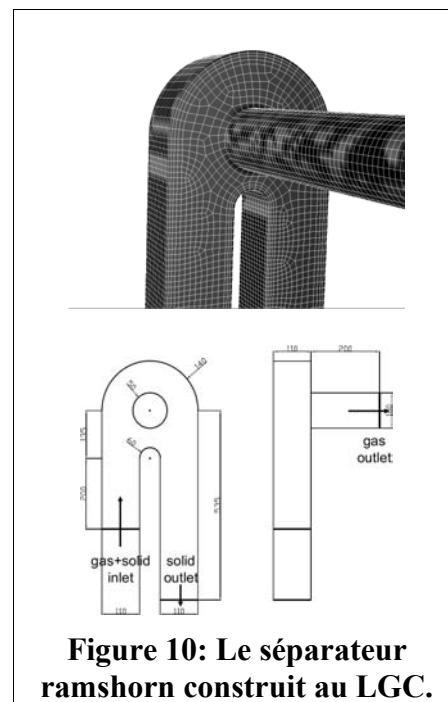


Figure 10: Le séparateur ramshorn construit au LGC.

Je prends mes fonctions dans l'équipe du professeur Simonin à l'IMFT, dans le groupe Ecoulement et Combustion, en septembre 1998. J'y mènerai mes études de simulation et de modélisation des écoulements du séparateur. Simultanément, je réaliserai celles de caractérisation expérimentale à l'échelle du laboratoire dans les locaux du Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse sous la co-direction du professeur Hémati.

3.2.2 Principaux résultats

Etude expérimentale

JE BÉNÉFICIE d'une formation accélérée en génie des procédés par le professeur Hémati durant les premiers mois de la thèse. Elle nous permet de dimensionner ensemble une installation de lit fluidisé circulant respectant au mieux la similitude hydrodynamique de l'écoulement en entrée du séparateur industriel. La similitude est donnée par les nombres issus de l'adimensionnalisation des équations régissant les écoulements gaz-particules (Tableau 4), moyennant des hypothèses simplificatrices liées à l'impossibilité physique de tous les respecter simultanément. Les phénomènes collisionnels entre particules sont pris en compte, à la différence des approches classiques du Génie des Procédés.

Tableau 4 : Nombres adimensionnels de la similitude hydrodynamique du séparateur ramshorn. α_i , ρ_i , μ_i , V_i la concentration volumique, la densité, la viscosité et la vitesse interstitielle de la phase i, τ_p^C et τ_{gp}^F les temps caractéristiques des transferts de quantité de mouvement particule-particule par collisions et fluide-particule par traînée.

Dénomination	Formule mathématique	Sens physique
	$\frac{\alpha_p \rho_p}{\alpha_g \rho_g}$	respect des effets liés à la présence des particules
nombre de Reynolds	$\frac{\rho_g V_g D}{\mu_g}$	respect de la compétition entre les phénomènes inertiels et visqueux
nombre de Froude	$\frac{V_g}{\sqrt{D g}}$	respect de la compétition entre les forces liées à la vitesse et à la force de pesanteur
nombre de Strouhal (1)	$\frac{D}{\tau_{gp}^F V_g}$	respects des interactions entre phases
nombre de Strouhal (2)	$\frac{D}{\tau_p^C V_g}$	respects des effets collisionnels

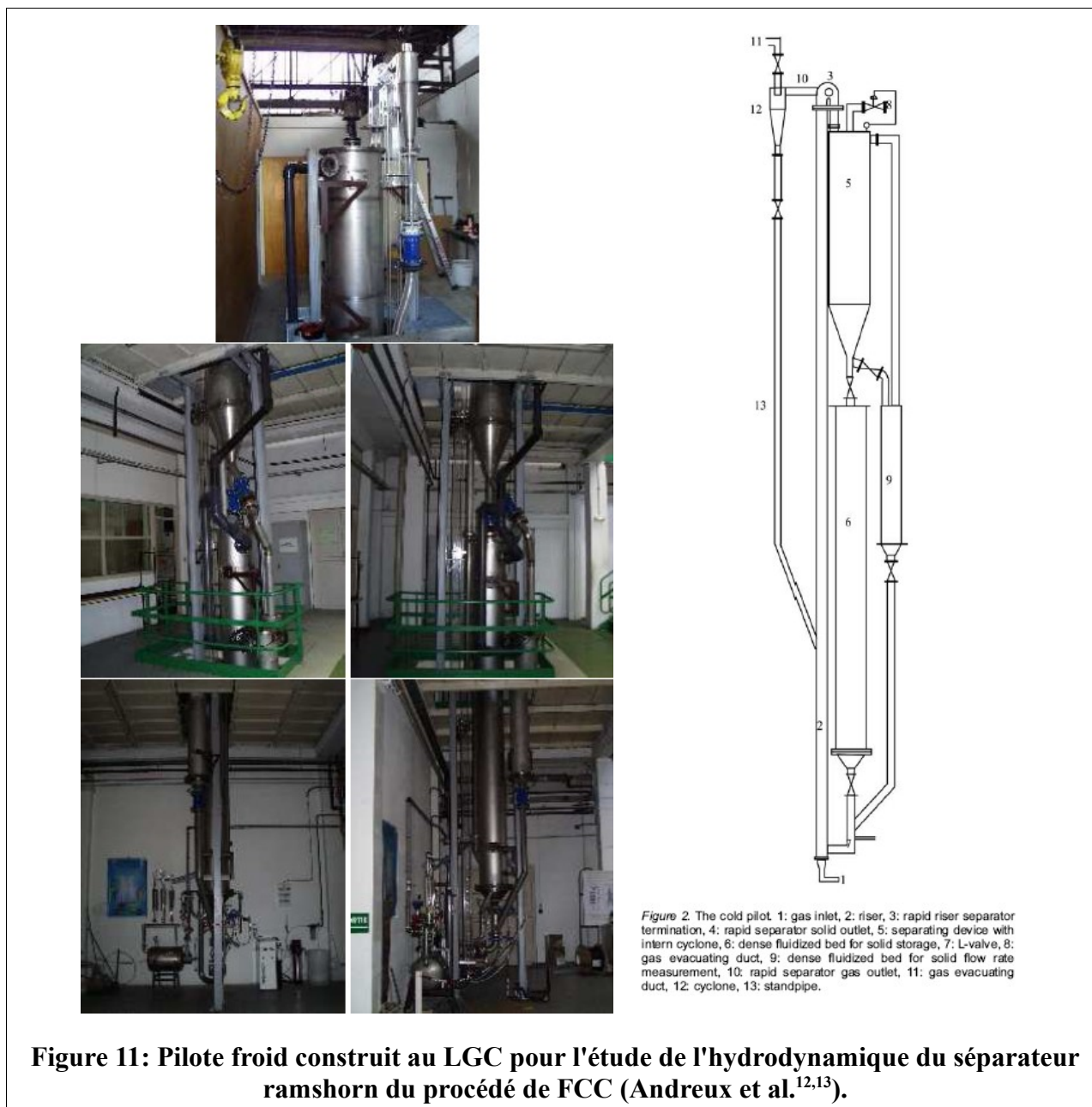
Les conditions opératoires ainsi fixées, nous dimensionnons l'installation sur la base de règles classiques^a et de quelques choix techniques innovants. Ceux-ci ont notamment permis d'obtenir compacité et stabilité, parfois avec des principes différant de ceux des lits fluidisés circulants industriels^a, comme l'ont montré nos discussions d'alors avec les acteurs principaux du projet FCC de l'IFP, les ingénieurs de R&D Thierry Gauthier et Patrick Leroy^b. L'installation de 11 m de hauteur, de 4 m² de surface au sol, alimentée par un compresseur de 500 Nm³/h, et gérant 500 kg de particules (Figure 11) a été construite par l'équipe technique du Laboratoire de Génie Chimique, en particulier les techniciens Jean Konkolewski^c, Jacques Labadie, Michel Molinier, Alain Müller, Valérie Rouch. C'est à cette occasion que j'ai pu, en les assistant durant la fabrication et le montage des éléments du pilote, mesurer l'importance des techniciens dans la réalisation des travaux de R&D.

^aRespect du bilan pression ; règles de design des vannes non mécaniques, des cyclones, des conduites, des distributeurs, ...

^aPar exemple : vanne non mécanique en L sur poudre A de la classification de Geldart ; séparation tertiaire de particules par sédimentation et cyclone sans jambe de retour ; humidification de l'air sec avant introduction dans la veine d'essais à l'aide de chaudière génératrice de vapeur haute pression.

^bThierry Gauthier est aujourd'hui Expert IFP, et Patrick Leroy Ingénieur de R&D au Centre de Recherche du Groupe Total au Havre.

^cJean Konkolewski est aujourd'hui en retraite.



En mesurant les pressions pariétales locales, les flux massiques locaux de solide, et les efficacités de séparation gazeuse et solide (Figure 12) en fonction des paramètres opératoires (débits entrant, loading, pressions des sorties), je montre que le séparateur se comporte comme un cyclone : son efficacité de séparation augmente et sa perte de charge diminue lorsque le rapport des concentrations massiques augmente jusqu'à une valeur critique proche de 5 kg de solide pour 1 kg de gaz. Au delà, les tendances s'inversent. Grâce à cette analogie comportementale, une modélisation corrélative du séparateur sur la base des modèles de cyclone de Barth¹⁴, Muschelknautz^{15,16} et Hoffmann¹⁷ est proposée (Figure 13).

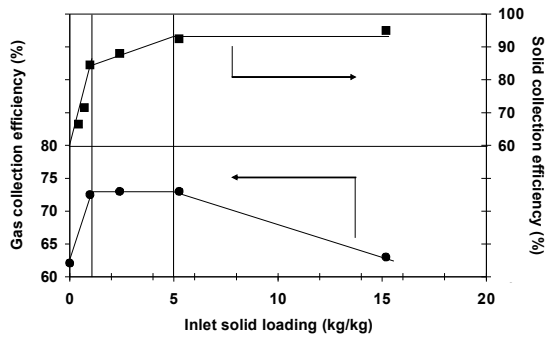


Figure 12: Efficacité de séparation gaz (●) et solide (■) du séparateur sans contre-pression exercée (Andreux et al.¹²).

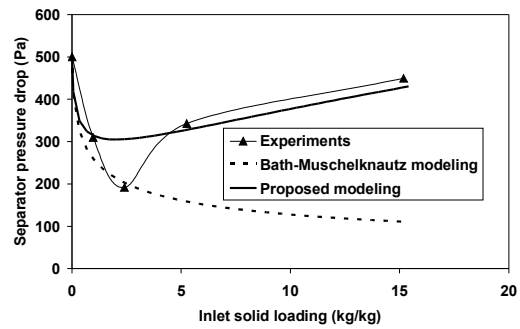


Figure 13: Comparaison entre les pertes de charges mesurées et celles prédites par le modèle dérivé du modèle de cyclone de Bath-Muschelknautz (Andreux et al.¹²).

Etude numérique

J'APPROFONDIS MA CONNAISSANCE théorique de la modélisation locale des écoulements gaz-particule dérivée de la théorie cinétique des milieux granulaires secs, guidé par les conseils et l'expertise du professeur Simonin. Armé de ce bagage théorique, j'utilise les codes de calcul industriel et de recherche Estet-Astrid et Mélodif de Edf pour simuler le comportement du séparateur dans les conditions de l'étude expérimentale (Figure 14). Le modèle est capable de prédire assez correctement les tendances et les valeurs quantitatives, même si un biais est parfois observé (Figure 15).

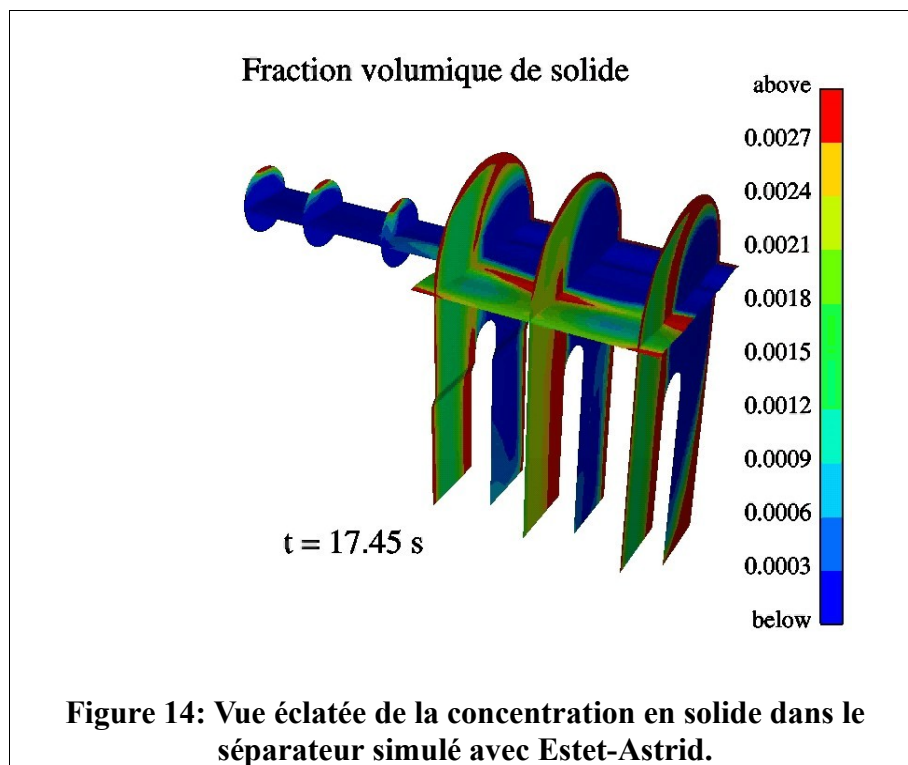


Figure 14: Vue éclatée de la concentration en solide dans le séparateur simulé avec Estet-Astrid.

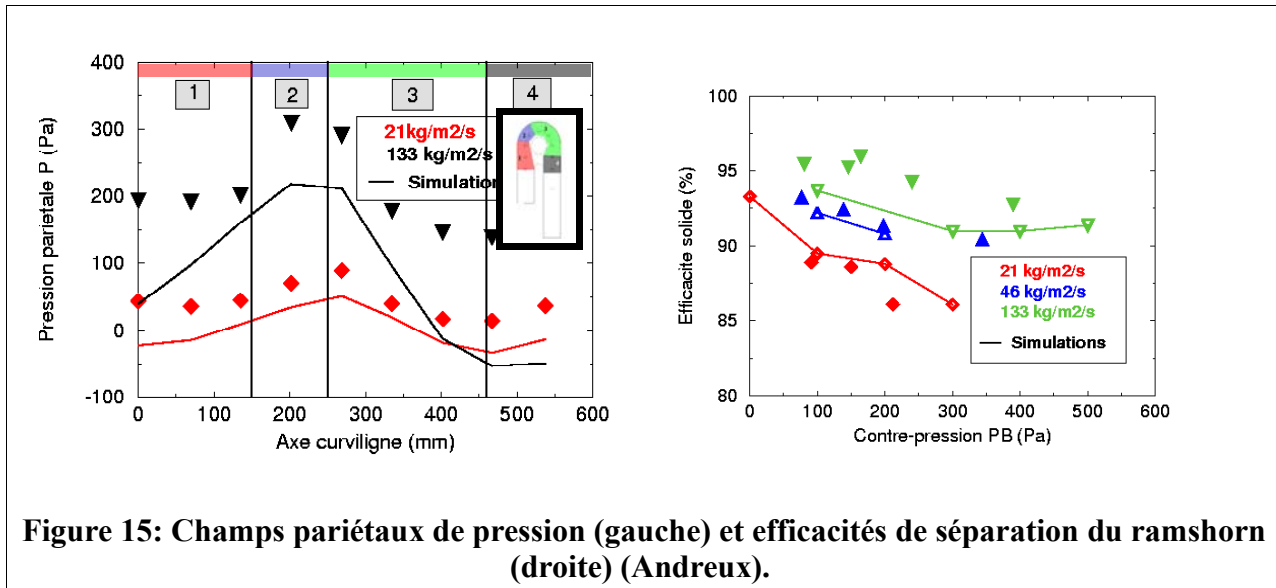


Figure 15: Champs pariétaux de pression (gauche) et efficacités de séparation du ramshorn (droite) (Andreux).

Un vortex gazeux visualisé expérimentalement au cœur du séparateur sous certaines conditions suggère que les modèles de viscosités utilisés sur la phase gazeuse et la phase dispersée ne sont pas adaptés. Mes simulations monophasiques le confirment (Figure 16), du point de vue du gaz. J'entreprends alors d'étendre au régime dense collisionnel un modèle au second-order de la phase dispersée, celui implanté dans Estet-Astrid et Mélodif étant limité au régime dilué, qui permettrait par ailleurs de prendre en compte les rebonds inélastiques avec frottement des particules sur la paroi du séparateur.

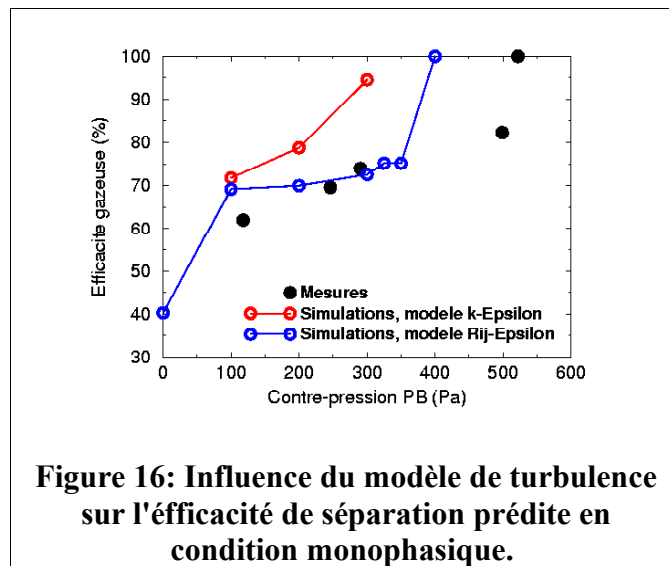
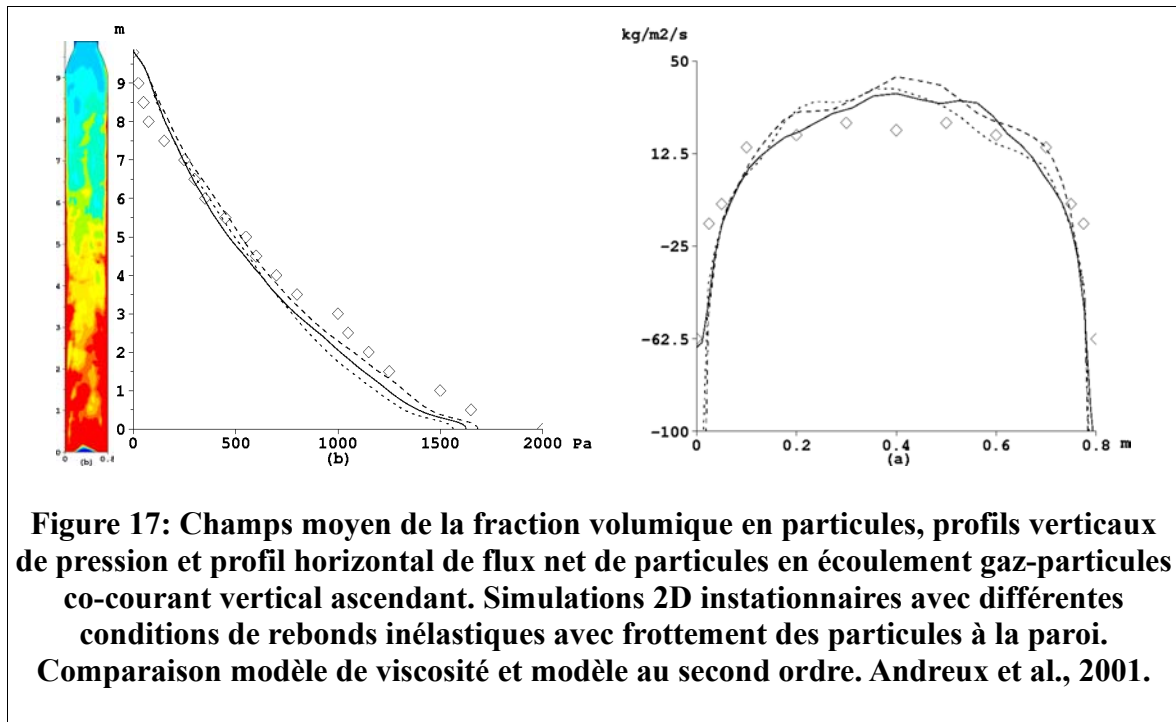


Figure 16: Influence du modèle de turbulence sur l'efficacité de séparation prédite en condition monophasique.

Mon développement théorique s'appuie sur la théorie des milieux granulaires secs et les travaux antérieurs de l'équipe du professeur Simonin (Boelle¹⁸, Sakiz¹⁹, Lavieville²⁰) qui lui ont permis au cours des années précédentes d'établir les modèles de viscosités d'Estet-Astrid et de Mélodif. J'implante cette modélisation dans Mélodif, code 2D programmé en Fortran, et je la teste en écoulement gaz-particules vertical ascendant co-courant et en lit fluidisé dense (Figure 17). Je commence ainsi mon travail de délimitation du domaine de validité de la modélisation locale euler-euler des écoulements gaz-particules entre les régimes dilués et denses, que je poursuis encore

aujourd'hui.



3.2.3 L'enseignement

JE PRATIQUE L'ENSEIGNEMENT, sous la forme d'une séance de TD de simulation numérique à ERCOFAC et de TP et TD de thermodynamique à l'INSA de Toulouse.

3.3 Post-doctorat, expatriation et premier projet de recherche (2002)

3.3.1 Contexte

MA FORMATION INITIALE et cette thèse expérimentale et numérique à cheval entre le domaine de la mécanique des fluides et le génie des procédés m'ont conduit à avoir une position intermédiaire entre la mécanique des fluides, le génie des procédés, l'industrie et la recherche. C'est un statut intéressant car il permet d'aborder des thématiques variées, avec des outils et des méthodologies divers, en lien direct avec les mondes académique, de recherche industrielle et de production. L'IFP-Lyon, en étant au cœur de la recherche, du développement et de l'industrialisation de procédés, est en ce sens un établissement attrayant. Désireux d'avoir une expérience d'expatriation, un post-doc m'est proposé à la fin de la thèse par le chef du département Génie Chimique de l'IFP-Lyon, M. Gauthier. Je serai alors accueilli une année par le professeur Chaouki dans son équipe de recherche à Poly-Montréal, sur un financement IFP. Mon post-doc, riche en apprentissages professionnel, social et culturel de part sa localisation et de part l'équipe de recherche à laquelle j'étais intégré^a, débuta début en janvier 2003 et pris fin en décembre de la même année.

^aMontréal est une mégapole multiethnique, et les doctorants et post-doctorants de l'équipe avec qui je travaillais étaient originaires aussi bien du Canada que de l'Algérie, de la Bosnie, du Brésil, de la Chine, de la Croatie, de la France, de l'Inde, de l'Iran, du Maroc, du Mexique ou de la Suisse.

J'eus carte blanche de M. Gauthier et du professeur Chaouki, pour définir mon programme de recherche sur un an, situation exceptionnelle encore aujourd'hui à mes yeux. Mon objectif : bénéficier de l'expertise du professeur Chaouki sur les techniques de mesures par sondes optiques en lits fluidisés gaz-particules denses afin de décrire leur hydrodynamique locale.

3.3.2 Problématiques, méthodes et principaux résultats

Etude expérimentale

ACCÉDER AUX GRANDEURS hydrodynamiques locales permet *a priori* d'améliorer la compréhension des lits fluidisés et des effets des propriétés des particules (densités et distribution granulométrique) et de la vitesse de fluidisation. En mettant en œuvre les bi-sondes optiques fabriquées par Heping Cui dans les installations expérimentales utilisées par Pierre Sauriol, tous deux doctorants dans l'équipe du professeur Chaouki^a, j'ai mesuré les concentrations volumiques locales en particules dans les conditions opératoires choisies. Le traitement des données avec le programme matlab que j'ai développé à cette occasion, sur la base du traitement de signal proposé par l'équipe du projet FCC de l'IFP quelques années plus tôt (Bayle et al., Smith), m'a permis de mesurer et de modéliser les fonctions de probabilités des propriétés hydrodynamiques locales (corde, vitesse, taux de bulle, concentration en solide, épaisseur de nuage). Le schéma de principe de l'acquisition et de l'analyse du signal de la bi-sonde optique plongée dans un lit fluidisé sont présentés dans la Figure 18.

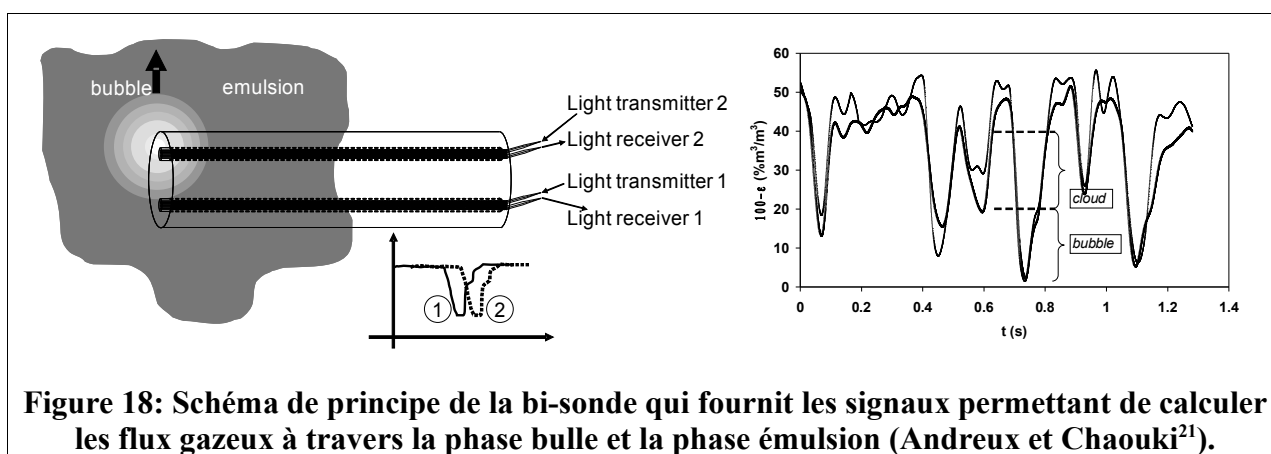


Figure 18: Schéma de principe de la bi-sonde qui fournit les signaux permettant de calculer les flux gazeux à travers la phase bulle et la phase émulsion (Andreux et Chaouki²¹).

En étudiant la fluidisation dense de particules B de la classification de Geldart (sable de 250-350 μm), j'ai montré que la teneur des bulles en particules est de l'ordre de 5 %, et que l'hypothèse d'une phase émulsion au minimum de fluidisation est correcte en-dessous d'une valeur seuil, approximativement la moitié de la vitesse de transition entre les régimes de bullage et turbulent. Au delà, la porosité de l'émulsion augmente, et la vitesse de son gaz interstitiel augmente significativement (Figure 19). Il s'ensuit que dans ces conditions, les corrélations classiquement utilisées majorent la vitesse de bulle d'un facteur deux, biaisant ainsi les prédictions du régime ascensionnel des bulles et du transferts bulle-émulsion. Les bulles montent à la même vitesse que le gaz interstitiel de l'émulsion aux faibles vitesses de fluidisation ($< 2 U_{mf}$), plus rapidement aux vitesses de fluidisation intermédiaires ($< 2-5 U_{mf}$), plus lentement aux grandes vitesses de fluidisation ($> 5 U_{mf}$) (Figure 20).

^aHeping Cui travaille aujourd'hui avec le professeur Grace sur la biomasse, à l'université de Vancouver, et Pierre Sauriol en tant que consultant en Colombie Britannique, Canada.

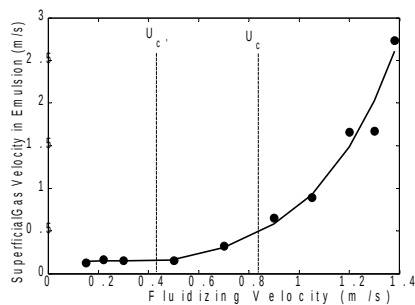


Figure 19: Vitesse moyenne du gaz dans la phase émulsion au sein d'un lit fluidisé de particules B de la classification de Geldart.

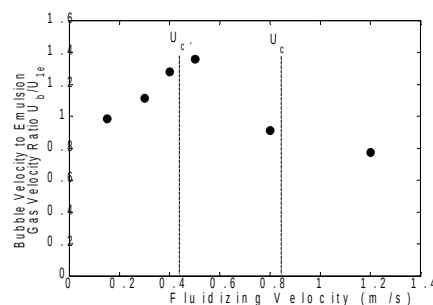


Figure 20: Rapport entre la vitesse moyenne des bulles et la vitesse interstitielle du gaz dans la phase émulsion d'un lit fluidisé de particules B de la classification de Geldart.

En suivant une méthodologie similaire avec des particules A de la classification de Geldart, j'ai établi un modèle de fonctions de densité de probabilité du diamètre, de la vitesse et de la concentration volumique en particules des bulles et de l'épaisseur de nuage (Figure 21). Ce modèle corrélatif permet de décomposer la description de la structure de bullage locale en une contribution moyenne et une contribution fluctuante. Mis en œuvre dans un modèle de réacteur, il permet *a priori* d'améliorer la modélisation du couplage hydrodynamique/réaction. Ces travaux ont été publiés dans la revue AIChE Journal (Andreux et al.^{22,21}).

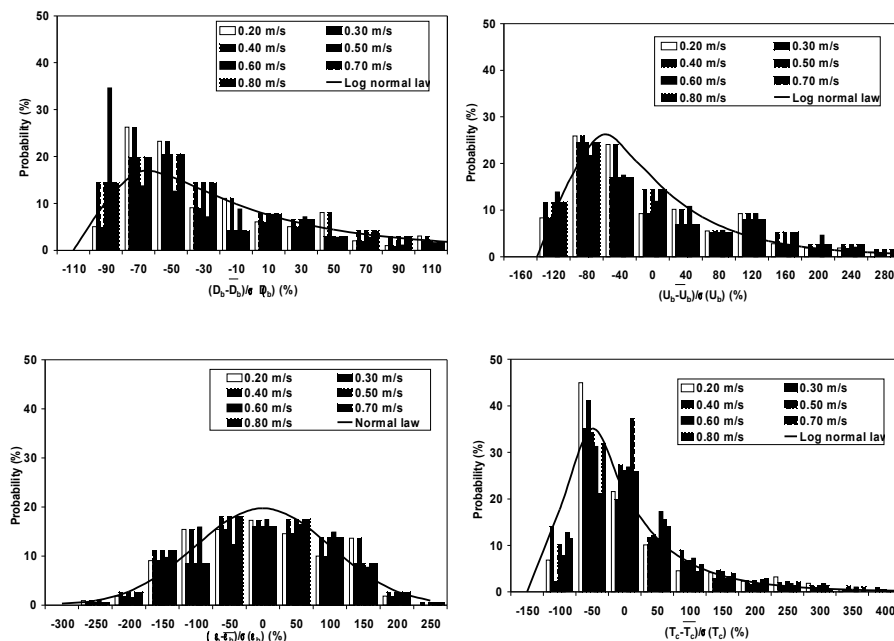
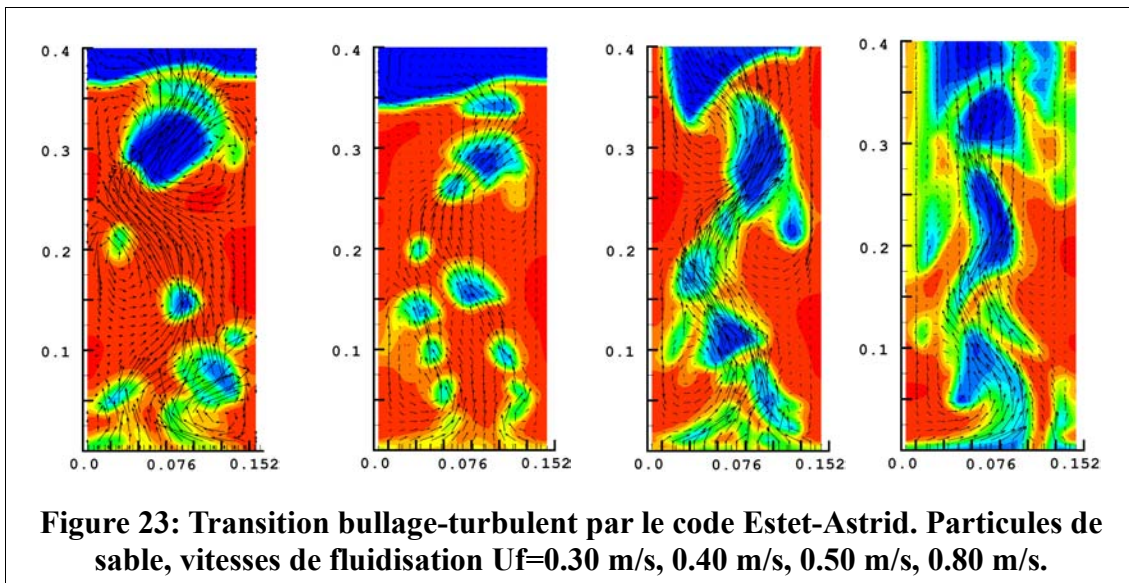
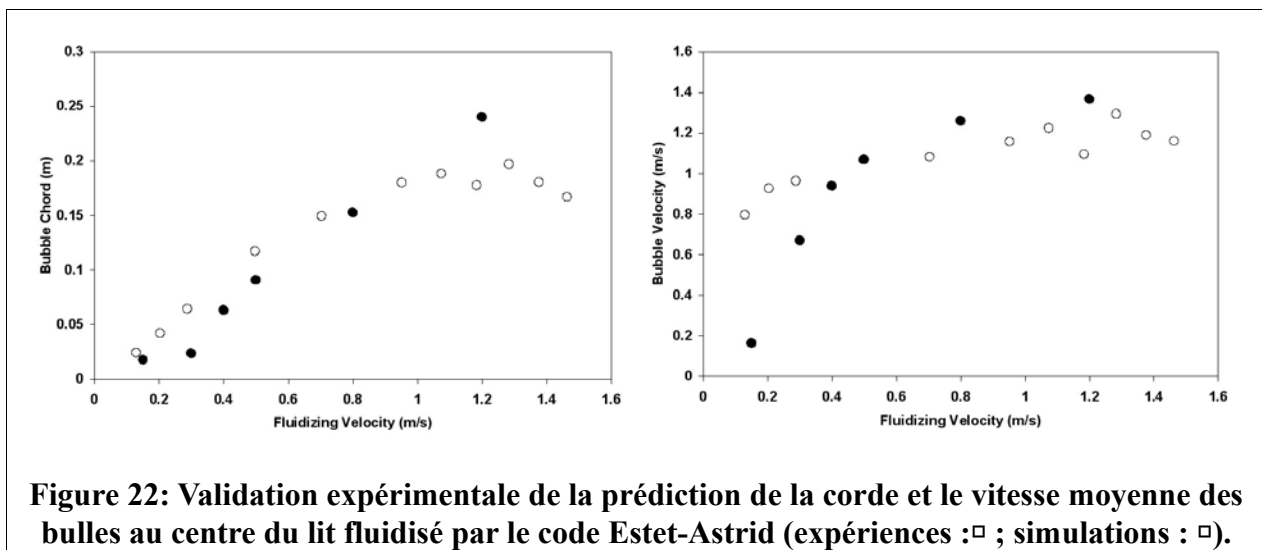


Figure 21: Densités de probabilité du diamètre, de la vitesse, et de la concentration en particules de la bulle, et de l'épaisseur du nuage autour de la bulle.

Etude numérique

LA BASE DE DONNÉES EXPÉRIMENTALE que j'établis me sert ensuite à la validation de la simulation numérique. En montant un partenariat scientifique avec le professeur Simonin, j'ai pu utiliser Estet-Astrid pour simuler mes configurations expérimentales et compléter les limites de validité du code que j'avais commencé à déterminer durant ma thèse. Les simulations à distance depuis Montréal sur les stations de calcul de l'IMFT ont été rendues possibles grâce à l'aide technique du service informatique de l'IMFT, et en particulier de Jean-Pierre Bombaud. Ces travaux, bien que non publiés à ce jour, montraient que la modélisation développée par le professeur Simonin et son équipe était déjà à même de prédire quantitativement une bonne part des grandeurs hydrodynamiques locales (Figure 22) et la transition bullage-turbulent (Figure 23). De nombreux travaux sur la modélisation de la polydispersion, du couplage fluide-particules et des phénomènes de sous-maillages ont été et sont actuellement réalisés dans son équipe pour améliorer le modèle, aujourd'hui implanté dans le code de calcul Neptune.



3.4 L'IFP, ou comment acquérir une expertise industrielle (2003-2007)

EN FÉVRIER 2003, après la fin de mon post-doc et mon retour en France, je prends mes fonctions d'Ingénieur de R&D dans le département Génie Chimique, alors dirigé par M. Nougier, au sein de la Division Procédé de L'IFP-Lyon. J'y travaillerai jusqu'au 31 août 2007.

3.4.1 Développement de l'expertise du procédé de FCC (2003)

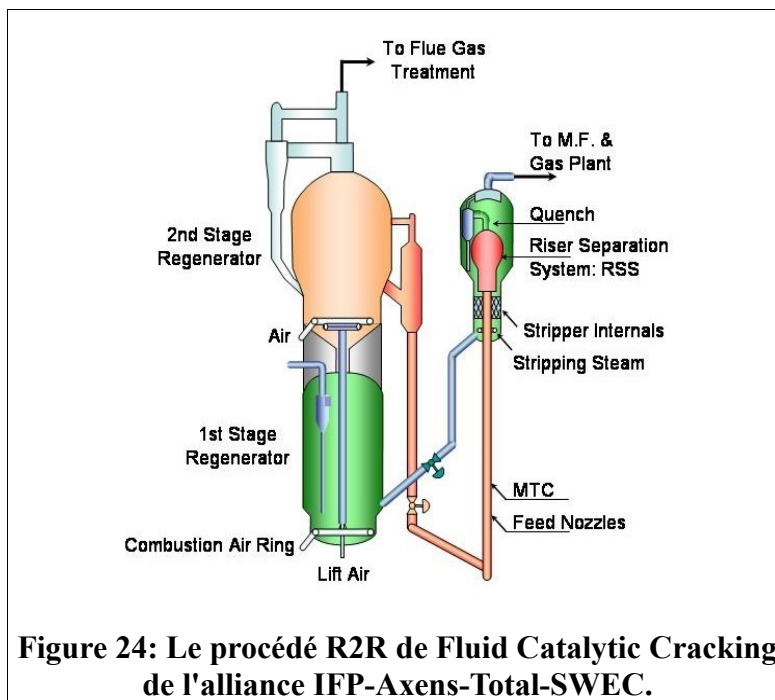


Figure 24: Le procédé R2R de Fluid Catalytic Cracking de l'alliance IFP-Axens-Total-SWEC.

Activité industrielles : démarrage et process book

DURANT LA PREMIÈRE ANNÉE, je complète mes connaissances théoriques et expérimentales du procédé de Fluid Catalytic Cracking (Figure 24) par plusieurs mises en situation industrielle :

–intégré à l'équipe du procédé FCC de l'IFP dirigée par M. Gauthier, j'effectue plusieurs visites du chantier de construction d'une nouvelle unité de Fluid Catalytic Cracking, de technologie R2R vendue par Axens, dans une raffinerie d'Europe de l'ouest. Les opportunités d'observer de l'intérieur les zones réactionnelles du procédé sont rares, et deviennent exceptionnelles lorsque les parois métalliques et réfractaires internes sont encore vierges de tout dépôt, érosion, et autres fatigues mécaniques ou thermiques. C'est au cours de ces expériences que je perçois concrètement la problématique de l'extrapolation des procédés : sur l'unité, le diamètre de la version industrielle "dernière génération " du séparateur de quelques centimètres de diamètre que j'ai étudié en laboratoire durant ma thèse est du même ordre que ... la demi-largeur d'un terrain de tennis !

–Intégré à l'équipe de démarreurs d'Axens, je suis la formation théorique portant sur le "Démarrage d'unité industrielle de FCC" dispensée par l'ENSPM-FI, puis une formation pratique quelques mois plus tard en assistant aux premiers démarrages de l'unité de FCC que j'ai évoquée plus haut, depuis la salle de contrôle de la raffinerie. L'opération de l'unité me montre alors concrètement certains

aspects de la réalité industrielle : le niveau de sophistication des lois de dimensionnement et des outils qui les établissent ne doit pas être le plus élevé possible : parfois, une corrélation obtenue à partir de la caractérisation "entrée-sortie" d'une seule maquette à échelle réduite peut être suffisante ; parfois, une loi précise est requise, empirique ou phénoménologique, obtenue à partir de campagnes expérimentales et numériques d'investigation. De manière simplifiée, le choix de ce niveau de sophistication découle principalement de deux critères : de l'importance des approximations de dimensionnement sur le comportement du procédé ; de la flexibilité de l'unité eut égard à ces approximations, par la modification d'un nombre plus ou moins élevés de paramètres opératoires^a. C'est aussi à cette occasion que je comprends la difficulté d'obtenir des mesures industrielles fiables : l'un des fossés entre le laboratoire et le site industriel, c'est que l'on y mesure souvent ce que l'on peut avec les moyens que l'on a ...

–intégré à mi-temps durant 6 mois à l'équipe FCC d'Axens de Rueil-Malmaison, je participe à la réalisation du process book du revamp d'une unité d'une raffinerie du golfe persique. Nous composons alors une équipe hétéroclite^b conduisant à d'intenses échanges de points de vus et d'expertises sur le procédé. J'apprends en maîtrisant les règles de dimensionnement du procédé les besoins industriels auxquels doit répondre la R&D.

Encadrement de la recherche : écoulements gaz-particules verticaux ascendants co-courant

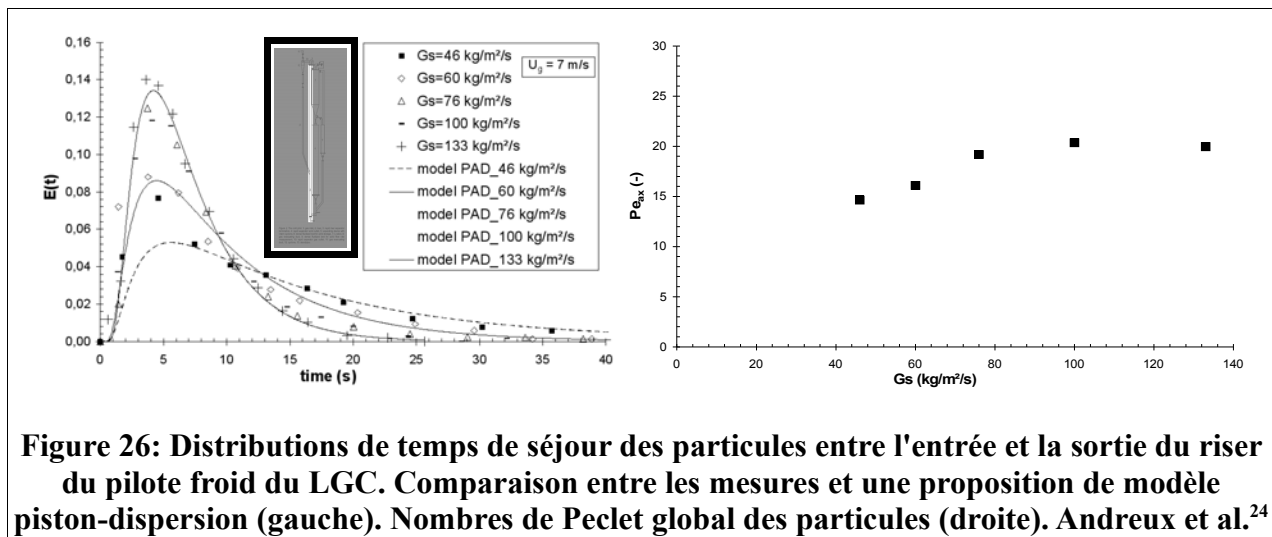
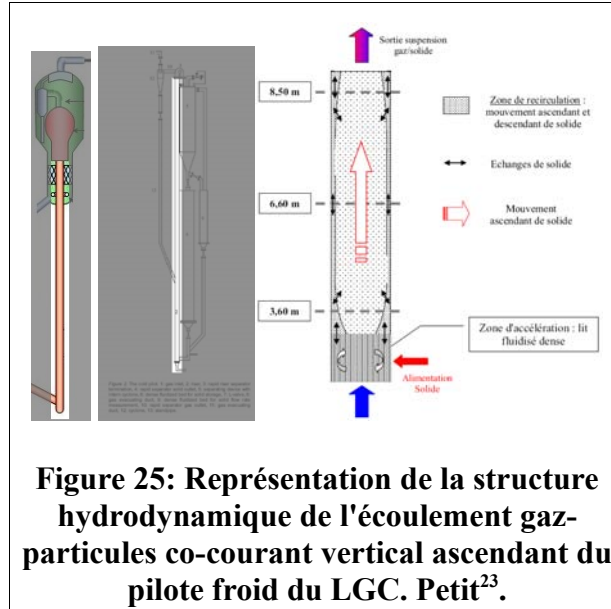
DANS LA MÊME PÉRIODE, je prends la responsabilité industrielle de la thèse CIFRE de M. Geoffrey Petit, co-financée par l'IFP, et localisée au Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse et à l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse. La thèse, intitulée "Contribution à l'étude expérimentale et numérique du comportement des phases gaz et solide dans un lit fluidisé circulant: application au procédé Fluid Catalytic Cracking", a commencé en septembre 2002. Elle est dirigée par le professeur Hémati et co-dirigée par le professeur Simonin.

L'objectif est de modéliser les transferts de masse, i.e. le mélange, de chaque phase dans la zone de craquage du procédé de FCC, avec une approche globale compatible avec le besoin industriel de l'IFP. Pour cela, les phénomènes de transferts intra-phase sont quantifiés expérimentalement dans le lit fluidisé circulant du LGC (Figure 25) dans des conditions proches de la similitude hydrodynamique. Le traçage du gaz et des particules établit les distributions de temps de séjour à différentes hauteurs de l'écoulement, afin de proposer un modèle piston-dispersion capable de les reproduire. La simulation numérique avec le code Saturne de l'IMFT est mise en œuvre avec l'objectif final d'établir des règles d'extrapolation d'échelle du modèle piston-dispersion.

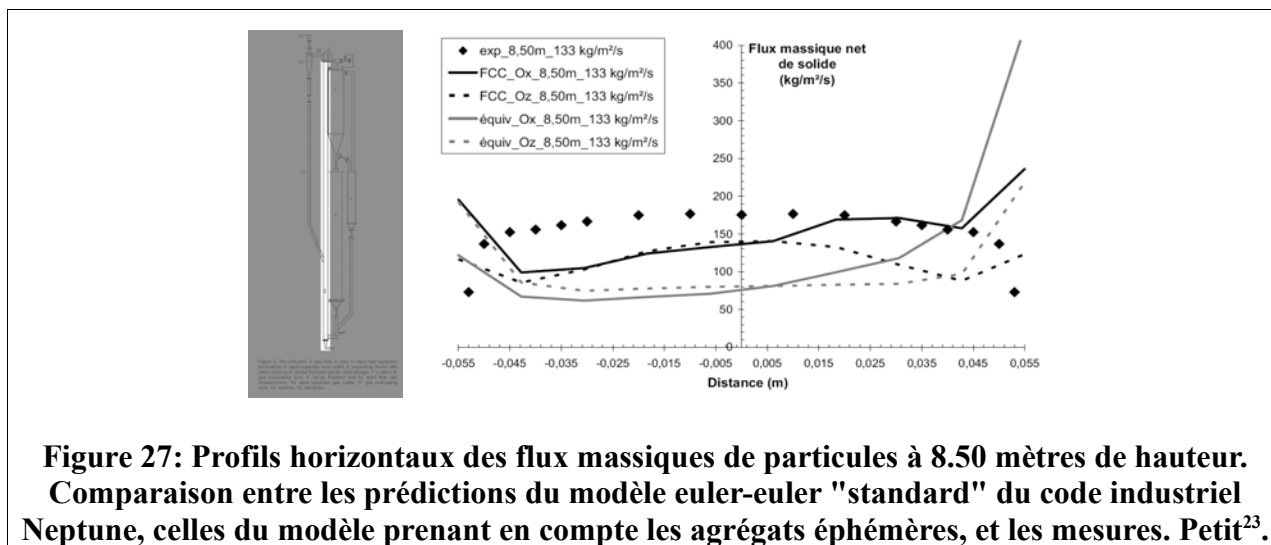
^aExemple : le dimensionnement approximatif du séparateur gaz-particule en tête de riser peut conduire à des pertes de catalyseurs, des érosions et de l'attrition, difficilement corrigibles. Le dimensionnement approximatif du riser peut conduire à une diminution des performances de l'unité, partiellement corrigibles par plusieurs paramètres opératoires (températures, rapport de débits massiques catalyseur/coupe pétrolière, pressions partielles de vapeur, activité du catalyseur).

^bM. Courteheuse, 30 ans d'expertise des procédés de FCC et de Steam Cracking à l'IFP et Axens (aujourd'hui à la retraite) ; M. Bayle, 10 ans d'expertise du procédé de FCC à l'IFP (aujourd'hui chez Total) ; M. Le-Coz, ex chercheur IFP avec 15 ans d'expertise sur les moteurs et alors nouvel arrivant chez Axens (aujourd'hui encore chez Axens)

Outre la structure hydrodynamique classique de l'écoulement (zone d'accélération et zone établies, structure coeur-anneau, Figure 25), nous avons montré que les transferts de masse au sein de la phase particulaire entre l'entrée et la sortie de la veine d'essais diminuent lorsque le débit de particules augmente, à débit gazeux constant : le nombre de Peclet global augmente de 10 à 20 (Figure 26).



Nous avons proposé un développement pragmatique de la modélisation locale afin de prendre en compte la formation des agrégats éphémères de particules, une des causes envisagées de la faiblesse des prédictions numériques du modèle euler-euler "standard" : les agrégats éphémères de particules formés dans l'écoulement (souvent dénommés les cluster) sont représentés comme une classe de particules dont la densité et le diamètre sont estimés préalablement à la simulation. Cependant, les prédictions n'en ont pas été sensiblement améliorées (Figure 27), ce qui a rendu impossible la définition des règles d'extrapolation d'échelles. Les travaux ont été publiés dans la revue Chem. Eng. Proc. (Andreux et al.²⁴) et présentés dans différents congrès internationaux avec actes (Andreux et al.²⁵, Petit et al.^{26,27,28,29}).



Innovation industrielle : production de propylène

DANS LES DERNIERS MOIS DE 2003, j'entreprends une étude théorique de faisabilité d'implantation d'une seconde zone réactionnelle dans les unités de FCC pour augmenter la production de propylène. Elle est réalisée dans le cadre d'un projet dirigé par M. Duplan, et conduira au dépôt d'un brevet (Andreux et Duplan^{30,31}) visant à positionner l'IFP par rapport aux développements industriels de ses concurrents KelloggBrown & Root Inc. (procédé Superflex), UOP (brevet Dual Riser) et ExxonMobil (brevet US2003/0044327A1) sur cette thématique.

3.4.2 Ouverture vers d'autres procédés (2004)

L'année 2004 me donne l'occasion d'aborder d'autres procédés.

Innovation industrielle : procédé en chemical looping

J'E RÉALISE LE PRÉ-DIMENSIONNEMENT des zones réactionnelles d'une unité de production d'hydrogène en lit fluidisé circulant par chemical looping dans le cadre d'un projet dirigé par M. Paul Broutin. L'unité est de capacité équivalente à la production maximale d'un train de vaporéformage de cette époque (9400 Nm³/h). J'y parviens en couplant les règles classiques de dimensionnement des réacteurs à lits fluidisés, incluant bilan thermique et bilan pression de l'unité, aux résultats de l'étude thermodynamique réalisée par Lecong³² durant son stage DEA à l'ENSPM. Le module de pré-dimensionnement est validé en réalisant un "reverse-engineering" de l'unité pilote de combustion par Chemical Looping de 10 MW localisée à l'Université Technologique de Chalmers et des données la concernant disponibles dans la littérature (Lyngfelt et al.³³).

Activité industrielle : troubleshooting

DANS LE CADRE D'UNE PRESTATION POUR AXENS (MM. Xavier Decoodt et Gérard Hotier), je mets en place un programme expérimental pour répondre à un besoin d'Assistance Technique sur la zone réactionnelle d'une unité de séparation BTX du secteur Asie^c. Le technicien en charge des essais est M. Denis Darmancier, avec qui nous établissons une procédure à l'échelle laboratoire (Figure 28), extrapolée à l'échelle industrielle sur la base de l'équation d'Ergun. La procédure industrielle finale sera mise en œuvre sur l'unité industrielle par Axens et l'exploitant (Andreux et al.³⁴).



Figure 28: Maquette du lit fixe liquide-solide étudiée pour l'AT du procédé de séparation BTX de l'IFP.

Activité industrielle : relevé et analyse de mesures industrielles

JE MAINTIENS MON ACTIVITÉ SUR LE PROCÉDÉ DE FCC. Elle consiste en plusieurs visites et relevés de mesures sur l'unité de la raffinerie évoquée plus haut (Andreux³⁵). Ces actions permettent d'établir les pressions différentielles et les températures dans toutes les zones de l'unité (riser, zones d'injection, stripper, séparateur, standpipe,) sur une large plage de conditions opératoires (en particulier, de 40% à 100% de la capacité design). Les règles de dimensionnement du procédé sont confirmées et précisées.

^cPour résumé, il s'agit de résorber la légère augmentation de la perte de charge mesurée à travers un des lits fixes gaz-liquide de l'unité. Cette augmentation est minime mais risque, si elle n'est pas contrôlée, de contraindre l'exploitant à diminuer la capacité de l'unité, et ainsi réduire sa marge financière.

3.4.3 Réorientation vers la recherche (2005-2007)

A PRÈS DEUX ANNÉES tournées vers le développement industriel et l'assistance technique (hormis l'encadrement industriel de la thèse de M. Geoffrey Petit, qui se termine en novembre 2005), je redonne une couleur plus "recherche, encadrement et enseignement" à mes activités, tout en continuant mes activités de développement industriel, essentiellement dédiées au procédé de FCC.

Encadrement de la recherche : écoulements gaz-particule denses verticaux descendants

JE PRÉPARE LE DÉMARRAGE D'UNE PREMIÈRE THÈSE en 2005 sur l'étude des écoulements gaz-particules denses verticaux descendants, liée au procédé de FCC. Ces écoulements sont un élément clé de la stabilité et de la performance des unités de FCC.

A partir des informations de retours industriels dont je dispose (mesures, conditions opératoires et comportements des unités associées) et d'une revue bibliographique des études expérimentales sur le sujet, je définis les conditions opératoires à étudier à l'échelle du laboratoire : ce seront des conditions que l'on ne rencontre pas en fonctionnement normal des unités industrielles, ce qui peut *a priori* paraître paradoxal. En réalité, elles correspondent à celles obtenues lorsque des problèmes d'opération sont observés et durant les phases de démarrage et d'arrêt de l'unité.

L'objectif est donc d'expliquer l'origine des perturbations de ces écoulements, d'identifier leurs conditions d'apparition, avant de comparer les propriétés des écoulements perturbés à celles des écoulements non perturbés et de les modéliser. Une maquette représentative des conditions industrielles et la simulation numérique sera mise en œuvre : celle du LGC, après quelques adaptations. Cette thèse CIFRE sera réalisée par M. Edgar Tavares à partir d'octobre 2006 sous la direction du Professeur Hémati. J'assurerai le co-encadrement.

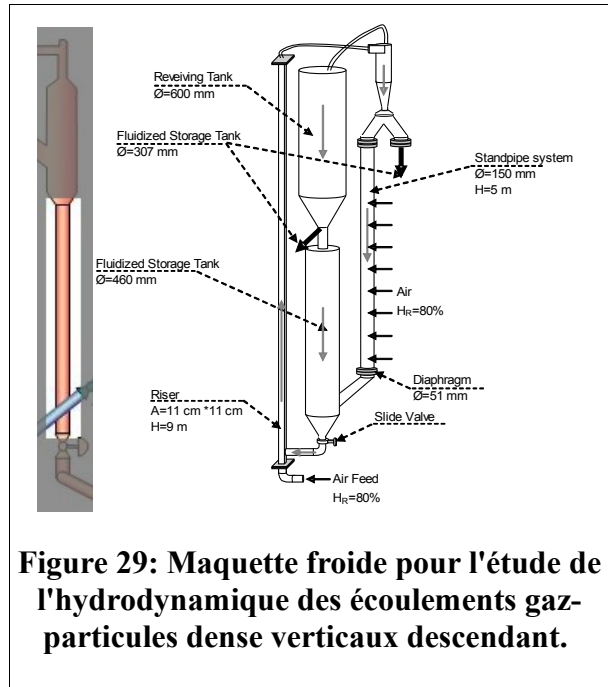


Figure 29: Maquette froide pour l'étude de l'hydrodynamique des écoulements gaz-particules dense verticaux descendant.

Encadrement de la recherche : couplage hydrodynamique/cinétique en écoulement semi-denses

JE PRÉPARE LE DÉMARRAGE D'UNE SECONDE THÈSE en 2007 sur l'étude du couplage entre l'hydrodynamique et la cinétique dans les écoulements réactifs gaz-particules à l'aide de la DNS et de la LES, assisté de M. André Nicolle^a.

L'objectif est d'anticiper les besoins scientifiques liés à l'utilisation future des modèles euler-euler pour le développement des procédés IFP basés sur la technologie des lits fluidisés. Les procédés concernés sont le FCC, la conversion thermochimique de la biomasse, les procédés en Chemical Looping.

Je propose donc de développer une méthodologie standard d'expérimentation numérique pour la réduction des mécanismes réactionnels en phase hétérogène dans les écoulements gaz-particules dilués, semi-dilués et denses (Figure 30). Ces mécanismes simplifiés devront intégrer dans leur formulation une part du couplage entre l'hydrodynamique à l'échelle des particules et la cinétique intrinsèque, et pourront être utilisés dans les codes de calcul euler-euler pour la simulation des écoulements gaz-particules réactifs industriels. Cette approche est *a priori* plus avancée que celle qui consiste à utiliser des mécanismes réactionnels établis expérimentalement dans les conditions asymptotiques de concentrations volumique en solide (dilution infinie et lit fixe) et raccordés empiriquement. A terme, la démarche doit être applicable à toutes les réactions hétérogènes et homogènes en écoulements gaz-particules dilués et denses. La thèse CIFRE commencera en octobre 2008, à l'IMFT, sous la direction du professeur Simonin, et utilisera le code AVBP.

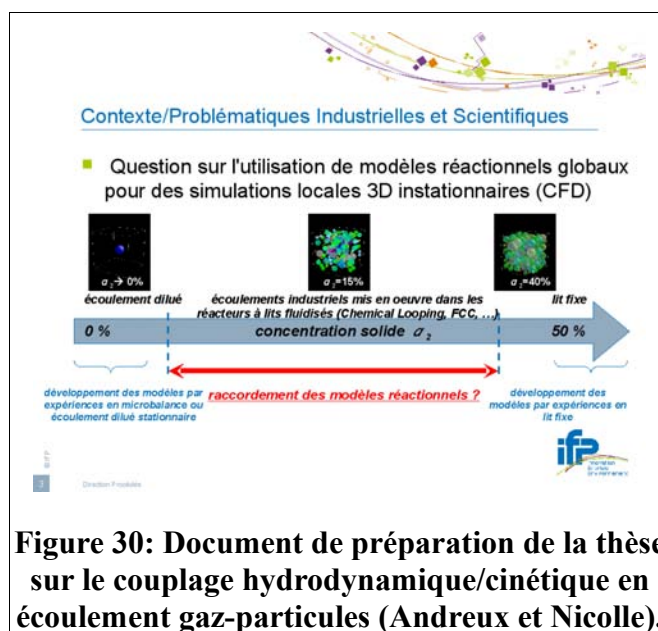


Figure 30: Document de préparation de la thèse sur le couplage hydrodynamique/cinétique en écoulement gaz-particules (Andreux et Nicolle).

Activité de recherche : fluidisation dense des particules de la classe A de Geldart

JE RÉUTILISE DÈS 2005 L'OUTIL DE SIMULATION NUMÉRIQUE des écoulements tri-dimensionnels gaz-particules denses, avec le code commercial Fluent sur le cluster linux de l'IFP composé d'environ 500 processeurs.

Il s'agit tout d'abord de préparer les besoins industriels futurs du procédé de FCC en qualifiant la simulation numérique pour la prédiction des écoulements tridimensionnels gaz-particules denses. Si depuis 1998 j'ai peu à peu défini le domaine de validité de la simulation pour les applications de séparations et d'écoulements gaz-particules co-courant verticaux ascendant semi-dilués, il reste à faire de même pour les écoulements denses du FCC, qui posent de réelles difficultés^b. Je teste le potentiel de la modification du modèle d'interaction gaz-particules proposée

^aAndré Nicolle est ingénieur IFP, embauché au début de l'année 2006 dans la direction Procédés, à l'IFP-Lyon. En 2008, il est muté à sa demande dans la direction Moteur-Energie à Rueil-Malmaison. L'encadrement industriel de la thèse est alors repris par M. Willi Nastoll à l'IFP-Lyon.

^bIl est communément admis depuis une quinzaine d'années que la fluidisation dense de ces particules n'est pas

par Total et l'IFP au milieu des années 90 à prédire l'hydrodynamique locale. Mege et Ferschneider (Rapport interne IFP) avait montré qu'elle permettait de prédire le profil vertical moyen de gradient de pression dans un lit fluidisé dense de particules de FCC. Dans le cadre du stage master intitulé "Numerical Simulation of a dense fluidized bed of Geldart-A particles" de M. Edgar Tavares que j'ai initié et que j'encadre (Tavares et Andreux³⁹), nous la testons pour la prédiction des structures hydrodynamiques (bulles).

Après avoir établi les paramètres numériques optimum de Fluent 6.3 (schéma numériques, pas de temps, maillage), les prédictions des simulations tridimensionnelles instationnaires ont été analysées et comparées aux données expérimentales de la littérature. L'approche, qui consiste à diminuer artificiellement la traînée exercée par le gaz sur les particules dans les zones denses afin de favoriser la formations des instabilités hydrodynamiques locales à l'origine des bulles de gaz, permet de prédire correctement la porosité du lit et le diamètre des bulle (Figure 32). Cependant, le débit gazeux dans la phase bulle est sur-estimé : la modification de la loi de traînée sur-estime la densification de l'émulsion, qui induit une sous-estimation du débit gazeux la traversant. Les surfaces et les temps de transferts entre les bulles et l'émulsion prédits en sont donc sous-estimés. Un éventuel couplage du modèle hydrodynamique avec une réaction hétérogène (par exemple la combustion du coke dans le régénérateur) conduirait à des prédictions biaisées. Le modèle modifié ne doit donc être utilisé que pour des études paramétriques qui concernent l'hydrodynamique du lit fluidisé.

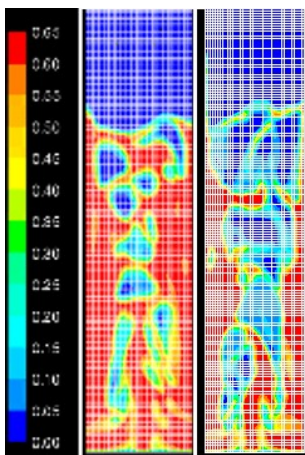


Figure 31: Champs instantanés de la concentration volumique dans un lit fluidisé de particules A de la classification de Geldart à 20 cm/s (gauche) et 80 cm/s (droite). Tavares et Andreux³⁹.

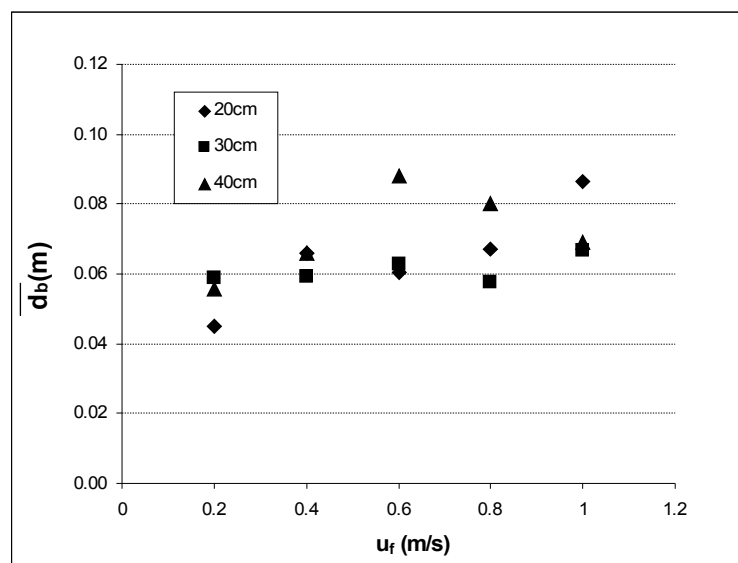
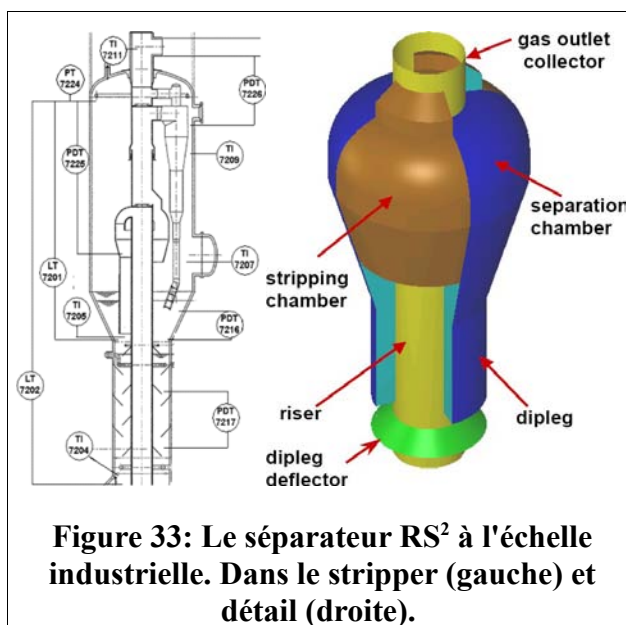


Figure 32: Diamètres moyens des bulles dans lit fluidisé de particules de FCC obtenus avec une loi de traînée modifiée. Tavares et Andreux³⁹.

Développement industriel : séparation gaz-particules rapide

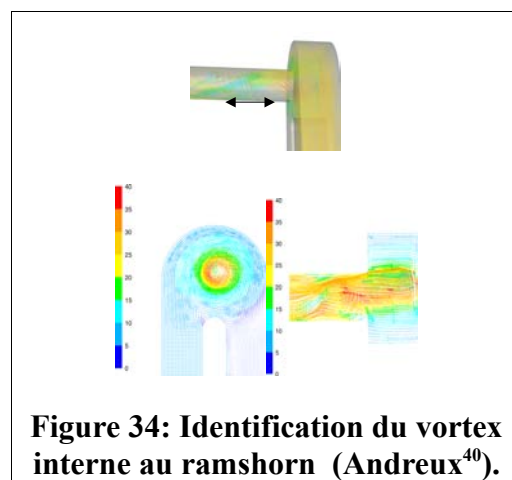
correctement prédite par les modèles "classiques" dérivant de la théorie cinétique des milieux granulaires secs. En effet, l'écoulement prédit est homogène et ne fait pas apparaître les hétérogénéités visualisées expérimentalement (bulles de gaz en particulier). La communauté scientifique est partagée sur les causes, ce qui a conduit à différentes propositions de développements théoriques ou pragmatiques à apporter au modèle : prise en compte des forces d'attraction particule-particule (forces électro-statiques, forces de Van Der Waals)^{36,37}, définition d'une taille de maille minimale permettant de limiter le filtrage des phénomènes de sous-mailles³⁸, calage pragmatique de la loi de transfert de quantité de mouvement entre les phases gaz et particules.

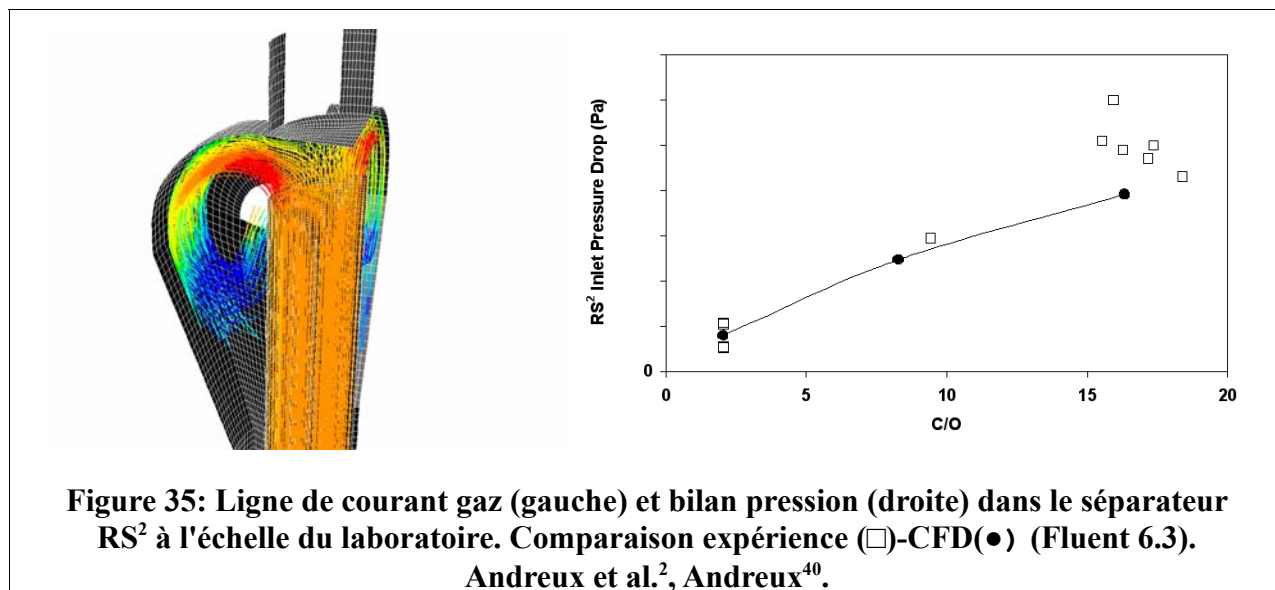
IL S'AGIT DE SE SERVIR DE L'OUTIL NUMÉRIQUE comme d'un outil de développement et d'amélioration du séparateur dernière génération du procédé FCC, le RS². En 2005, la réussite technologique et commerciale naissante de ce séparateur va immanquablement le conduire à vouloir être utilisé hors de son domaine d'utilisation initial : dans des unités de FCC de technologies différentes, dans la zone de régénération du catalyseur, dans des unités pas forcément adaptées à son installation, voire même dans d'autres procédés. Puisque des modifications de la géométrie et des conditions opératoires du séparateur peuvent en découler, des développements sont nécessaires.



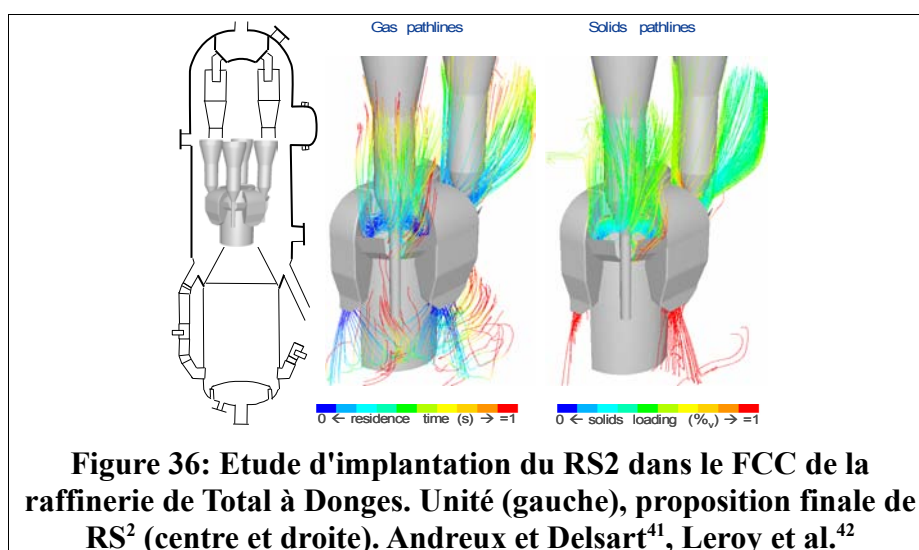
Comme il s'agit de valider le fonctionnement du séparateur légèrement modifié, basé sur les mêmes principes hydrodynamiques, le recours à l'outil expérimental avec conception de maquettes n'est pas justifiée : la simulation numérique doit être mise en œuvre.

La première étape consiste à tester les capacités de prédiction du code pour la séparation gaz-particules. J'utilise pour cela, durant l'année 2005, les cas expérimentaux étudiés à l'IFP par l'équipe du projet FCC en 1997-1998 et ceux de ma thèse en 1998-2001, puis les mesures industrielles que j'ai récupérées et analysées en 2004. Je confirme, sur la base de simulation hydrodynamiques avec les modèles R_{ij} - ϵ et LES de Smagorinsky, que le comportement du ramshorn ne peut pas être prédit par un modèle k - ϵ , de part la formation d'un vortex interne au séparateur (Figure 34). Je montre que la dernière génération de séparateur de l'IFP, le RS², n'a pas le même comportement hydrodynamique. L'écoulement gaz-part avec un modèle k - ϵ couplé à un modèle de viscosité granulaires tel que celui implanté dans Fluent. Je délimite les conditions laboratoires et industrielles (Figure 35).





A ce stade, je montre que la chaîne "modèle-code-utilisateur" dont je suis le dernier maillon est suffisamment mûre pour définir, sans étude expérimentale complémentaire, les règles de dimensionnement du séparateur et les lois d'échelles associées, ainsi que pour étudier des configurations industrielles spécifiques^a. En suivant logiquement mes conclusions, je mets l'outil numérique en œuvre en 2006 et 2007 pour établir les règles complètes de dimensionnement du séparateur RS² (Andreux⁴⁰), puis pour dimensionner celui dédié au Fast Combustor (Technologie UOP) de l'unité de FCC de la raffinerie de Total à Donges (Figure 36).



Ce dernier travail est réalisé dans le cadre d'une sous-traitance d'Axens pour une prestation de Total, en collaboration⁴¹ avec Olivier Delsart, Ingénieur de R&D au Centre Européen de Recherches et de Techniques de Total. Les mesures industrielles réalisées par Total après revamp confirment la validité de l'approche.

L'ensemble des travaux sur le séparateur, réalisés par les équipes successives du projet FCC de l'Alliance IFP-Axens-Total-SWEC, est récompensé en 2006 par le prix de l'Association

^aLiées à des contraintes d'encombrement impliquant que le séparateur "standard" ne puisse pas être utilisé par exemple.

Française des Techniciens et professionnels du Pétrole.

Développement industriel : séparation gaz-liquide-particules haute pression et haute température

L'EXPERTISE DE LA SÉPARATION RAPIDE que j'ai acquise me conduit en 2007 à participer au projet dirigé par M. Quignard, né d'une collaboration Axens-IFP-PDVSA-INTEVEP sur la conversion des coupes pétrolières extra-lourdes en slurry (procédé HDH+). Il me faut préconiser un dimensionnement d'un séparateur gaz-liquide-solide situé en sortie d'une zone d'hydroconversion d'une coupe pétrolière lourde fonctionnant à haute température et haute pression. La fraction liquide, qui contient les résidus solides de la réaction et le catalyseur sous forme de particules, doit être récupérée pour être envoyée dans une seconde section d'hydroconversion. Les temps de séjour des phases gaz et liquide doivent être contrôlés pour minimiser les risques de surcraquage qui conduiraient à la dégradation des performances et éventuellement au bouchage du système.

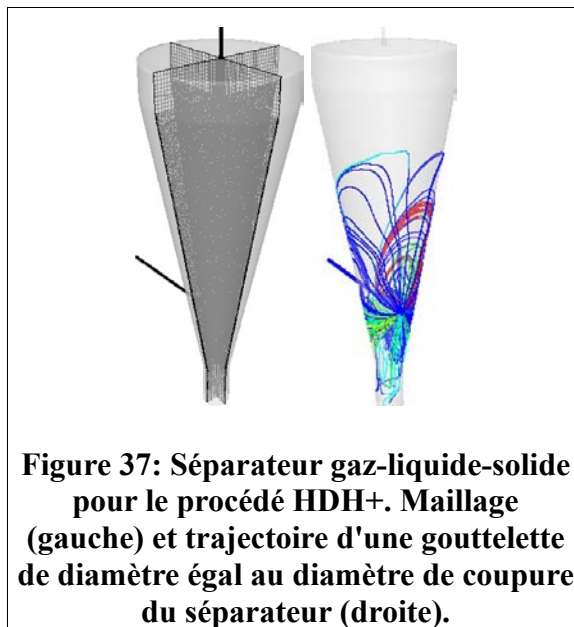


Figure 37: Séparateur gaz-liquide-solide pour le procédé HDH+. Maillage (gauche) et trajectoire d'une gouttelette de diamètre égal au diamètre de coupure du séparateur (droite).

Sur la base de simulations numériques et des méthodes classiques de dimensionnement des cyclones, je préconise un dimensionnement de séparateur gaz-liquide-solide positionné en sortie de la zone réactionnelle du procédé. La démarche permet des améliorations significatives par rapport au dimensionnement préliminaire réalisé par les équipes de PDVSA-INTEVEP, dont j'ai pris connaissance au cours d'une visite de leur centre de recherche à Caracaz au début de l'année.

Activité industrielle : démarrage, analyse de données industrielles, et process book

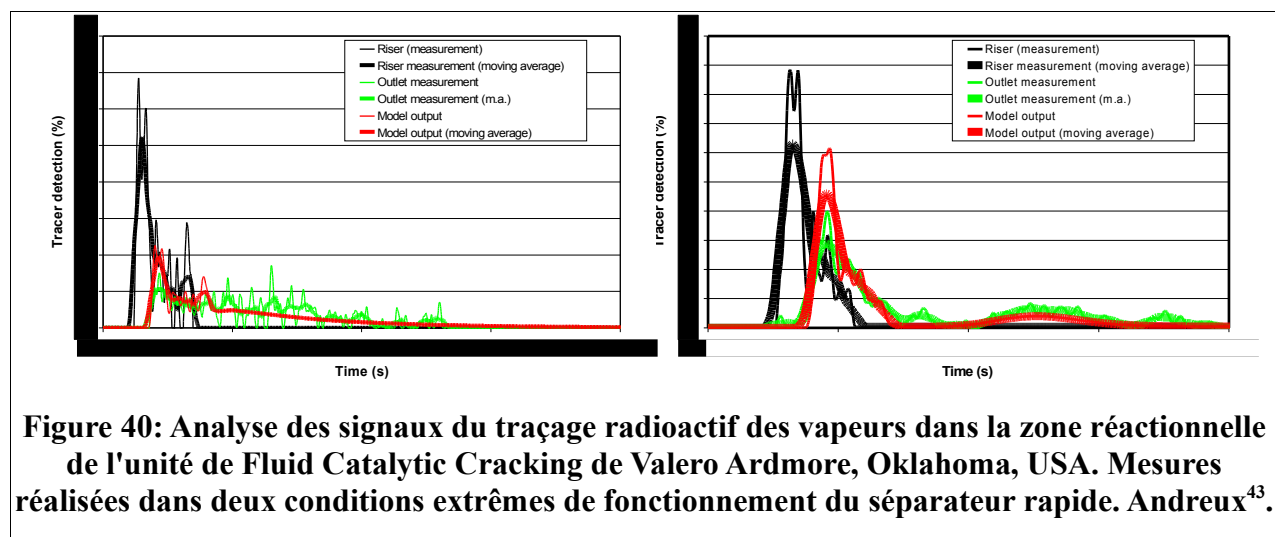
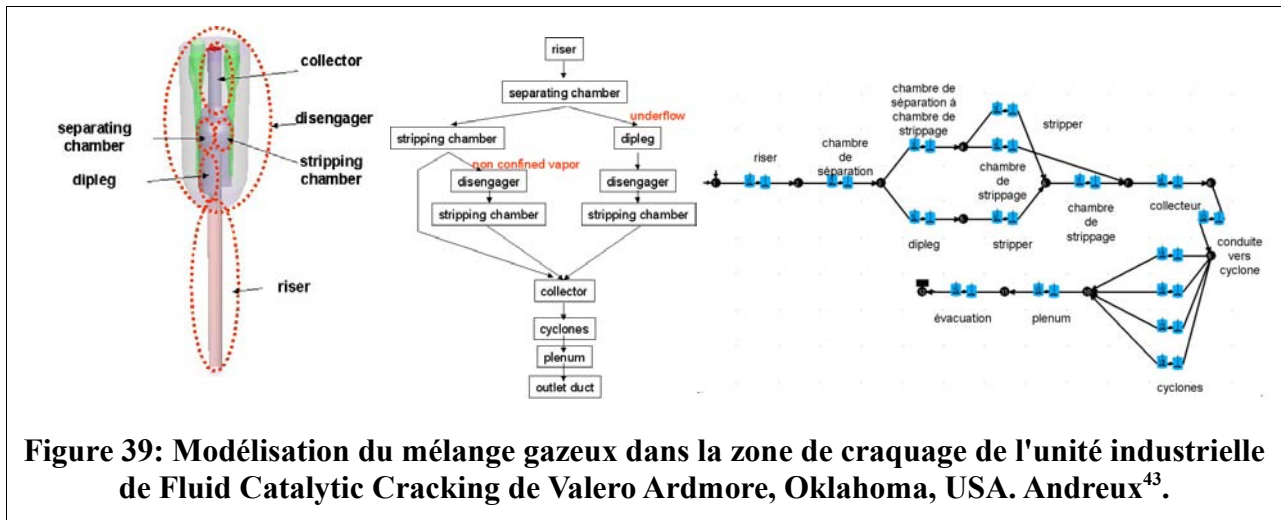
JE MAINTIENS MES ACTIVITÉS PUREMENT INDUSTRIELLES en réalisant en 2005 le suivi du redémarrage de l'unité de FCC de Valero à Ardmore, Oklahoma, USA (Figure 38). Le démarrage est fait suite à un revamp qui intègre un séparateur RS². Les données industrielles que je récupère sur site confirment son bon fonctionnement.

Fin 2006-début 2007, des traçages radioactifs des phases gaz et solide sont pratiqués par la Société Tracerco sur cette unité. L'objectif est de caractériser le séparateur RS² dans différentes conditions de fonctionnement. Je réalise ce travail, en utilisant les mesures brutes qui me sont transmises. Il consiste à (Figure 39) (i) représenter l'écoulement gaz-particules entre les points d'injection et d'échantillonnage des traceurs par un ensemble de réacteurs piston-dispersion en



Figure 38: Unité industrielle de FCC de Valero Ardmore.

cascade et en parallèle (ii) leur associer des temps de séjour et des nombres de Peclet estimés à partir des conditions opératoires et des résultats de la littérature (iii) optimiser les temps de séjour dans les différentes zones du séparateur et leur nombre de Peclet pour faire "coller" la courbe mesurée sur site à la courbe de réponse de la modélisation à un Dirac (iiii) corréler les paramètres obtenus du séparateur aux conditions opératoires de l'unité pour permettre à l'avenir une estimation rapide *a priori* ou *a posteriori* du système dans le cadre de missions futures d'AT (Figure 40). La réduction du temps de séjour recherchée avec ce séparateur est quantifiée. Elle est identique à celle attendue (Andreux, 2007).



Enfin, je réalise une mission de 3 semaines (à mi-temps) dans les locaux d'Axens à Rueil-Malmaison pour dimensionner un séparateur RS² pour le revamp d'une raffinerie d'Asie.

Activité d'enseignement

J'INTERVIENS DANS LES COURS MAGISTRAUX dispensés aux étudiants de l'ENSPM en 2007. La formation théorique que je dispense est intitulée "Utilisation de la simulation numérique pour le développement des procédés industriels". Elle est une sensibilisation aux potentiels et limites de la simulation numérique dans le cadre du développement et de l'Assistance Technique des procédés avec écoulements gaz-particules réactifs.

3.5 L'expérience CNRS (2007-2009)

3.5.1 Pourquoi un congé sans solde pour activité de recherche au CNRS ?

L'ANALYSE DU TRAÇAGE RADIOACTIF de l'unité de Valero Ardmores clôt un cycle : celui qui a débuté en 1998 avec ma thèse expérimentale et numérique sur la séparation rapide, qui a continué en 2003 avec mon intégration dans le projet FCC de l'IFP alors que son séparateur RS² entrait dans sa phase d'industrialisation, et qui s'est terminé avec mes participations à son optimisation puis aux missions d'AT le concernant.

J'ai alors le goût d'accentuer mes activités vers la recherche, de participer au développement de procédés autres que le FCC, tout en me rapprochant du milieu académique. En ce sens, être intégré au CNRS au sein d'une équipe universitaire ayant des liens étroits avec l'industrie est idéal. Je monte alors un projet de mise en disponibilité de l'IFP pour activités de recherche au CNRS, afin d'intégrer l'équipe du professeur Hémati, département RMS, au LGC, UMR 5503, pour une durée de 2 ans, en tant que chercheur contractuel du CNRS sur un poste de CDD dit "de haut niveau". Mon programme de recherche vise à développer et utiliser les outils expérimentaux, théoriques et numériques pour l'étude des écoulements gaz-particules réactifs.

Mon projet est validé par la DRH de l'IFP. Il est concrétisé grâce aux soutiens scientifiques et administratifs que lui apportent les professeurs Hémati, Simonin, et Chaouki, le directeur du LGC M. Joël Bertrand, le directeur scientifique adjoint du département ST2I et directeur de recherche M. Michel Trinité, la chargée de mission auprès de la directrice générale pour le département des sciences pour l'ingénieur et directrice de recherche Mme Béatrice Biscans, le représentant syndical SNTRS-CGT au CA du CNRS et ingénieur de recherche M. Daniel Steinmetz, et la directrice de la direction Procédé de l'IFP-Lyon Mme Sophie Jullian.

Je prends mes fonctions le 1er septembre 2007.

3.5.2 L'IFP comme partenaire scientifique historique

Encadrement de la recherche : écoulements gaz-particule denses verticaux descendants

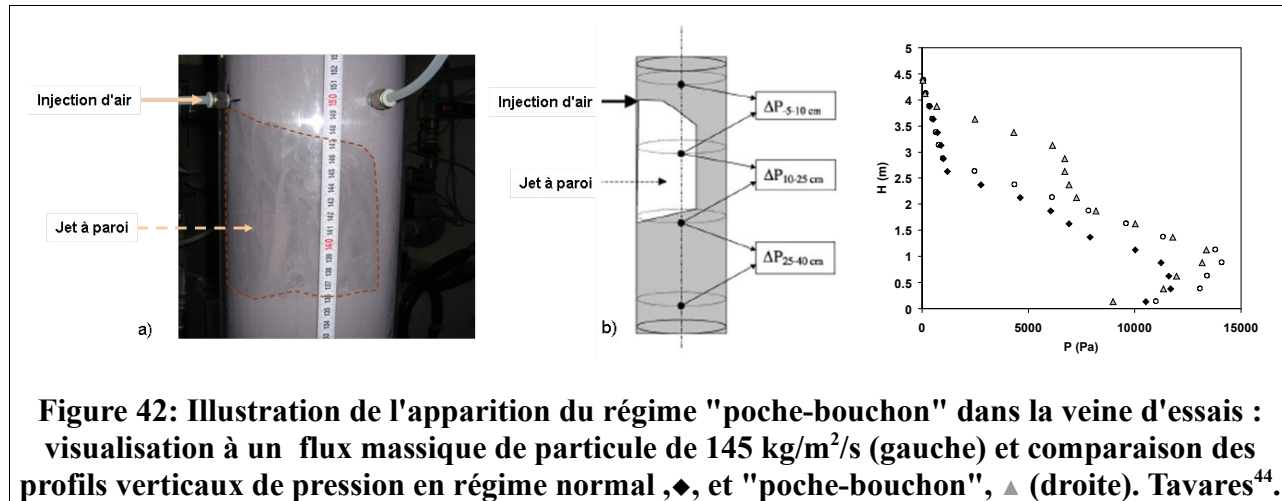
Je maintiens mes liens avec l'IFP.

Je réalise tout d'abord le co-encadrement scientifique de la thèse CIFRE de M. Tavares, localisée au LGC, dirigée par le professeur Hémati, alors que M. Gilles Ferschneider assure à l'IFP l'intérim du suivi industriel. L'objectif est de reproduire, dans la maquette froide du LGC hydrodynamiquement représentative (Figure 41), le comportement instable des écoulements gaz-particules denses verticaux descendants parfois observé dans les standpipe des unités de FCC.

Nous avons montré expérimentalement que dans les conditions de l'étude, une légère modification du débit de particules ou une légère introduction pariétale de gaz suffit à arrêter ou favoriser le mouvement descendant des particules. Les mesures de pressions différentielles locales montrent que la suspension subit localement des défluidisations et refluidisations pouvant conduire à la formation ou la disparition d'arches et à un écoulement du type "poche-bouchon" (Figure 42).



Figure 41: Veines d'essais du LGC pour l'étude des écoulements gaz-particules dense verticaux descendant (gauche) et des mécanismes de défluidisation (droite). Tavares⁴⁴.



En utilisant un lit fluidisé de laboratoire de 20 cm de diamètre et de 30 à 100 cm de hauteur (Figure 41), nous avons caractérisé les phénomènes de défluidisation dans des conditions élémentaires sans mouvement descendant. Bien que ce type de travaux aient très souvent été mis en œuvre par le passé, nous avons proposé une exploitation innovante de nos mesures et révélé deux faits nouveaux de première importance :

- un front de défluidisation se propage du bas vers le haut à une vitesse environ dix fois plus élevée qu'un autre se propageant de la surface du lit vers le bas (Figure 43) ;

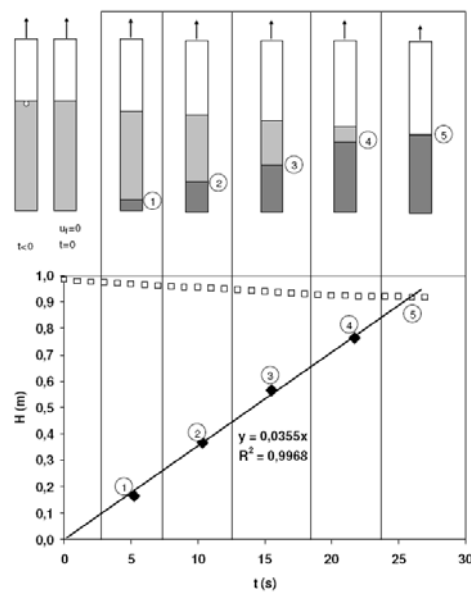


Figure 43: Vitesses de propagation des fronts de défluidisation descendant et ascendant lors de la défluidisation des particules de FCC. Tavares et al.⁴⁵.

- une suspension dense gaz-particules très aérée est composée d'une phase émulsion tassée faiblement aérée et d'une phase bulle. A l'opposé, une suspension faiblement aérée correspond à une phase émulsion moins tassée proportionnellement avec peu de bulles. Par conséquent, et paradoxalement, la défluidisation est donc plus rapide lorsque le lit fluidisé est initialement très aéré (Figure 44).

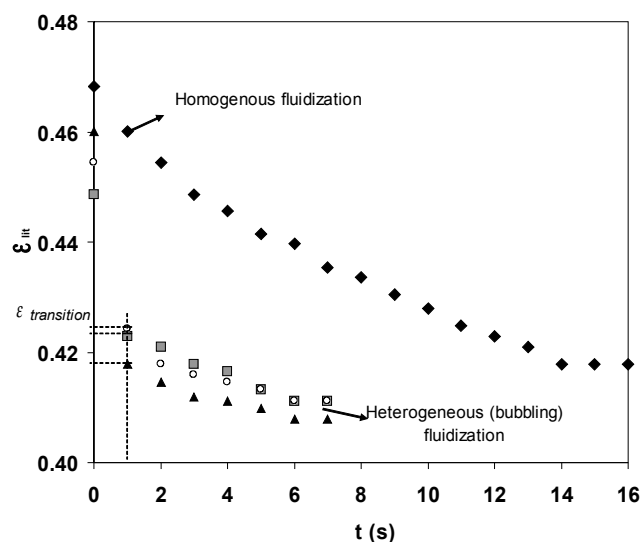


Figure 44: Porosité de la phase émulsion pendant la défluidisation en fonction de l'état initial homogène ou hétérogène du lit fluidisé. Tavares et al.⁴⁵

Nous avons proposé une modélisation corrélatrice de ces observations afin de reproduire la

porosité et la vitesse du gaz interstitiel de la phase émulsion en fonction la vitesse de fluidisation avant défluidisation :

$$\varepsilon_D = \varepsilon_{mf} + (\varepsilon_{mb} - \varepsilon_{mf}) e^{c \left(\frac{u_f - u_{mb}}{u_f - u_t} \right)}, u_{mb} < u_f \leq 8 u_{mb},$$

$$\frac{u_D^*}{u_{mf}} = 1.3 \left(\frac{u_f}{u_{mb}} \right)^{-0.3}, 6 \text{ mm/s} \leq u_f \leq 60 \text{ mm/s}$$

avec ε_D , ε_{mf} et ε_{mb} respectivement la porosité de la phase émulsion, au minimum de fluidisation et au minimum de bullage, u_D , u_{mf} et u_{mb} respectivement la vitesse superficielle du gaz à travers l'émulsion, au minimum de fluidisation et au minimum de bullage. La Figure 45 présente la comparaison entre nos résultats expérimentaux et les corrélations.

Ces travaux ont fait l'objet de deux communications en congrès avec actes (Tavares et al.^{45,46}).

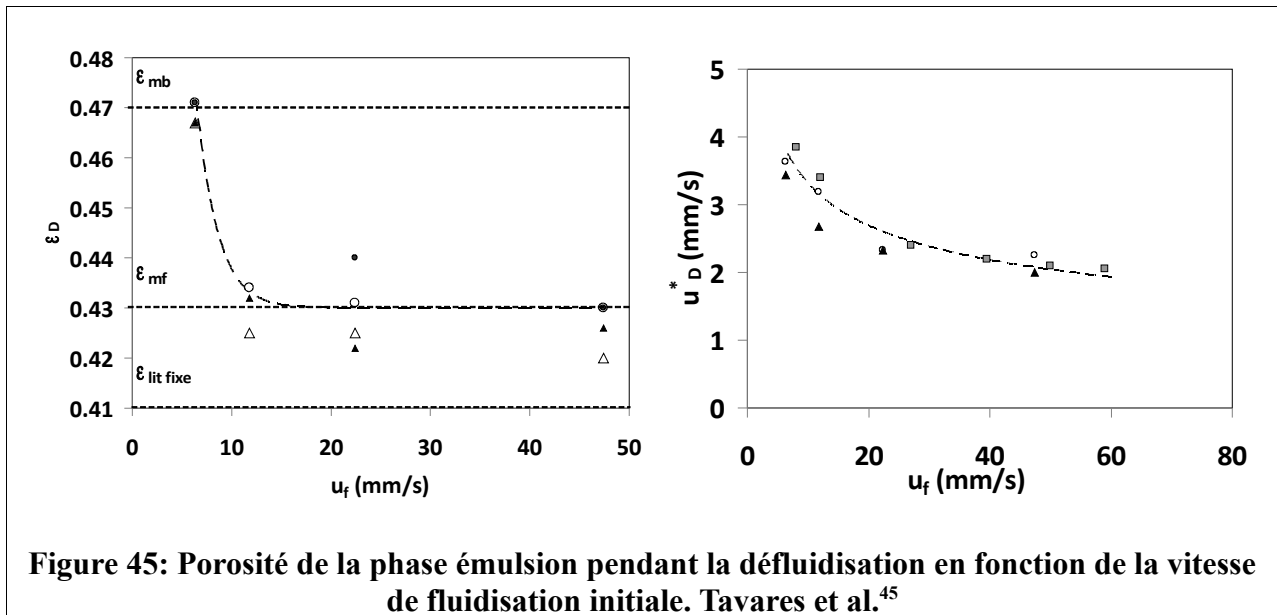


Figure 45: Porosité de la phase émulsion pendant la défluidisation en fonction de la vitesse de fluidisation initiale. Tavares et al.⁴⁵

Activités de recherche : écoulements gaz-particules denses verticaux descendants

SIMULTANÉMENT, JE DÉVELOPPE UNE MODÉLISATION GÉNÉRALE des écoulements gaz-particules verticaux denses, directement applicable aux écoulements rencontrés dans le procédé de FCC (jambe de retour de cyclones, puits de soutirage, standpipe). Elle fait l'objet d'une publication dans AIChE Journal (Andreux et Hémati⁴⁷) et pourra permettre de compléter les approches corrélatives et locales mises en œuvre dans la thèse de M. Tavares.

Alors que les modèles de la littérature supposent que la suspension descendante est homogène, je propose de superposer les approches locale et semi-locale pour décrire l'écoulement hétérogène vertical préalablement discrétisé (Figure 46) :

- la porosité locale et les vitesses du gaz et des particules sont calculées en résolvant les équations

de transport des grandeurs suivantes sur l'ensemble du domaine de calcul : masse et quantité de mouvement du gaz et des particules, avec prise en compte des termes d'interaction avec la parois (frottement) et entre le gaz et les particules de la phase émulsion (traînée) ;

- la densité locale du gaz est calculée avec la loi des gaz parfait ;
- la vitesse locale de fluidisation est fournie par une corrélation dont le seul paramètre d'entrée est la porosité locale de la suspension ;
- la fraction volumique locale de la phase bulle est calculée par le bilan local de la masse du gaz, en supposant les bulles vides de particules et en fixant la porosité de la phase émulsion ;
- la vitesse du gaz dans la phase émulsion est obtenue en résolvant l'équation de transport de sa quantité de mouvement ;
- la vitesse locale des bulles est donnée par une corrélation classique des modèles de lits fluidisés, qui utilise la vitesse locale de fluidisation et un diamètre de bulle fixé.

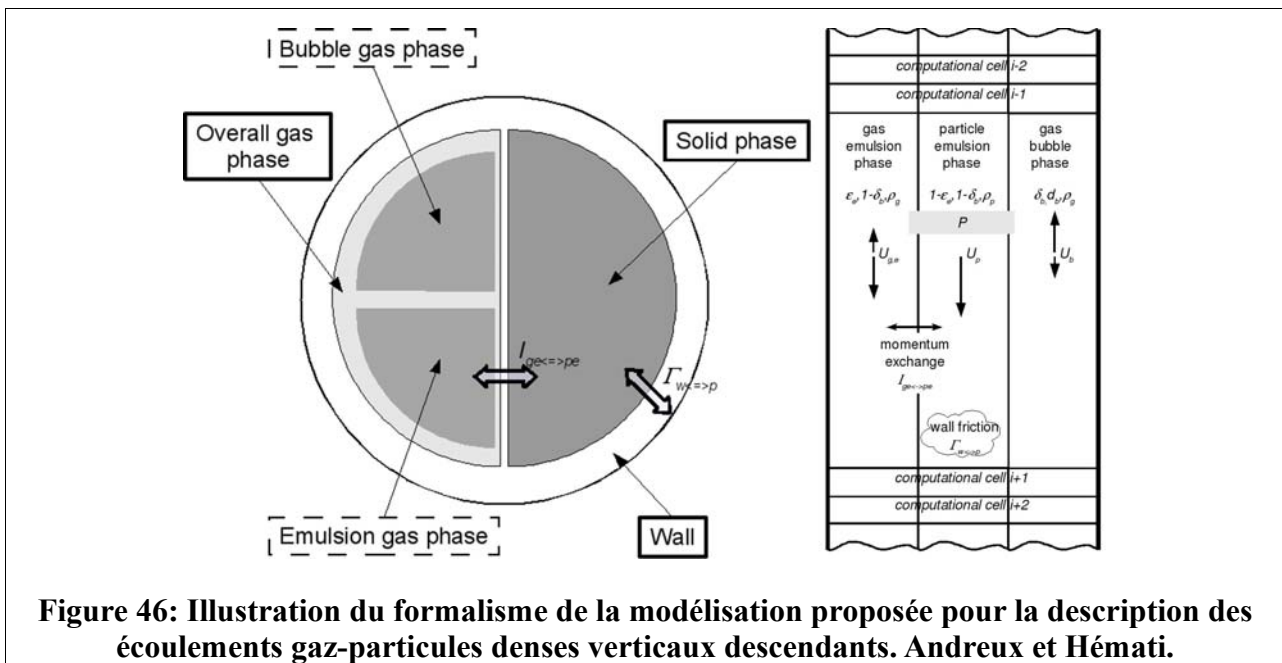


Figure 46: Illustration du formalisme de la modélisation proposée pour la description des écoulements gaz-particules denses verticaux descendants. Andreux et Hémati.

L'originalité de cette approche réside dans sa capacité à prédire la contribution ascendante et descendante du flux gazeux dans le régime homogène et hétérogène. Ceci est particulièrement important dans le cas des séparateurs (cyclone, ramshorn ou RS² par exemple), qui doivent parfois assurer l'étanchéité gaz entre le haut et la bas de leur dipleg pour éviter le mélange de flux gazeux entre deux zones de réacteurs. L'apparition de défluidisation locale de la suspension peut aussi être estimée.

Le modèle a été validé pour la prédiction des flux gazeux entraînés par les particules dans la jambe de retour d'un cyclone. Les résultats sont présentés sur la Figure 47. Les conditions opératoires et les données expérimentales sont celles de Karri et Knowlton⁴⁸. L'ordre de grandeur du flux de solide à partir duquel le flux net de gaz est descendant, environ 100 kg/m²/s, est bien prédit. Le modèle montre que dans ces conditions opératoires, la suspension est hétérogène, avec une phase bulle et une phase émulsion. Pour des flux inférieurs à 300 kg/m²/s, le mouvement de la phase bulle est vertical ascendant. Au-delà, les bulles sont totalement entraînées par les particules.

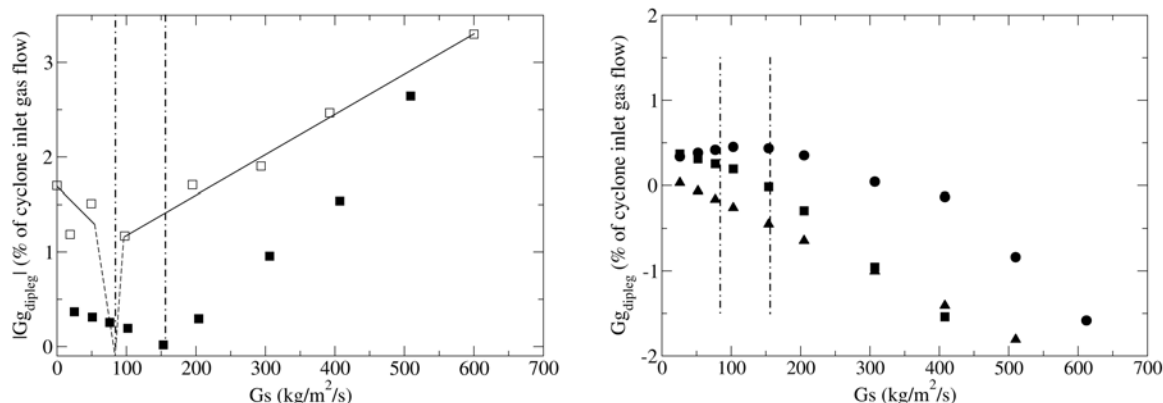


Figure 47: Valeurs absolues du flux massique net gazeux à travers la dipleg d'un cyclone en fonction du flux massique de solide (gauche) : □: données expérimentales de Karri and Knowlton; ■: modèle proposé. Contributions (droite) de la phase bulle (●) et de la phase émulsion (▲) au flux massique gazeux net (■). Toutes les valeurs de flux gazeux sont adimensionnées par le flux gaz en entrée du cyclone.

Activités d'enseignement

JE FORME LES INGÉNIEURS IFP Willi Nastoll et Cécile Plais à la simulation numérique des écoulements gaz-particules du procédé de FCC avec le code de calcul commercial Fluent 6.3, dans le cadre du programme de formation continue de l'INPT.

3.5.3 La conversion thermochimique de la biomasse en lits fluidisés : collaboration industrielle, brainstorming et projet ADEME

DÈS MON ARRIVÉE, LE PROFESSEUR HÉMATI M'ASSOCIE à ses travaux avec GDF-Suez qui portent sur la vapo-gazéification de la biomasse en lits fluidisés croisés.

Développement industriel

GDF-SUEZ DEMANDE UNE PRESTATION D'EXPERTISE DES RISQUES au professeur Hémati en octobre 2007, pour ses besoins liés à l'extrapolation de 2 MWe à 5,7 MWe d'une de ses installations de co-génération par gazéification de biomasse en lit fluidisé. C'est en la réalisant (Andreux et Hémati⁴) que mes liens avec Mlle Véronique Mambré, chef de projet à la Direction de la Recherche de GDF-Suez, et son équipe, principalement les ingénieurs MM. Bernard Marchand, Yilmaz Kara, et Olivier Guerini, se créent.

Début 2008, une deuxième prestation est demandée. L'objectif est de développer un module de simulation pour la prédiction qualitative et le pré-dimensionnement d'un procédé à lits fluidisés croisés de la conversion thermochimique de la biomasse. A partir des résultats expérimentaux de la littérature, le professeur Hémati et moi corrélons la composition des gaz issus de la pyrolyse et de la vapo-gazéifications aux conditions de température, pression partielle d'eau et temps de séjour dans les réacteurs de gazéification à lit fluidisé. Ces corrélations sont ensuite associées aux modèles

hydrodynamiques simples du gazéifieur et du combusteur, et à un modèle de la combustion du résidu de la gazéification. Le module couple ces modèles avec les règles classiques de dimensionnement des lits fluidisés. Cette approche simplifiée est complétée simultanément dans le cadre d'un projet de fin d'étude des étudiants de l'ENSIACET (Detournay et al.⁴⁹), initié par le professeur Hémati, et que je co-encadre. Les systèmes avals y sont ajoutés (cyclones, colonnes de lavage de gaz), et les corrélations prédisant la composition des gaz de pyrolyse et de vapo-gazéification sont améliorées sur la base de résultats expérimentaux complémentaires. Le module final sera utilisé par l'équipe de GDF-Suez pour le "reverse engineering" d'une unité industrielle de conversion thermochimique de la biomasse.

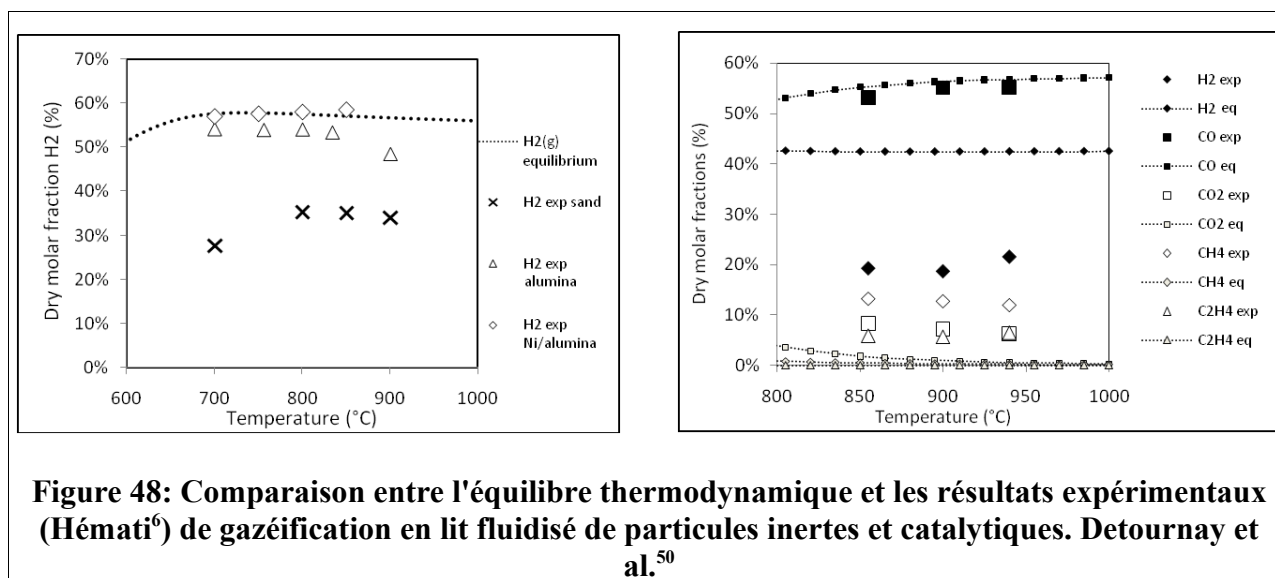
Dès la fin de l'année 2007, d'intenses échanges se font entre MM. Bernard Marchand et Yilmaz Kara d'une part, et le professeur Hémati et moi d'autre part pour définir les axes de recherches expérimentaux, théoriques et numériques à étudier dans le cadre du projet GAYA de GDF-Suez^a. En avril 2008, nos conclusions seront intégrés dans le projet BIOLIF en réponse à l'appel d'offre ANR-BioEnergies 2008 déposé par GDF-Suez. Non retenu par l'ANR, le financement du projet GAYA sera finalement accordé par l'ADEME en 2009 pour sept années, après ajout d'axes de recherche complémentaires et de nouveaux partenaires industriels et universitaires. Les thématiques du projet GAYA qui seront étudiées au LGC au cours de trois thèses et de deux post-docs, concernent (i) les cinétiques réactionnelles de la pyrolyse du bois, de la vapo-gazéification du résidu solide de la pyrolyse (ii) les transferts de masse, de quantité de mouvement et de chaleur (iii) l'établissement de règles de dimensionnement du procédé de vapo-gazéification de la biomasse (iiii) le développement des outils expérimentaux, théoriques et logiciels nécessaires.

Encadrement de la recherche

J'INITIE ET JE CO-ENCADRE AVEC LE PROFESSEUR HÉMATI LA THÈSE DE M. MARC DETOURNAY, intitulée "Etude de propriétés de particules de biomasse au cours de la réaction de gazéification en lit fluidisé. Caractérisation expérimentale et modélisation". La thèse débute en octobre 2008 et est financée sur les fonds propres de l'équipe. Elle constitue la première phase de l'étude menée par l'équipe du professeur Hémati dans GAYA.

Une première étude thermodynamique de la vapo-gazéification a mis en évidence l'effet catalytique de différents agents de fluidisation de la biomasse, en particulier les particules Ni/alumine (Detournay et al.⁵⁰). La Figure 48 présente quelques uns de nos résultats sur les rendements en gaz de synthèse produits par la vapo-gazéification de la biomasse à l'équilibre thermodynamique en présence des différents agents de fluidisation, catalytiques ou non.

^aLe projet GAYA, porté par GDF-Suez, a pour objectif de démontrer à l'échelle pré-industrielle la validité technique, économique, environnementale et sociétale de la filière de production des biocarburants gazeux par voie thermochimique. Le projet construira et exploitera, pendant 7 ans, une chaîne complète de démonstrateurs. Le projet, labellisé par TENERDIS, a permis de créer un partenariat complémentaire entre organismes de recherche (LGC, LSGC, RAPSODEE, UCCS), centres techniques (CEA, CIRAD, CTP, FCBA), exploitants de la filière ressource (UCCF) et industriels (GDF-Suez, Repotec).



3.5.4 La modélisation des écoulements gaz-particules réactifs

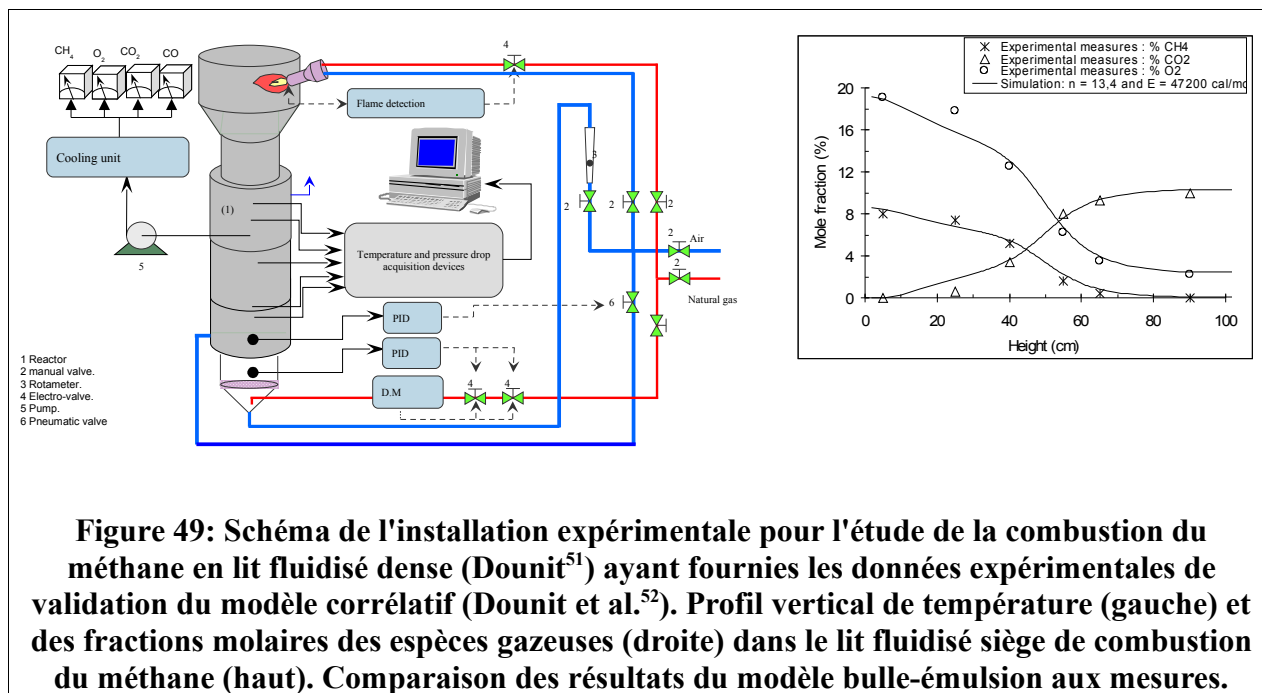
POUR PRÉPARER LES BESOINS en modélisation qui apparaîtront lors de la réalisation des actions de recherche prévues dans le projet GAYA, j'aborde la thématique de modélisation des écoulements gaz-particules réactifs. Il s'agit de jeter les bases des outils de simulation que l'équipe du professeur Hémati utilisera pour modéliser le couplage entre l'hydrodynamique et les réactions homogènes et hétérogènes du lit fluidisé dense de gazéification et du lit fluidisé transporté de combustion du résidu de la gazéification.

Activités de recherche : réaction homogène en lit fluidisé dense

POUR LE LIT FLUIDISÉ DENSE, Je m'initie au formalisme "génie des procédés"^a de la modélisation du couplage hydrodynamique/thermique/réaction en m'impliquant dans la modélisation de la combustion du méthane en lit fluidisé dense (Dounit et al. 2008). Ce travail est dans le prolongement d'une collaboration de recherche entre Gaz De France et l'équipe du Professeur Hémati, qui a débuté au milieu des années 90 avec en particulier la thèse de M. Saleh Dounit⁵¹.

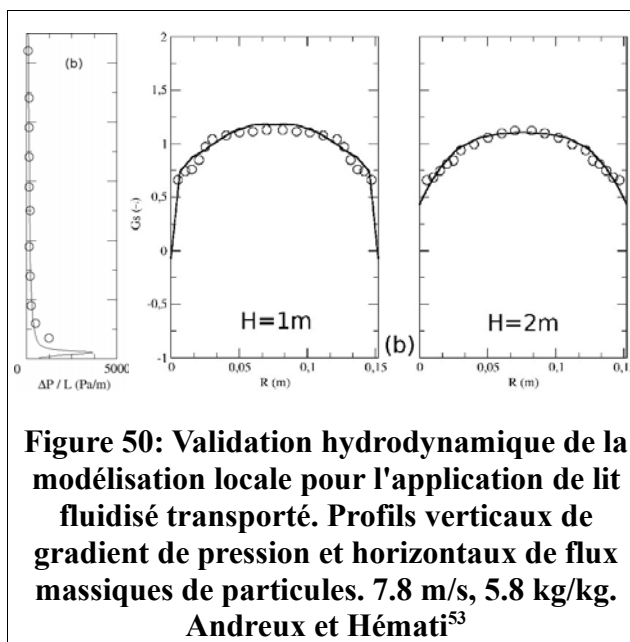
Les interactions hydrodynamiques et thermiques (convection gaz-particule, conduction et rayonnement écoulement-parois) dans les zones denses, diluées et de désengagement du lit fluidisé sont prises en compte. La cinétique réactionnelle est tirée de la littérature. Ce modèle, associé à l'expérimentation, a permis de mettre en évidence les effets des conditions opératoires sur l'amorçage de la réaction de combustion du gaz naturel dans le lit fluidisé, et par conséquent d'identifier les conditions d'opération du procédé pour lesquelles l'efficacité énergétique est maximale avec un risque d'explosion minimal. Ces travaux ont été publiés dans Chem. Eng. Journal (Dounit et al.⁵²).

^aQui consiste à décrire globalement un lit fluidisé comme une phase gaz-particules dense homogène et continue, appelée l'émulsion, qui cohabite avec une phase gaz éventuellement hétérogène, discontinue, appelée la phase bulle.



Activités de recherche : réaction hétérogène en lit fluidisé transporté

POUR LE LIT FLUIDISÉ TRANSPORTÉ, je modélise à l'aide du logiciel Fluent 6.3 le séchage de particules de carbonate de sodium monohydrate sous air chaud en écoulement vertical ascendant co-courant (Andreux et Hémati⁵³, Andreux et Hémati⁵⁴). Je montre ainsi la faisabilité de la simulation numérique d'une réaction hétérogène dans un système hydrodynamique similaire à celui concerné par le projet GAYA. Dans un premier temps, les prédictions hydrodynamiques données par la modélisation locale ont été validées sur un écoulement gaz-particules vertical ascendant co-courant non réactif étudié expérimentalement par Diguët⁵⁵ et représentatif de l'écoulement réactif. Dans un deuxième temps, les prédictions numériques de l'hydrodynamique du système réactif données par la modélisation locale permettent de poser les hypothèses simplificatrices d'un modèle monodirectionnel, rapide à mettre en œuvre, et prenant en compte la cinétique réactionnelle, les transferts de masse, de quantité de mouvement et de chaleur entre les phases. La Figure 51 présente les distributions de temps de séjour des phases entre l'entrée et la sortie du séchoir prédites par le modèle local. Dans un troisième temps, les prédictions de ce modèle monodimensionnel et du modèle local ont été confrontées aux données expérimentales de Diguët (Figure 52).



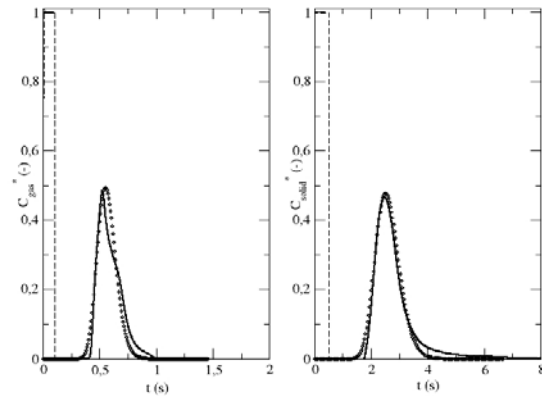


Figure 51: DTS gaz (gauche) et particule (droite) dans le lit fluidisé transporté de séchage de particules (120°C , 3.6 m.s^{-1} , $7.7 \text{ kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$). Comparaison modélisation locale (—) et modèle piston dispersion(O). $Pe_{\text{gas}} = 88$, $Pe_{\text{solid}}=67$, $\tau_{\text{gas}}=0.052 \text{ s}$, $\tau_{\text{solid}}=2.380 \text{ s}$. Andreux et Hémati⁵³

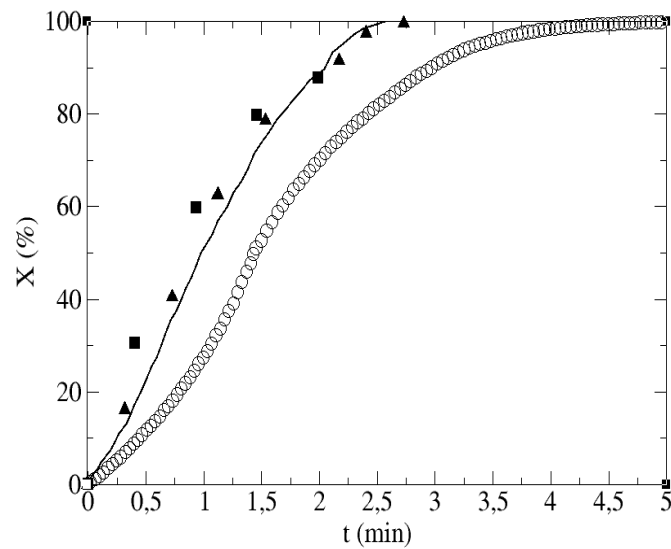


Figure 52: Conversion en fonction du temps de séchage. Prédictions des modèles mono-dimensionnel (—), local (O), et résultats expérimentaux (▲,■) de Diguët. Andreux et Hémati⁵³

3.5.5 Le développement des outils expérimentaux et numériques d'investigation

Encadrement de la recherche : technique cinématographique en lit fluidisé dense

ETABLIR DES MESURES PERTINENTES POUR LA VALIDATION DES MODÈLES LOCAUX implantés dans les code de calcul de simulation numérique des lits fluidisés gaz-particules denses et transportés est toujours une de mes priorités. D'autant plus qu'elles permettent de développer des modèles corrélatifs de l'hydrodynamique des systèmes étudiés, seuls réalistement utilisables pour dimensionner un procédé. Après avoir établi ce type de données expérimentales par le passé pour les applications de la séparation rapide et des lits fluidisés denses et transportés de poudres du type catalyseur de FCC, je le fais ici pour l'application de la vapo-gazéification de la biomasse.

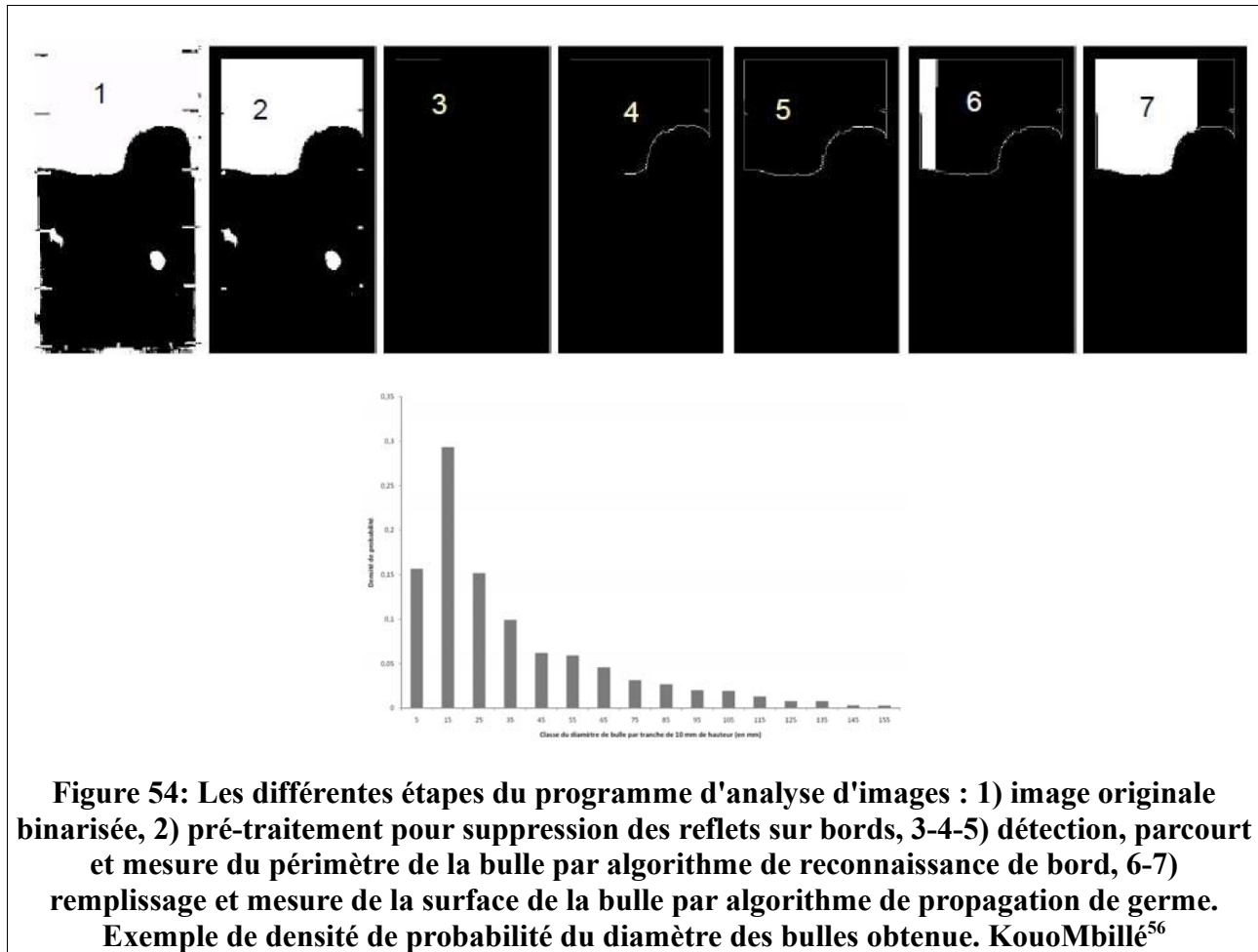
En 2008, je conçois et construis une bi-sonde optique dédiée aux lits fluidisés denses à température ambiante, pilote de celle que je veux développer pour la caractérisation de l'hydrodynamique locale du lit fluidisé de vapo-gazéification qui sera construit au LGC dans le cadre du projet GAYA. Elle est basée sur le principe de celles que j'ai utilisées durant mon post-doc, ce qui me permettra notamment d'utiliser le programme matlab de traitement de signal que j'avais développé à cette occasion en 2002. Il est alors nécessaire de valider la chaîne bi-sonde/traitement de signal dans les conditions hydrodynamiques de la vapo-gazéification^a, en mesurant simultanément les propriétés des structures hydrodynamiques locales (cordes et vitesses de bulles) avec la bi-sonde optique et par une autre technique de validation.

Pour cela, je conçois un lit fluidisé bi-dimensionnel transparent d'épaisseur réglable, construit par l'équipe technique du LGC, en particulier M. Alain Müller pour le travail du plexiglass (Figure 53). La caractérisation de la maquette et la mise au point de la technique expérimentale de validation basée sur la cinématographie, sont réalisées en 2009 au cours de stage de Master de M. Samuel Kouo Mbillé⁵⁶, que j'initie et que je co-encadre avec le professeur Hémati. L'utilisation de la bi-sonde optique et sa validation par la comparaison des mesures aux résultats obtenus par cette technique est actuellement en cours dans l'équipe du professeur Hémati. La Figure 54 résume le principe de la technique cinématographique qui permet d'établir la position, le périmètre, le diamètre équivalent et la vitesse de chaque bulle de gaz apparaissant dans le lit fluidisé bidimensionnel.



Figure 53: Lit fluidisé bi-dimensionnel transparent.

^aC'est-à-dire un lit fluidisé de particules d'environ 500 mm de diamètre et de densité supérieure à 2500 kg/m³, dans lequel "flottent" des morceaux de biomasse de quelques centimètres de diamètre et de densité inférieure à 800 kg/m³.



Activités de recherche : transfert de quantité de mouvement en écoulements gaz-particules semi-denses

ACCÉDER À UN OUTIL DE SIMULATION NUMÉRIQUE DES ÉCOULEMENTS est une priorité compte tenu de mes activités de recherche. Il doit cependant satisfaire certaines conditions : intégrer des modèles d'écoulements et des algorithmes de résolution sophistiqués^a, des schémas numériques précis^b, avoir de bonnes performances de parallélisation, tout en autorisant l'accès aux sources et la liberté d'utilisation.

En pratique, aucun des codes que j'ai utilisés ne regroupe toutes ces qualités, et chacun à ses atouts : Fluent, code commercial au prix prohibitif pour une petite structure de recherche, fait "à peu près tout à peu près bien", est supporté en continu par une équipe de développement, et en ce sens est l'outil idéal pour un industriel malgré un accès réduit aux sources ; Estet-Astrid (Neptune), code industrialo-universitaire, intègre une modélisation à la pointe des avancées scientifiques dans le domaine des écoulements gaz-particules grâce aux travaux du professeur Simonin, est dédié à une communauté limitée de spécialistes.

OpenFOAM®, présenté par ses développeurs comme un code de calcul numérique

^aModèles de turbulence ($k-\epsilon$, $R_k-\epsilon$, LES), modèles d'écoulements à phase dispersée (modèles granulaires, lagrangiens), modèles physiques (propriétés thermodynamiques, compressibilité), modèles réactifs (combustion) ; algorithme SIMPLE, PISO ; ...

^bSchéma centrés et/ou décentrés d'ordres élevés et TVD (à Variation Totale Décroissante), ...

permettant de simuler des écoulements complexes turbulents réactifs, de résoudre des problèmes de mécanique du solide, d'électromagnétisme, est OpenSources. Pour ces raisons, il est un outil potentiellement alternatif à tester. Le Tableau 5 résume les avantages et les inconvénients du code commercial Fluent, du code industriel Neptune, et du code OpenFOAM dans le contexte de la simulation des écoulements gaz-particules réactifs.

Code de calcul	Modèles gaz-particules	Accessibilité aux sources	Performance calcul parallèle	Investissement		Remarques
				Humain	Financier	
Fluent	+	-	+	-	++	Nécessite l'achat de licences
Neptune	++	+/-	+	+/-	+/-	Nécessite une collaboration avec l'IMFT
Open FOAM	+/-	++	+	++	--	Nécessite l'implantation des modèles

Tableau 5: Evaluation des trois codes envisagés selon les critères de choix énoncés.

Dans un premier temps, j'ai avec l'ingénieur de recherche du LGC Mlle Iréa Touche, testé la validité de la DNS implantée dans OpenFOAM® pour la prédiction des forces de traînée exercées par un fluide circulant à travers un réseau fixe de particules mono-diamètre et aléatoirement distribuées dans l'espace, à faible et moyen Reynolds (Figure 55). Les prédictions numériques sont comparées aux corrélations de Schiller-Naumann et Wen et Yu.

Un schéma Superbee est utilisé pour les termes convectifs. Un schéma centré d'ordre deux est utilisé pour les termes diffusifs. Une discrétisation au second ordre est utilisée pour le terme de gradient de pression. Le couplage pression-vitesse est résolu avec l'algorithme SIMPLE. L'équation de poisson pour le calcul du champ de pression est résolue avec la méthode du gradient conjugué pré-conditionné par factorisation incomplète de Cholesky. L'équation de quantité de mouvement est résolue par la méthode du gradient bi-conjugué pré-conditionné par factorisation incomplète LU. Les simulations sont réalisées en parallèles sur Grid'5000^a. Les résultats, tant dans les prédictions que dans les performances de parallélisation, sont encourageants (Figure 56).

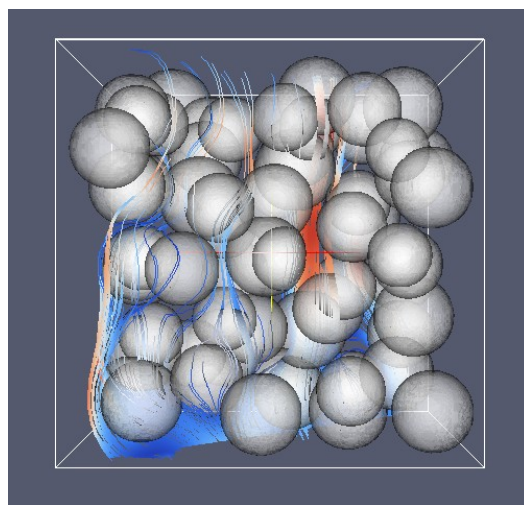


Figure 55: Domaine de calcul OpenFOAM sur Grid'5000 de l'écoulement d'un fluide à travers un réseau de 64 particules disposées aléatoirement avec une concentration volumique locale de 25%. Visualisation des lignes de courant à $Re=10$. Maillage composé de 2.10^6 mailles.

^aLe projet national GRID'5000 est une plate-forme expérimentale de recherche en informatique, constituée d'une grille de calcul de 5000 PC connectés via un réseau haut-débit une dizaine de grappes de PC.

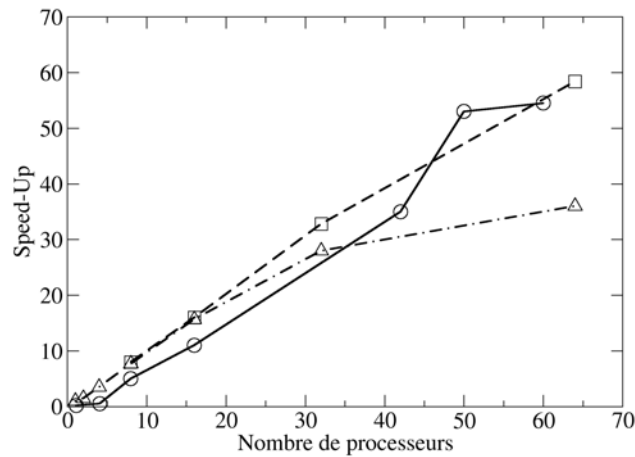


Figure 56: Performances de parallélisation : Simulation Fluent 6.3 d'écoulements gaz-particules sur Cluster Linux InfiniBand⁴⁰ (Δ), Simulation Neptune d'écoulements de canal bouillonnant sur Tantale⁵⁷ (□), Simulation OpenFOAM d'écoulements monophasiques sur Aladdin-Grid'5000⁵⁸ (○).

Activités de recherche : développement d'un outil numérique pour la simulation des écoulements gaz-particules

Dans un deuxième temps, j'y ai implanté, toujours avec Mlle Iréa Touche, les modèles granulaires et les techniques numériques de résolution associées, de telle sorte que la modélisation complète existante dans Fluent 6.3 soit disponible dans une version personnelle d'OpenFOAM®. La validation complète du code dans les régimes d'écoulements gaz-particules dilués, semi-denses et denses, la détermination des performances de la parallélisation, sont une de mes perspectives de recherche.

4 Conclusions

Cette partie a résumé le parcours professionnel que j'ai eu ces onze dernières années. Le lecteur connaît maintenant le réseau de collaborations universitaires et industrielles auxquels j'appartiens et mes partenaires potentiels pour la réalisation du programme de recherche que je me propose de réaliser. Celui-ci, présenté dans la partie suivante, s'appuiera sur mes compétences dans les domaines suivants :

- conception et mise au point de maquettes expérimentales ;
- conception et mise au point de techniques expérimentales de caractérisation de l'hydrodynamique : bi-sondes optiques, pressions différentielles, traçage de phases continues et de particules ;
- modélisation des mécanismes de transferts à l'échelle laboratoire et industrielle suivant les approches globales et semi-globales propre au Génie des Procédés que sont les modèles corrélatifs et les modèles piston-dispersion et bulle émulsion ;
- modélisation des mécanismes de transferts à l'échelle locale suivant le formalisme eulérien propre à la modélisation RANS (Reynolds Average Navier-Stokes) implantés dans les codes de calcul des écoulements gaz-particules tridimensionnels instationnaires aux échelles laboratoire et industrielle ;
- maîtrise des règles de dimensionnement des réacteurs à lits fluidisés gaz-particules.

Partie 3 : Perspectives de recherche

1 Introduction : quelle recherche, pour quelles applications et avec quels outils ?

MON PROJET DE RECHERCHE concerne le développement des procédés des nouvelles technologies de l'énergie dédiés à la conversion thermochimique de la biomasse en réacteur gaz-particules. Cette thématique est aujourd'hui une priorité nationale et internationale visant à réduire les émissions de gaz à effet de serre liées à l'activité humaine, et à garantir la sécurité des approvisionnements énergétiques. L'orientation de la recherche vers les Bioénergies (Gagnepain⁵⁹) est un des moyens mis en œuvre pour y répondre^a. Dans ce contexte, le rapport Chambolle⁶⁰ montre clairement la volonté politique de positionner la France comme co-leader sur le développement de ce qu'il dénomme les technologies de "discontinuité" et de "ruptures" nécessaires. Les deux grands projets nationaux sur la conversion de la biomasse par la voie thermochimique aujourd'hui financés par l'ADEME que sont BioTFuel et GAYA illustrent l'importance que représente la technologie des écoulements gaz-particules réactifs.

Cependant, la substitution des énergies fossiles par la seule utilisation de la biomasse est un miroir aux alouettes. A terme, c'est-à-dire d'ici quelques décennies, il est vraisemblable que l'approvisionnement en énergie devra être assuré par les technologies de stockage des énergies solaire, éolienne et marines (hydrolienne, marémotrice, maréthermique et osmotique), et que l'utilisation des hydrocarbures issus de la conversion de la biomasse, et plus généralement des matières carbonées, soit alors réservée à la chimie des polymères et médicale.

Les véritables enjeux auxquels nous, scientifiques, sommes donc confrontés, sont principalement liés au développement d'outils expérimentaux, théoriques et numériques, dédiés aujourd'hui aux procédés des Nouvelles Technologies de l'Energie, et transposables demain aux procédés de la chimie verte. Pour cela, une approche transverse et pluridisciplinaire des procédés en écoulements gaz-particules réactifs est impérative : hydrodynamiques locales et globales des réacteurs, mise en forme de catalyseur, industrialisation, tous ces aspects doivent être associés simultanément durant la phase de développement du procédé, comme l'illustrent les projets nationaux que j'ai évoqués plus haut et qui réunissent différents centres de recherche EPST, EPIC, EPA, universitaires et industriels.

A l'image de ces projets nationaux, mon projet de recherche veut réunir les compétences de différents domaines pour étudier, modéliser et dimensionner les réacteurs à écoulements gaz-particules réactifs des procédés de conversion thermochimique de la biomasse. Les thématiques abordées sont :

- les transferts de masse, de quantité de mouvement et de chaleur en écoulements gaz-particules réactifs à haute température et/ou haute pression ;
- les propriétés de la biomasse à convertir et leurs effets : propriétés géométriques, mécaniques, thermiques et composition ;
- la mise en forme de catalyseurs particuliers ayant des propriétés géométriques, mécaniques et thermiques compatibles avec les conditions de fonctionnement des procédés ;
- l'extrapolation de l'échelle du laboratoire à l'échelle industrielle ;
- le dimensionnement et la prédiction du comportement des réacteurs industriels.

^aLe rapport Gagnepain cite par ailleurs le programme Hydrogène et pile à combustible PAN-H, l'électricité solaire photovoltaïque, le programme PREBAT "Maîtrise de l'énergie dans le bâtiment", la séparation et le stockage du CO₂.

Les outils que je veux utiliser ont des niveaux de maturité différents. Ces outils sont :

- les outils expérimentaux de caractérisation des propriétés des espèces en présence dans le réacteur : systèmes de prélèvement et d'échantillonnage, tests de résistances mécaniques ;
- les outils expérimentaux de caractérisation des transferts de masse, de quantité de mouvement et de chaleur : maquettes élémentaires, pilotes chauds, techniques non-intrusives de tomographie et de traçage radioactif de particules ;
- les outils d'expérimentation numérique pour comprendre et modéliser les phénomènes de transferts au sein et entre les fluides et les particules du réacteur, dans des conditions que les outils expérimentaux peuvent difficilement traiter : Direct Numerical Simulation (DNS), Direct Simulation Monte Carlo (DSMC), Discrete Element Method (DEM), Finite Element Method/Analysis (FEM/FEA), Fluid-Structure Interaction (FSI) ;
- les outils de simulation des écoulements multiphasiques tridimensionnels instationnaires à grande échelle, utilisés en tant qu'aide au dimensionnement, et permettant de représenter certains comportements de réacteurs industriels : Reynolds Average Navier-Stokes (RANS) et théorie cinétique des milieux granulaires (KTGM) ;
- les outils de simulations globaux et semi-globaux permettant de faire du dimensionnement, du "reverse engineering", de l'assistance technique et du troubleshooting dans des délais compatibles avec les échelles de temps industrielles : piston-dispersion, bulle-émulsion, ...

Certains de ces outils nécessiteront des développements poussés, en collaboration avec des partenaires universitaires et industriels experts (IFP-Lyon, LGC, IMFT). D'autres sont aujourd'hui matures, prêts à être utilisés moyennant parfois quelques adaptations au contexte de mon programme de recherche.

Les outils et méthodologies développés seront à terme transposables au développement des procédés à écoulements gaz-particules réactifs suivants :

- procédé de gazéification en lit transporté à haute température ($>1200^{\circ}\text{C}$) et haute pression. L'application industrielle est la production de gaz de synthèse à haute qualité pour utilisation comme base dans les procédés de synthèses de carburants liquides (Fischer-Tropsch) ;
- procédé de gazéification en lit fluidisé dense à 800°C et pression proche de la pression atmosphérique, avec combustion du résidu solide de la réaction en lit fluidisé transporté. L'application industrielle est la production de gaz de synthèse pour utilisation directe ou méthanation ;
- procédé de torréfaction en lit fluidisé. L'application industrielle est le traitement de la biomasse pour faciliter son stockage, son transport, son broyage, avant sa combustion ou sa gazéification ;
- captage de CO_2 par boucle chimique (chemical looping) dans les procédés de combustion de gaz (gaz naturel), de liquide (coupe pétrolière) et de solide (charbon, petcoke^a, déchets) ;

Les écoulements gaz-particules considérés dans mon programme de recherche seront : les lits fluidisés denses, les lits fluidisés transportés, les lits fluidisés à jets, les lits entraînés, le transport pneumatique, et les fours tournants.

^aCarbone solide dérivé des procédés du raffinage pétrolier.

2 Problématiques scientifiques et actions de recherche

2.1 L'hydrodynamique locale et globale des réacteurs

2.1.1 Présentation de la problématique

LES RÉACTEURS à lits fluidisés dédiés à la conversion thermochimique de la biomasse présentent plusieurs spécificités :

- la variabilité des particules de biomasse (diamètre, forme, densité, état de surface, résistance mécanique, composition CH_xO_y , ...), dont dépendent les comportements hydrodynamiques, thermiques et réactionnels des lits fluidisés qui les traitent ;
- les transferts de masse liés à la transformation de la biomasse. La quasi totalité des particules solides sont converties en gaz (environ 1 m^3 de gaz produit pour 10^{-2} m^3 de particules converties). Il s'ensuit une expansion volumique gazeuse très importante, qui induit sa propre hydrodynamique, quelle que soit la quantité de gaz injectée en surplus dans le réacteur ;
- l'utilisation éventuelle de catalyseur solide pour éliminer *in situ* les espèces condensables, les "goudrons", pour obtenir un gaz de synthèse "propre" valorisable par les procédés de méthanation ou de Fisher-Tropsch. Compte tenu des conditions de fonctionnement des réacteurs (temps de séjour important, mélange intense, vitesses locales élevées), les contraintes mécaniques exercées sur le catalyseur seront importantes, et les mécanismes d'attrition et d'élutriation l'endommageant seront favorisés ;
- la prédominance des réactions hétérogènes ou homogènes en fonction de la biomasse. Une biomasse à forte teneur en carbone verra les réactions hétérogènes $\text{C} + \text{H}_2\text{O} = \text{CO} + \text{H}_2$ et $\text{C} + \text{CO}_2 = 2\text{CO}$ (Boudouard) prédominer : les coefficients de transferts gaz-particules et les temps de séjours gaz et particules contrôleront alors le réacteur. A faible teneur en carbone, les réactions homogènes $\text{CO}_2 + \text{H}_2 = \text{CO} + \text{H}_2\text{O}$ et $\text{C} + 2\text{H}_2 = \text{CH}_4$ prédomineront : les coefficients de transferts gaz-gaz et les temps de séjour gaz contrôleront alors le réacteur ;
- les conditions de fonctionnement sévères en terme de températures et éventuellement de pressions, qui conduisent aux difficultés liées à l'extrapolation de l'échelle laboratoire à industrielle.

Les techniques expérimentales, théoriques et numériques doivent être adaptées, développées, et mises en œuvre pour étudier ces spécificités et développer les procédés de conversion thermochimique de la biomasse.

2.1.2 Etude expérimentale de la manutention des particules de biomasse par techniques radioactives non-intrusives : tomographie et traçage de particules par désintégration γ , émission positronique, et rayon X

2.1.2.1 Pourquoi et comment ?

UNE BONNE PARTIE DES INTERROGATIONS lors de la caractérisation expérimentale du comportement hydrodynamique de la biomasse est liée à sa taille caractéristique, dont l'ordre de grandeur est généralement au moins celui des techniques expérimentales "classiques" que l'on peut mettre en œuvre :

- les bi-sondes optiques peuvent mesurer les porosités et les cordes et vitesses des structures hydrodynamiques locales en lits fluidisés. Mais quelle est la signification physique du signal obtenu avec la sonde dont le volume de mesure est de l'ordre du mm^3 , lorsque celle-ci est plongée dans un amas de particules de quelques cm^3 de volume en mouvement ?
- les mesures de pressions différentielles sont généralement un excellent critère de fluidisabilité des particules. Mais quelle est l'interprétation physique de la mesure obtenue avec un écoulement gazeux traversant un amas de particules de biomasse dont les dimensions sont d'un ordre de grandeur au dessus de celles des piquages de pressions ? Ces mesures de pressions différentielles sont-elles dans ce cas encore une représentation fiable de la capacité de manutention des particules ?
- les techniques de traçage et prélèvement de particules permettent généralement d'établir des informations pertinentes quant au mélange et la ségrégation des particules en lit fluidisé. Mais, compte tenue de la faible quantité de particules de biomasse dans les maquettes expérimentales, quel niveau de confiance peut-on attendre des échantillonnages pratiqués pour analyse *ex-situ* ?

Les techniques radioactives non-intrusives répondent à ces interrogations. Elles seront mises en œuvre pour caractériser et modéliser les mécanismes de transport, de mélange et de ségrégation de la biomasse.

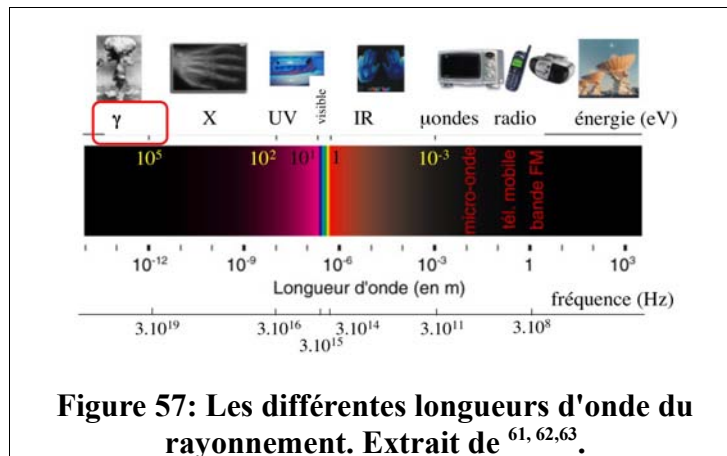
La tomographie (γ , X) permettra d'accéder aux champs de concentrations locales moyennes en particules. Si le type de rayonnement, les propriétés des phases, et les dimensions du réacteur le permettent, la résolution temporelle de la tomographie permettra aussi d'établir les champs instantanés. Dans ce cas, et si la résolution spatiale le permet, il sera alors possible d'accéder aux dimensions et vitesses des structures hydrodynamiques locales, telles que les bulles en lit fluidisé. Il sera aussi possible, *a priori*, de visualiser en continu les particules de biomasse, et ainsi d'accéder à leurs dimensions, leurs vitesses, et leurs distributions spatiales.

Le traçage radioactif (PEPT, RPT) permettra d'établir les trajectoire d'une particule, parfois de plusieurs, dans le réacteur, puis la cartographie des densités de probabilité de l'état des particules (position et vitesse).

2.1.2.2 Principes généraux du traçage de particule par émission de rayon γ

Les différents types de traçage par émission de rayon γ

Du fait de leur fort pouvoir pénétrant, les photons γ (Figure 57) permettent de suivre en milieu opaque des particules dont la mise en mouvement constant nécessite un faible temps de réponse de la technique de mesure (de l'ordre de la milliseconde). L'émission positronique et l'émission mono-photonique à partir d'un isotope radioactif sont les deux modes d'émission que je décris ici.



Traçage par émission mono-photonique : les sources

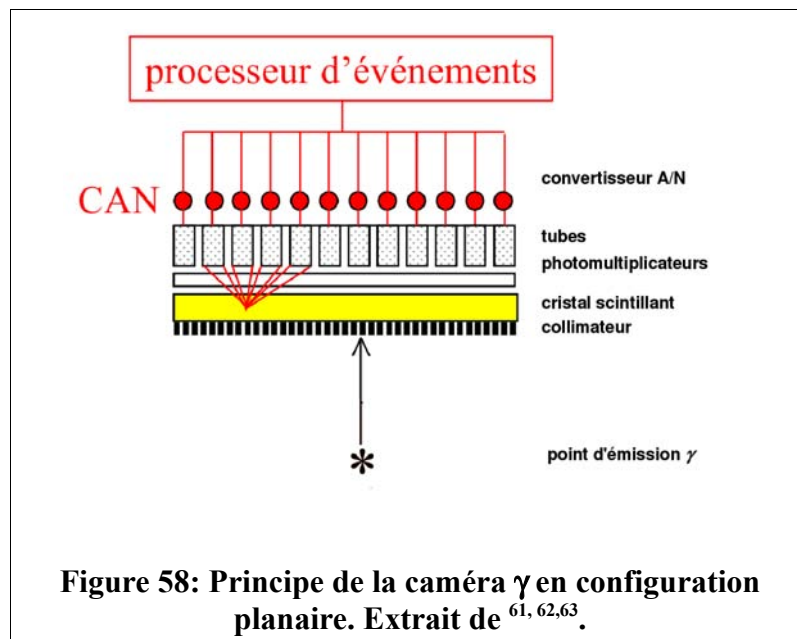
Les isotopes radioactifs couramment utilisés sont : le Technétium 99m (énergie = 140 keV, demi-vie = 6 heures), l'Iode 123 (énergie = 159 keV, demi-vie = 13 heures), le Thallium 201 (énergie = 71 keV, demi-vie = 73 heures). Ces isotopes sont produits en cyclotrons par bombardement de noyaux stables par des protons ou des deutérons ou par fission nucléaire. Leur période radioactive (quelques heures) est bien plus longue que celle des émetteurs de positrons. Les gamma-caméra, plus simples techniquement et moins coûteuses que les caméras utilisées pour la mesure de l'émission positronique, sont très répandues en milieu hospitalier (cardiologie, scintigraphie osseuse, ...).

Traçage par émission mono-photonique : le principe

L'isotope radioactif se désintègre en émettant un simple photon dans une direction aléatoire, détecté à l'aide de γ -caméras avec collimateurs (Figure 58), positionnées autour de, ou face à, la zone à étudier. On parle respectivement de tomographie d'émission mono photonique (TEMP) ou de scintigraphie planaire.

L'émission d'un photon unique rend plus délicate la localisation du traceur.

La résolution spatiale est de l'ordre du diamètre du collimateur, soit 10 mm.



Traçage par émission positronique : les sources

Les isotopes radioactifs couramment utilisés sont : le F18 (énergie = 635 keV, demi-vie = 110 minutes), le O15 (énergie = 1713 keV, demi-vie = 2 minutes), le N13 (énergie = 1190 keV, demi-vie = 10 minutes), le C11 (énergie = 981 keV, demi-vie = 20 minutes). Ces isotopes sont produits en cyclotrons par bombardement de noyaux stables par des protons ou des deutérons. La faible demi-vie implique la production des sources à proximité de leur utilisation.

Traçage par émission positronique : le principe

L'isotope radioactif se désintègre en émettant un positron qui va s'annihiler avec un électron du milieu, après un très court parcours (en général inférieur à 1 mm), en produisant deux photons gamma de 511 keV qui partent en direction opposée à 0.2° près (Figure 59). Une ou plusieurs couronnes de capteurs situées autour de la région étudiée détectent les deux photons d'annihilation en coïncidence (c'est-à-dire ceux qui arrivent en même temps) et permettent d'identifier la ligne sur laquelle se trouve l'émission des photons (Figure 60). Un système informatique reconstitue ensuite à l'aide d'un algorithme de reconstruction les images de la répartition du traceur dans la zone étudiée sous la forme d'une image 2D ou d'un objet 3D. Les images 2D sont obtenues en positionnant des septa interplan en plomb entre les différentes couronnes de détecteurs pour arrêter les coïncidences qui ne correspondent pas au plan étudié dues à la diffusion des photons. La sensibilité en mode 3D est plus élevée, mais le taux d'événements parasites est plus important^{64, 65, 66}, ce qui tend à diminuer la résolution spatiale.

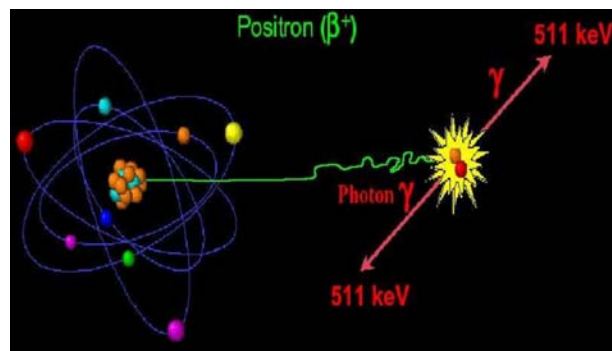


Figure 59: Illustration de l'émission d'une paire de photons γ suite à l'annihilation d'un positron avec un électron.

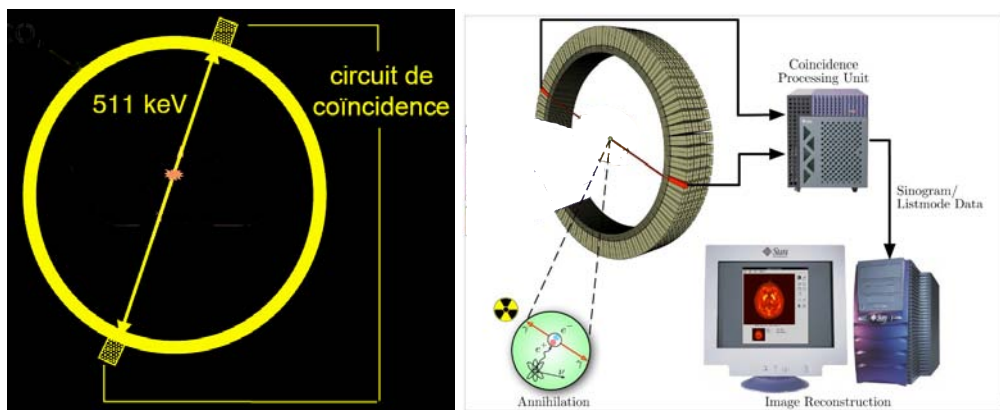


Figure 60: Principe de la détection 3D des rayons γ issus de l'émission positronique. Extrait de ^{61, 62, 63}.

Conclusions

Compte tenu de la qualité de la résolution spatiale, des difficultés technologiques et du coût liés à l'utilisation de capteurs de détection des photons γ , il semble que l'utilisation de caméra- γ planaire soit la plus appropriée à mes recherches. Quatre verrous sont identifiés :

- verrou technique : la conception et la réalisation de l'ensemble du système ;
- verrou scientifique : la réalisation du traitement du signal lié à la détection de photon γ ;
- verrou technique : les sources positroniques ont une demi-vie de quelques heures et doivent donc être fabriquées à proximité du lieu d'implantation de la technique de mesure ;
- verrou financier : le coût *a priori* très élevé du développement de la technique de mesure.

2.1.3 Etude numérique de la manutention des particules de biomasse par "Discrete Element Method"

J'AI ÉCRIT UN PEU PLUS HAUT que la taille des particules de biomasse est, sous certains aspects, un handicap pour les études expérimentales. Elle peut devenir un avantage pour l'expérimentation numérique car elle conduit à un faible nombre de particules dans le système à étudier : certaines approches numériques, lourdes lorsqu'appliquées aux écoulements granulaires de particules sub-millimétriques, deviennent ici envisageables (Tableau 6). C'est en particulier le cas pour les outils d'expérimentation numérique de DEM (Discrete Element Method).

L'objectif est d'utiliser et de développer la DEM pour étudier le comportement hydrodynamique des particules de biomasse lors des étapes successives du procédé : traitement amont (séchage, torréfaction), transport, et conversion thermochimique. Des modèles corrélatifs seront ensuite proposés afin de reproduire les effets des conditions opératoires (géométrie, formes et dimensions de la biomasse, propriétés du gaz vecteur éventuellement ajouté dans le système, ...).

Tableau 6: Ordre de grandeur du nombre de particules dans un lit fluidisé dense et un lit fluidisé transporté. Comparaison entre un système de particules de sable et un système de particules de biomasse.

Réacteur	Dimensions & Volume de réacteur	Concentration volumique en particules	Diamètre & Densité de particules	Nombres de particules
Lit fluidisé dense	D, H = 0.30, 1.00 m 0.070 m ³	40,00%	0.50 mm (sable)	10 ⁹
			30 mm (bois)	5 10 ⁴
Lit fluidisé transporté	D, H = 0.10, 10.00 m 0.079 m ³	2,00%	0.50 mm (sable)	5 10 ⁷
			30 mm (bois)	2.5 10 ³

2.1.4 Etude expérimentale des effets du transfert de masse particule-gaz

2.1.4.1 Objectif

L'OBJECTIF EST D'ÉTUDIER L'HYDRODYNAMIQUE des écoulements dont le gaz vecteur est apporté par la transformation des particules, assimilable à une sublimation, et non par le milieu extérieur. Des interrogations légitimes existent quant à la validité de l'utilisation directe des modèles de réacteurs dont les coefficients ont été obtenus en condition d'alimentation externe du gaz vecteur. Cette action de recherche adaptera les modèles classiques à ces conditions d'alimentations particulières. Pour cela, les flux gazeux résultants de la transformation des particules solides en gaz seront quantifiés.

Dans un premier temps, le principe, la méthodologie et les outils d'investigations seront mis au point en lit fluidisé dense. Ils seront ensuite transposés aux écoulements de transport

pneumatique, de fluidisation transportée et de four tournant.

2.1.4.2 Méthodologie

La Figure 61 illustre la mise en œuvre de cette étude expérimentale. L'étape de dévolatilisation de la biomasse sera simulée à température ambiante ou modérée par la sublimation rapide d'un corps solide pur tel que de la glace carbonique mise en forme et représentative de la taille de la biomasse, introduite en continu et en discontinu. Cette technique s'inspire des travaux de Bellgardt et Werther⁶⁷ pour la caractérisation du mélange de particules en lit fluidisé dense. La mise en œuvre d'un protocole expérimental de la littérature (Dounit et al.⁶⁸) permettra d'établir les profils radiaux de concentrations de CO₂ en phase gaz, à différentes élévations dans le lit fluidisé. Les porosités locales du lit, de la phase bulle et de la phase émulsion, ainsi que les vitesses et les diamètres locaux des bulles, seront mesurés simultanément à l'aide de capteurs de pressions différentielles et de bi-sondes optiques.

Les données hydrodynamiques locales seront couplées aux profils verticaux de concentration en CO₂, en considérant une injection continue de la glace carbonique, pour accéder au Taux de Transfert de Masse Gazeuse Bulle-Emulsion (TTMGBE) et au Taux de Transfert de Masse Gazeuse Particule-Emulsion par "Sublimation" (TTMGPE).

La manipulation mathématique du modèle de réacteur basé sur l'approche monodimensionnel hydrodynamique bulle-émulsion le permettant est la suivante :

- Equation de détermination du volume local du gaz dans la phase bulle par unité de volume du lit, $\phi_{g,b}$:

$$\phi_{g,b} = \delta_b \epsilon_b$$

avec δ_b le volume local de bulle par unité de lit et ϵ_b la porosité locale de la phase bulle. Ces deux grandeurs sont directement fournies par la bi-sonde optique (Andreux et al. 2005, Andreux et Chaouki, 2008) ;

- Equation de détermination du volume local du gaz dans la phase émulsion par unité de volume du lit, $\phi_{g,e}$:

$$\phi_{g,e} = (1 - \delta_b) \epsilon_e$$

avec δ_b le volume local de bulle par unité de lit et ϵ_e la porosité locale de la phase émulsion. Ces deux grandeurs sont directement fournies par la bi-sonde optique (Andreux et al. 2005, Andreux et Chaouki, 2008) ;

- Equation monodirectionnelle stationnaire de convection pure régissant le gaz de la phase bulle le long du lit fluidisé discrétisé :

$$\nabla \mathbf{u}_b \phi_{g,b} = TTMGBE(\mathbf{u}_b, d_b, \epsilon_b, \epsilon_e)$$

avec $\phi_{g,b}$ le volume local de gaz de la phase bulle par unité de volume du lit, $\mathbf{u}_b$ sa vitesse de convection mesurée avec la bi-sonde optique, TTMGBE le Taux de Transfert de Masse Gazeuse Bulle-Emulsion local ;

- Equation monodirectionnelle stationnaire de diffusion pure régissant le gaz de la phase émulsion le long du lit fluidisé discrétisé, en supposant que le transfert de masse particule-gaz se fait essentiellement dans la phase émulsion :

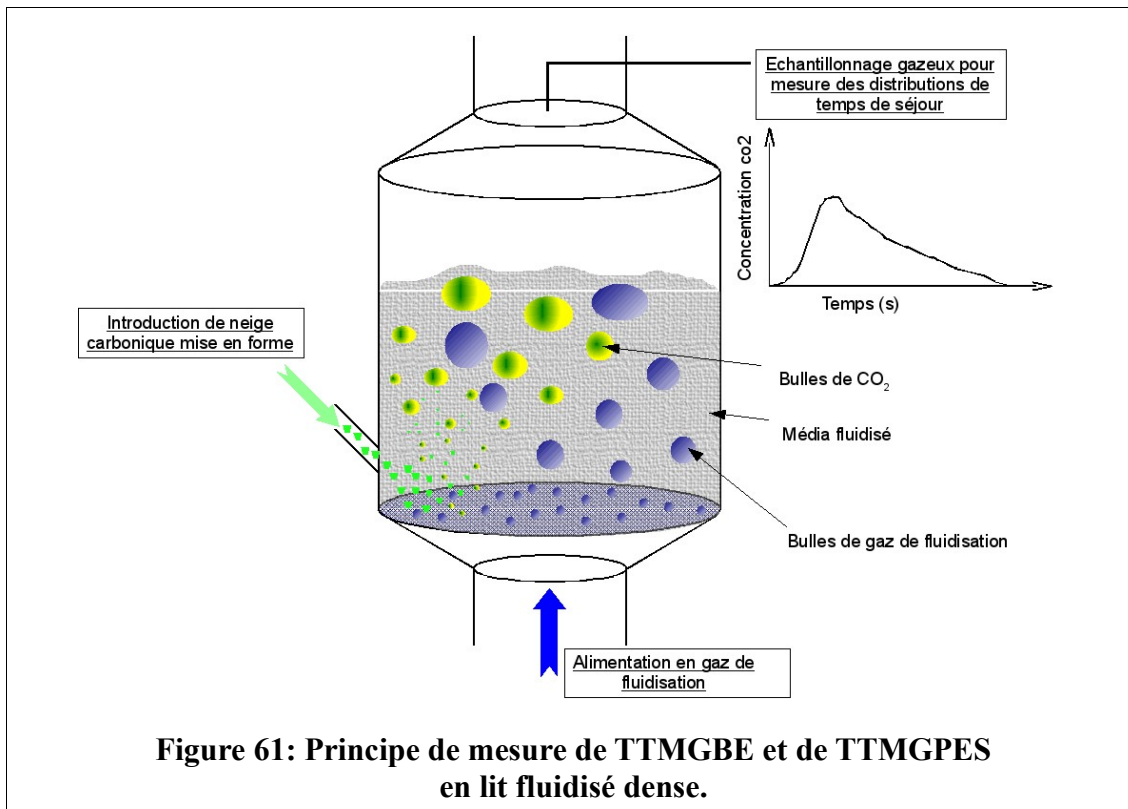
$$0 = \nabla \cdot \mu_{g,e} \nabla \phi_{g,e} - TTMGBE(\mathbf{u}_b, d_b, \epsilon_b, \epsilon_e) + TTMPEs(\mathbf{u}_b, d_b, \epsilon_b, \epsilon_e)$$

avec $\phi_{g,e}$ la masse du gaz de la phase émulsion par unité de volume, $\mu_{g,e}$ coefficient de diffusion du gaz dans la phase émulsion, TTMPEs le Taux de Transfert de Masse Particule-Gaz par "Sublimation" local ;

- Equation monodirectionnelle stationnaire régissant le gaz le long du lit fluidisé discrétisé, obtenue en sommant membre à membre les deux équations précédentes :

$$\nabla \cdot \mathbf{u}_b \phi_{g,b} = \nabla \cdot \mu_{g,e} \nabla \phi_{g,e} + TTMPEs(\mathbf{u}_b, d_b, \epsilon_b, \epsilon_e)$$

TTMPES et TTMGBE seront alors déterminés par optimisation de la concentration locale en CO₂ mesurée, assimilable à $\phi_{g,b}$ et $\phi_{g,e}$ dans les équations précédentes. TTMGBE sera comparé aux corrélations classiques de la littérature obtenue en lit fluidisé avec alimentation externe du gaz de fluidisation.



2.1.5 Etude des transfert de quantité de mouvement entre gaz et particules par "Direct Numerical Simulation"

DANS LES MODÈLES RANS adaptés au calcul des écoulements gaz-particules tridimensionnels instationnaires à l'échelle industrielle, le bilan de conservation local de la quantité de mouvement des particules fait intervenir un terme de couplage gaz-particule, le Taux de Transfert de Quantité de Mouvement Gaz-Particule liée à la traînée, $TTQDMGP$:

$$\frac{\partial \epsilon_s \mathbf{u}_s}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{u}_s \epsilon_s \mathbf{u}_s) = -\epsilon_s \nabla P_g - \nabla \cdot (\epsilon_s P_s) + TTQDMPP + TTQDMGP$$

avec ϵ_s la concentration volumique locale de la phase de particules, $\mathbf{u}_s$ sa vitesse locale, P_s la pression granulaire locale, P_g la pression gaz locale, $TTQDMPP$ le Taux de Transfert de Quantité de Mouvement Particule-Particule lié aux phénomènes de viscosités cinétique et collisionnelle, obtenues par la théorie cinétique des milieux granulaires secs.

L'expression de $TTQDMGP$ pose l'hypothèse de l'homogénéité des propriétés des particules dans chaque cellule de discrétisation de l'écoulement, et les lois classiques sont alors applicables en considérant un diamètre moyen uniforme (Wen et Yu, Ergun, Schiller-Neuman, selon le régime hydrodynamique).

Ceci n'est plus vrai lorsque le diamètre des particules n'est pas uniforme au sein de l'écoulement ; l'utilisation de plusieurs classes de particules mono-disperse permet partiellement de contourner la difficulté, au détriment cependant du temps de calcul qui peut devenir rapidement prohibitif.

L'approche intermédiaire que je propose consiste à déterminer le terme $TTQDMGP$ dans le cas des granulométries étendues quelconques en utilisant l'expérimentation numérique : l'écoulement gazeux à travers un réseau fixe de particules de distribution granulométrique suivant une loi de Rosin-Rammler (1933) sera simulé par DNS avec le code de calcul OpenFOAM. La force de traînée moyenne exercée sera calculée pour chacun des arrangements simulés. L'ensemble des résultats sera corrélé aux propriétés des particules, du reynolds particulaire, et des paramètres de la distribution granulométrique. Les simulations mettront en œuvre des maillages de plusieurs millions de cellules et nécessiteront l'utilisation de centres de calcul parallèle.

L'équation précédente de la conservation local de la quantité de mouvement des particules devra alors être complétée d'une équation à définir qui régira les paramètres locaux de la distribution granulométrique de Rosin-Rammler.

2.1.6 Etude numérique des effets d'échelles, de pression et de température par simulation RANS

LES MODÈLES RANS seront utilisés pour réaliser des études paramétriques en simulant les écoulements réactifs gaz-particules tridimensionnels instationnaires à l'échelle industrielle.

La démarche d'utilisation des modèles RANS pour l'étude paramétrique à l'échelle industrielle est illustrée dans la Figure 62.

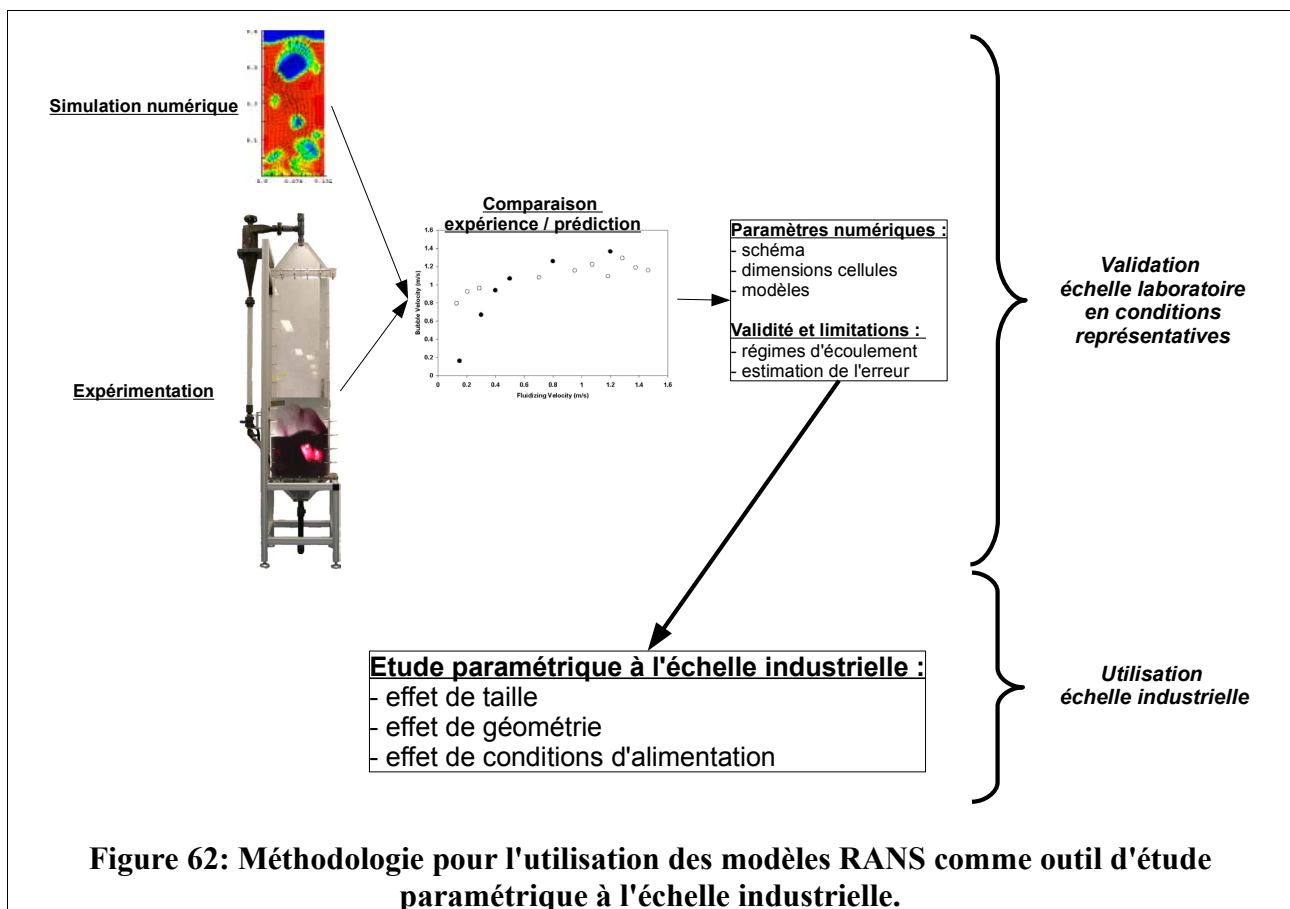
Dans un premier temps, je continuerai mes activités de détermination du domaine de validité de la modélisation, dans les régimes suivants :

- régime de fluidisation dense de particules mono-disperses puis représentatives du mélange de média fluidisé, biomasse et char ;
- régime de fluidisation transporté de particules mono-disperses puis représentatives du mélange de média fluidisé et de char.

La validation portera sur :

- les propriétés hydrodynamiques locales de l'écoulement ;
- les distributions de temps de séjour des phases gaz et particules.

Dans un deuxième temps, les modèles RANS validés seront utilisés pour l'étude paramétrique à l'échelle industrielle.



2.2 Les mécanismes de fragmentation, attrition et érosion des particules de biomasse au sein des écoulements gaz-particules

2.2.1 Présentation de la problématique

LES PARTICULES DE BIOMASSE sont à granulométrie étendue et variable au cours de leur conversion du fait : de leur taille initiale ; des mécanismes d'érosion, d'attrition et de fragmentation subis par la biomasse au contact des parois et de l'agent fluidisant, catalytique ou non, éventuellement utilisé.

Les effets sont d'une part hydrodynamiques : la ségrégation de particules, la modification des distributions de temps de séjours particules et gaz, ainsi que celle des transferts entre les phases, peuvent entre autres être observés.

Les effets sont d'autre part réactionnels : la conversion de la biomasse est contrôlée par la température des particules et la concentration des réactifs gazeux à leurs surfaces, elles-mêmes liées aux transferts thermiques intra et extra particulaire, ainsi qu'aux transferts de masse gazeuse. Ces transferts dépendent de la taille des particules, directement et indirectement (via la vitesse de glissement locale par exemple).

Les phénomènes responsables de la modification de la granulométrie des particules de biomasse au cours de leur conversion doivent donc être étudiés. Les outils utilisés seront expérimentaux et numériques.

2.2.2 Caractérisation mécanique des particules de biomasse au cours de la conversion

LA FRAGMENTATION, L'ATTRITION ET L'ÉROSION des particules de biomasse dépendent de leurs propriétés mécaniques (module d'Young, coefficient de Poisson, limite d'élasticité, dureté, ...). De nombreux essais normalisés existent et seront mis en œuvre pour les déterminer au cours de leur transformation (essais en traction et compression, essais d'abrasion, ...).

Les cinétiques de fragmentation, attrition et érosion établies dans les réacteurs suivant la méthode décrite ci-après seront corrélées aux conditions de fonctionnement et aux propriétés mécaniques des particules.

2.2.3 Etude globale par l'approche expérimentale

LES CINÉTIQUES DE FRAGMENTATION, ATTRITION ET ÉROSION seront étudiées dans une maquette expérimentale hydrodynamiquement représentative du réacteur industriel. La similitude sera approchée en respectant les nombres adimensionnels classiquement utilisés.

Dans un premier temps, la similitude hydrodynamique sera réalisée à température et pression ambiantes. Dans un deuxième temps, elle sera réalisée à température et pression industrielles. Les différentes phases (particules de biomasse, vapeur d'eau, agent catalytique, ...) seront injectées et soutirées en continu. La granulométrie des particules prélevées sera analysée, et utilisée successivement suivant deux approches.

Première approche : modélisation globale

La première approche consistera à proposer une modélisation globale de la granulométrie de

la biomasse prélevée du réacteur en fonction des paramètres de fonctionnement :

$$\phi_i = f(\Psi_1, \Psi_2, \dots, \Psi_N)$$

avec ϕ_i la masse de particules de la classe i de la granulométrie prélevée du réacteur, $\Psi_{1,\dots,N}$ les paramètres de fonctionnement tels que le temps de séjour, la température, la pression, le diamètre moyen de la biomasse introduite, l'essence de la biomasse, ...

Seconde approche : modélisation monodirectionnelle

La seconde approche consistera à proposer une modélisation monodirectionnelle couplée à une modélisation simplifiée de l'hydrodynamique du réacteur. La propagation monodirectionnelle de la masse de particule de la classe i le long du réacteur sera décrite par un modèle piston dispersion :

$$\underbrace{\frac{\partial \phi_i}{\partial t}}_{\text{variation temporelle}} + \underbrace{\nabla \cdot \mathbf{u}_i \phi_i}_{\text{convection}} = \underbrace{\nabla \cdot \mu_i \nabla \phi_i}_{\text{diffusion}} + \underbrace{\sum_{j=1, j \neq i}^{j=N_{\text{classes}}} TTMIC(\phi_i \Leftrightarrow \phi_j)}_{\text{taux de transfert inter-classes}}$$

avec ϕ_i la masse de particules de la classe i par unité de volume, $\mathbf{u}_i$ sa vitesse de convection, μ_i le coefficient de diffusion global dans le réacteur, et $TTMIC(\phi_i \Leftrightarrow \phi_j)$ le taux de transfert de masse inter-classes par les mécanismes de fragmentation/attrition/érosion. Après manipulation mathématique de l'équation et en utilisant les hypothèses d'homogénéité de $\mathbf{u}_i$ et μ_i , la formulation du modèle suivant sera utilisée :

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial \bar{t}} + \bar{\nabla} \cdot \phi_i = \frac{1}{Pe_i} \bar{\nabla} \cdot \bar{\nabla} \phi_i + \sum_{j=1, j \neq i}^{j=N_{\text{classes}}} \overline{TTMIC}(\phi_i \Leftrightarrow \phi_j)$$

avec $\bar{x}$ la valeur adimensionnée de la grandeur x par la grandeur caractéristique du système de même dimension et Pe_i le nombre de Peclet de la classe i dans le système.

Le Taux de Transfert de Masse Inter-Classe sera déterminé après avoir injecté en impulsion une quantité de particules de biomasse tracée, sans perturber le système : la granulométrie des échantillons de particules prélevés en continu du réacteur et marquées par le traceur sera mesurée, et sera utilisée pour déterminer le $TTMIC$ en fonction des paramètres de fonctionnement $\Psi_{1,\dots,N}$ par optimisation :

$$\overline{TTMIC}(\phi_i \Leftrightarrow \phi_j) = f(\Psi_1, \Psi_2, \dots, \Psi_N)$$

Le nombre de Peclet Pe_i de chaque classe i sera déterminé préalablement en suivant une méthode similaire : la Distribution de Temps de Séjour de chaque classe i de la granulométrie de la biomasse soutirée sera établie en injectant en impulsion un traceur de cette classe et en mesurant la concentration en sortie au cours du temps. Les propriétés mécaniques des particules tracées injectées seront telles que les phénomènes de fragmentation/attrition/érosion soient inexistantes, et le modèle piston-dispersion suivant sera utilisé pour déterminer Pe_i par optimisation :

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial \bar{t}} + \bar{\nabla} \cdot \phi_i = \frac{1}{Pe_i} \bar{\nabla} \cdot \bar{\nabla} \phi_i$$

2.2.4 Etude locale par simulation numérique (couplage RANS/DEM/FEA)

L'OBJECTIF EST D'ÉTUDIER NUMÉRIQUEMENT LES MÉCANISMES DE FRAGMENTATION d'une particule isolée de biomasse soumise à des contraintes mécaniques représentatives de celles subies dans l'écoulement gaz-particule. Cette action de recherche à long terme réunira les compétences en mécanique des fluides, mécanique des solides, interactions fluide-structure et mathématiques appliquées.

La déformation, la rupture et la fragmentation de la particule de biomasse seront calculée par la méthode des éléments finis classiquement utilisée en mécanique des structures (Finite Element Analysis). Les conditions limites sur la particule de biomasse seront appliquées suivant deux méthodes :

- méthode directe, consistant à appliquer sur les éléments finis de la frontière de la particule les conditions limites de contrainte et déformation. Elles seront préalablement quantifiées :
 - par méthode expérimentale en lit fluidisé dense, lit fluidisé transporté et four tournant. Une telle technique est à ma connaissance inexistante aujourd'hui, et elle devra donc être développée et mise au point ;
 - ou par une méthode numérique consistant à calculer simultanément les champs de grandeurs locales de l'écoulement par l'approche RANS, la trajectoire de la particule dans cet écoulement par l'approche DEM, et les contraintes de cisaillement et chocs de surfaces qu'elle subit.
- méthode indirecte, consistant à réaliser le calcul de structure au sein de la particule par l'approche FEA, couplé au calcul de sa trajectoire par l'approche DEM et de l'écoulement dans lequel elle est plongée par l'approche RANS avec prise en compte des interaction fluide-structure au niveau de la particule de biomasse.

Le Taux de Transfert de Masse Inter-Classes sera ainsi quantifié directement, et corrélé aux conditions de fonctionnement $\Psi_{1,...,N}$ correspondantes du réacteur :

$$TTC(\phi_i \leftrightarrow \phi_j) = f(\Psi_1, \Psi_2, \dots, \Psi_N)$$

2.3 Etudes cinétiques du craquage thermique et catalytique des goudrons en lit fluidisé

L'OBJECTIF EST DE COMPRENDRE ET MODÉLISER le craquage thermique et catalytique des goudrons. L'influence de la température, de la composition des gaz réactionnels, et de la nature des particules de catalyseur sera étudiée en lit fluidisé.

Un mélange gazeux constitué d'un gaz inerte (hélium) et d'un goudron modèle sera injecté en continu dans la zone d'alimentation en biomasse du lit fluidisé. Les fractions molaires des gaz secs en sortie du réacteur seront suivies en continu. Couplées au débit de l'inerte (hélium) en entrée et à sa fraction molaire en sortie de réacteur, elles permettront d'accéder au taux de conversion des goudrons par bilan carbone. Les mêmes essais seront réalisés en faisant varier la nature du gaz de fluidisation (vapeur d'eau). La comparaison des essais réalisés avec les différents gaz de fluidisation permettra de mieux comprendre la nature des réactions (reformage sous l'action de la vapeur d'eau, craquage).

2.4 Capitalisation scientifique : intégration des outils d'expérimentation numérique dans un code unique

AU TERME DE CE PROGRAMME DE RECHERCHE, le modèle de suivi de particules de biomasse basée sur la DEM, le modèle gaz-particules RANS basé sur la théorie cinétique des milieux granulaire, la simulation de la fragmentation par la FEA, et les cinétiques réactionnelles en phases homogènes et hétérogènes seront intégrés dans un code numérique unique. Il pourra alors être utilisé en complément des outils expérimentaux (pilotes et techniques non-intrusives) que j'aurai contribué à adapter et développer, pour réaliser des études spécifiques difficilement réalisables par l'approche expérimentale. L'ampleur de ce travail à très long terme nécessite l'utilisation d'un outil numérique générique à forte capacité de parallélisation. J'utiliserai le code OpenSource OpenFOAM pour cette action.

Cet outil pourra être utilisé en particulier comme aide à :

- la mise en forme de particules solides ayant des propriétés géométriques, mécaniques et thermiques compatibles avec les conditions de fonctionnement des procédés, par granulation et enrobage ;
- la mise au point d'autres procédés à réacteur gaz-particules ;
- la détermination des distributions de temps de séjour et des transferts entre phases, afin de vérifier que le dimensionnement d'un réacteur à lit fluidisé soit adapté à la mise en œuvre d'une réaction désirée.

Tableau 7: Récapitulatif des actions de mes perspectives de recherche.

Action de recherche	Objectif principal	Outils mis en œuvre	Résultats principaux attendus
Développement, adaptation et utilisation de techniques radioactives non-intrusives en écoulements gaz-particules denses	Compléter les mesures expérimentales fournies par les capteurs de pression, les bi-sondes optiques, et les mesures de distributions de temps de séjour gaz et particules	- Tomographie rapide - Traçage gamma ou positronique de particules	- Modèles des propriétés des structures locales des lits fluidisés (bulles, cluster de particules) - Modèles des phénomènes de mélange et ségrégation de particules - Modèles des cartographies des champs instantanés des concentrations et des vitesses de particules - Règles optimisées de dimensionnement des réacteurs - Base de données de validation de la simulation numérique
Etude de l'hydrodynamique des particules de biomasse de grandes dimensions	Caractériser l'hydrodynamique des particules de biomasse lors des étapes successives du procédé : traitement thermique (séchage, torréfaction), transport, conversion	DEM, éventuellement couplée aux modèles de simulation des écoulements fluides	- Outil de DEM développé et adapté aux conditions spécifiques du procédé - Optimisation des conditions opératoires et du dimensionnement
Etude des effets du transfert de masse particule-gaz	Caractériser les effets liés à la transformation des particules solides en gaz sur l'hydrodynamique des réacteurs	Expériences modèles en maquettes et pilotes en conditions représentatives des conditions industrielles : sublimation de neige carbonique mise en forme	- Modèles globaux et mono-directionnels - Base de données de validation de la simulation numérique
Etude des effets de l'extrapolation	Caractériser les effets d'échelle, de température et de pression	Modèles RANS, à valider préalablement en utilisant les données expérimentales de la littérature et celles établies dans les différentes actions de recherches présentées ici	- Domaine de validité des modèles RANS dans les conditions opératoires du procédé de conversion thermochimique de la biomasse - Modèles corrélatifs d'extrapolation

Action de recherche	Objectif principal	Outils mis en œuvre	Résultats principaux attendus
Etude des mécanismes de fragmentation, attrition, et érosion des particules de biomasse	Caractériser l'évolution et les effets de la distribution granulométrique des particules de biomasse au cours de leur conversion	- Outils expérimentaux de caractérisation mécanique des particules de biomasse - Expériences en maquettes et pilotes - Simulation numérique par couplage des méthodes de calcul de structure (FEA) sur une particule de biomasse, de la simulation du mouvement de cette particule par DEM, et de la simulation de l'écoulement fluide autour d'elle par méthode RANS.	- Modèles globaux - Modèles monodirectionnels - Outil RANS/DEM/FEA développé et adapté aux conditions du procédé de conversion thermochimique de la biomasse
Etudes cinétiques du craquage thermique et catalytique des goudrons	Caractériser les effets de la température, de la composition des gaz issus de la conversion de la biomasse, et de la nature d'un agent catalytique solide sur les réactions de craquage thermique et catalytique des goudrons, indésirables pour la valorisation aval par les procédés de synthèse tels que la méthanation ou le Fisher-Tropsch	Expériences de craquage de goudrons modèles en lits fluidisés.	Modèles réactionnels et cinétiques des réactions de craquage.

3 Conclusions

Au terme de ce programme de recherche sur les procédés de conversion thermochimique de la biomasse en réacteurs gaz-particules, les phénomènes locaux de transferts au sein des phases gazeuse et de particules, ainsi que les transferts entre elles, auront été caractérisés expérimentalement et numériquement. Des outils de modélisation globaux basés sur les formalismes classiques du Génie des Procédés auront été établis et permettront de reproduire le comportement des réacteurs du procédé. Les outils expérimentaux, numériques et théoriques seront ensuite transposables au développement des procédés de l'énergie utilisant les écoulements gaz-particules.

Ces outils sont :

- les outils expérimentaux de caractérisation des propriétés des espèces en présence dans le réacteur : systèmes de prélèvement et d'échantillonnage, tests de résistances mécaniques ;
- les outils expérimentaux de caractérisation des transferts de masse, de quantité de mouvement et de chaleur : maquettes élémentaires, pilotes chauds, techniques non-intrusives de tomographie et de traçage radioactif de particules ;
- les outils d'expérimentation numérique pour comprendre et modéliser les phénomènes de transferts au sein et entre les fluides et les particules du réacteur, dans des conditions que les outils expérimentaux peuvent difficilement traiter : Direct Numerical Simulation (DNS), Direct Simulation Monte Carlo (DSMC), Discrete Element Method (DEM), Finite Element Method/Analysis (FEM/FEA), Fluid-Structure Interaction (FSI) ;
- les outils de simulation des écoulements multiphasiques tridimensionnels instationnaires à grande échelle, utilisés en tant qu'aide au dimensionnement, et permettant de représenter certains comportements de réacteurs industriels : Reynolds Average Navier-Stokes (RANS) et théorie cinétique des milieux granulaires (KTGM) ;
- les outils de simulations globaux et semi-globaux permettant de faire du dimensionnement, du "reverse engineering", de l'assistance technique et du troubleshooting dans des délais compatibles avec les échelles de temps industrielles : piston-dispersion, bulle-émulsion, ...

Les procédés dont le développement pourra utiliser ces outils sont :

- procédé de gazéification en lit transporté à haute température ($>1200^{\circ}\text{C}$) et haute pression. L'application industrielle est la production de gaz de synthèse à haute qualité pour utilisation comme base dans les procédés de synthèses de carburants liquides (Fischer-Tropsch) ;
- procédé de gazéification en lit fluidisé dense à 800°C et pression proche de la pression atmosphérique, avec combustion du résidu solide de la réaction en lit fluidisé transporté. L'application industrielle est la production de gaz de synthèse pour utilisation directe ou méthanation ;
- procédé de torréfaction en lit fluidisé. L'application industrielle est le traitement de la biomasse pour faciliter son stockage, son transport, son broyage, avant sa combustion ou sa gazéification ;
- captage de CO_2 par boucle chimique (chemical looping) dans les procédés de combustion de gaz (gaz naturel), de liquide (coupe pétrolière) et de solide (charbon, petcoke, déchets).

Références

- [1] Sadeghbeigi R. Fluid catalytic cracking handbook : design, operation and troubleshooting of FCC facilities. Second Edition. Gulf Publishing (Ed.). 2000.
- [2] Andreux R, Verstraete J, Gauthier T, Roux R, Ross J. An Efficient FCC Riser Separation System : From R&D to Industrial Practice. In: A. Luckos and P. Smit. Johannesburg : South African Institute of Mining and Metallurgy (Ed.). IFSA Industrial Fluidization South Africa. 2005. 225-244.
- [3] Gauthier T, Andreux R, Verstraete J, Roux R, Ross J. Industrial development and operation of an efficient riser separation system for FCC units, International Journal of Chemical Reactor Engineering. 2005;3:A47.
- [4] Andreux R, Hémati M. Analyse de risques liés à l'extrapolation de 2MWe à 5,7 MWe d'une installation de co-génération par gazéification de biomasse en lit fluidisé. Rapport de prestation pour Gaz De France, Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse, UMR5503, France. 2008.
- [5] Davidson JF, Harrison D. Fluidized Particles. Cambridge University Press (Ed.). 1963.
- [6] Hémati M. Etude de la pyrolyse et de la gazéification de bois par thermogravimétrie et en lit fluidisé de catalyseur. PhD Thesis. Institut National Polytechnique de Toulouse. France. 1984.
- [7] Tsuji Y, Morikawa Y, Shiomi H. LDV measurements of an air-solid two-phase flow in a vertical pipe, J. Fluid. Mech. 1984;139:417-434.
- [8] Depew CA, Farbar L. Heat transfert to pneumatically conveyed glass particles of fixed size, Transaction of the ASME. 1963;:.
- [9] Jepson G, Poll A, Smith W. Heat transfert from gas to wall in a gas/solids transport line, Trans. Inst. Chem. Engrs. 1963;41:.
- [10] Andreux R, Boulet P, Oesterlé B. Test of an Eulerian-Lagrangian simulation of wall heat transfer in a gas-solid pipe flow. In: W. Rodi and Laurence (Ed.). Eng. Turbulence Modeling and Experiments-4, Elsevier Science, Amsterdam. Proceedings of the 4th International Symposium on Engineering Turbulence Modelling and Measurements Ajaccio, Corsica, France. 24-26 May, 1999. 913-922.
- [11] Boulet P, Moissette S, Andreux R, Oesterlé B. Test of an Eulerian-Lagrangian simulation of wall heat transfer in a gas-solid pipe flow, Int. J. Heat and Fluid Flow. 2000;21:381-387.
- [12] Andreux R, Ferschneider G, Hémati M, Simonin O. Experimental study of a fast gas-particle separator, Chem. Eng. Res. Des. 2007;85(A6):808-814.
- [13] Andreux R. Etude expérimentale et numérique d'un séparateur gaz-solide en sortie du riser

d'un pilote froid de FCC. Institut National Polytechnique de Toulouse. France. 2001.

[14] Barth W. Berechnung und auslegung von zyklonabscheidern au grund neuerer untersuchungen, Brennstoff-Wärme-Kraft. 1956;1:1-9.

[15] Muschelknautz E. Die berechnung von zyklonabscheidern für gase, Chemie Ing. Techn. 1972;44:63-71.

[16] Muschelknautz E. Theorie der Fliehkraftabscheider mit besonderer Berücksichtigung hoher Temperaturen und Drucke, VDI-Berichte. 1980;363:49-60.

[17] Hoffmann AC, Arends H, Sie H. An experimental investigation elucidating the effect of solid loading on cyclone performance, Filtration and Separation. 1991;28:188-193.

[18] Boelle A. Validation d'un modèle à deux fluides appliqué à la simulation des lits fluidisés denses. Ph.D. Thesis, Report HE-44/97/004/A, Laboratoire Nationale d'Hydraulique, EDF, Chatou, France. 1997.

[19] Sakiz M. Simulation numérique lagrangienne et modélisation eulérienne d'écoulements diphasiques gaz-particules en canal vertical. PhD Report. Laboratoire National d'Hydraulique, EDF. France. 1999.

[20] Laviéville J. Simulations numériques et modélisation des interactions entre l'entraînement par la turbulence et les collisions interparticulaires en écoulement gaz-solides. Thèse de l'Université de Rouen. 1997.

[21] Andreux R, Chaouki J. Behaviors of the bubble, cloud and emulsion phases in a fluidized bed, AIChE J. 2008;54(2):406-414.

[22] Andreux R, Gauthier T, Chaouki J, Simonin O. New Description of Fluidization, AIChE J. 2005;51:1125-1130.

[23] Petit G. Contribution à l'étude expérimentale et numérique du comportement des phases gaz et solide dans un lit fluidisé circulant: application au procédé FCC. PhD Thesis. Institut National Polytechnique de Toulouse. France. 2005.

[24] Andreux R, Petit G, Hémati M, Simonin O. Hydrodynamic and solid residence time distribution in a circulating fluidized bed: Experimental and 3D computational study, Chem. Eng. Process : Process Intensification. 2008;47(3):463-473.

[25] Andreux R, Hémati M, Simonin O, Ferschneider G. Hydrodynamic investigation of a CFB: numerical study and experimental validation. In: Grace, J.R., Zhu, J., de Lasa, H. (Ed.). Circulating Fluidized Bed Technology 7. CSChE, Ottawa, Canada. 2002. 403-410.

[26] Petit G, Hémati M, Simonin O, Andreux R. Simulation Numérique d'Ecoulement Gaz/Solide

dans un Riser FCC. In: Lavoisier (Ed.). Proc. of the 4th Symposium on Powder Science and Technology, Compiègne, France. 4-6/05/2004. .

[27] Petit G, Hémati M, Simonin O, Andreux R. Hydrodynamique de l'Ecoulement Gaz-Solide dans un Riser FCC : Etude Expérimentale et Simulation Numérique 3D. In: SFGP X, Proc. of the 10th Congress of the Société Française de Génie des Procédés, Toulouse (France) . 20-22/09/2005. .

[28] Petit G, Hémati M, Simonin O, Andreux R. . In: Journées du groupe de travail « solides divisés » de la SFGP : les procédés de traitement et de mise en forme des solides divisés en voie sèche, Toulouse, France. 16-17/05/2006. .

[29] Petit G, Hémati M, Simonin O, Andreux R. Experimental and 3D Computational Study of Multiphase Flow Behaviour in a Riser of a FCC Process. In: Kefa Cen (Ed.). Proc. of the 8th International Conference on Circulating Fluidized Beds, Hangzhou (China). 10-13/05/2005. 321-327.

[30] Andreux R, Duplan J. Apparatus and process for catalytic cracking of two distinct hydrocarbon feeds. Institut, Français Du Pétrole (1 & 4 Avenue de Bois-Préau, 92852 Rueil Malmaison Cédex, FR) . United States Patent 20060113217. 11/09/2005.

[31] Andreux R, Duplan J. Device and process for the catalytic cracking of two distinct hydrocarbon feeds. Inst, Français Pétrole DU. (FR) . European Patent EP1656989. 05/17/2006.

[32] Lecong T. Générateur d'Hydrogène mettant en œuvre des Masses Solides. Rapport de Stage DEA ENSPM. 1998.

[33] Lyngflet A, Leckner B, Mattisson T. A Fluidized-Bed Combustion Process with Inherent CO₂ Separation : Application of Chemical-Looping Combustion, Chem. Eng. Sc. 2001;56:3101-3113.

[34] Andreux R, Pavone D, Darmancier D. Normal pressure drop recovery for Eluxyl beds with fine layers, Rapport IFP 58823. 2005.

[35] Andreux R. Retour Industriel FCC, Tamoil, Colombey, Suisse, Rapport IFP 58730. 2005.

[36] Gidaspow D, Huilin L. Equation of state and radial distribution functions of FCC particles in a CFB, AIChE J. 1998;44(2):279-293.

[37] Kim H, Arastoopour H. Extension of kinetic theory to cohesive particle flow, Powder Techn. 2002;122:83-84.

[38] Parmentier J, Ozel A, Fede P, Simonin O, Petit G, Andreux R, Hémati M. Development and experimental validation of 3D eulerian numerical modelling of gas-solid fluidized beds. Journée Impact de Fermat, FR3089, IMFT, Toulouse, France. 2008.

[39] Tavares Dos Santos E, Andreux R. Numerical Simulation of a dense fluidized bed of Geldart-

A particles, Rapport IFP 59838. 2007.

[40] Andreux R. CFD validation for the simulation of a gas-particle separating device in the FCC process. Rapport 59473, Institut Français du Pétrole. 2006.

[41] Andreux R, Delsart O. CFD Use for Gas - Solid Flow Simulation in an FCC. In: 7th Axens-SS&W FCC Forum. 2007. .

[42] Leroy P, Bayle J, Cheradame N, Le-Coz J. Innovative FCC regenerator revamp yields higher margins, NPRA Annual Meeting. 2008;:.

[43] Andreux R. Analysis of radioactive tracing performed in a FCCU using dispersive plug flow modeling and CFD, Rapport IFP 59937. 2007.

[44] Tavares Dos Santos E. Rapport de mi-thèse. Etude expérimentale et numérique du soutirage des particules d'un lit fluidisé. Application au cas industriel Du FCC, Rapport IFP 60828. 2008.

[45] Tavares E, Andreux R, Hémati M, Ferschneider G. Bubble and emulsion behaviours during defluidization of Geldart-A particles. In: Proceeding of the 18th International Congress of Chemical and Process Engineering. Chisa. Prague, Czech Republic. 2008. 251-.

[46] Tavares Dos Santos E, Andreux R, Hémati M. Influence of aeration taps spacing in standpipe flows. In: A. Luckos and P. Smit. Johannesburg: South African Institute of Mining and Metallurgy (Ed.). Ifsa Industrial Fluidization South Africa. 2008. .

[47] Andreux R, Hémati R. Modeling the downward dense heterogeneous gas-particle flows, submitted to AIChE (accepted with minor revision). 2009;:.

[48] Karri RBR, Knowlton TM. The effect of aeration on the operation of cyclone diplegs fitted with trickle valves, I & EC Research. 2004;48(18):5783-5789.

[49] Detournay M, Errahi A, Favrais J, Figueiredo Fernandez M, Tognola M, Pointu L. Projet de fin d'études : procédé de vapogazéification du bois. Rapport de stage de 3ème année, ENSIACET. 2008.

[50] Detournay M, Andreux R, Hémati M. Biomass vapogasification in fluidized bed of inert or catalytic particles: comparison between experimental results and thermodynamic equilibrium predictions. In: Colloque Science et Technologie des Poudres et Matériaux Frittés STPMF2009, Montpellier, France.. 2009. Poster.

[51] Dounit S. Combustion du gaz naturel en réacteur à lit fluidisé: étude expérimentale et modélisation de la zone dense et de la zone de désengagement. Institut Nationale Polytechnique de Toulouse. France. 2001.

[52] Dounit S, Hémati M, Andreux R. Modelling and experimental validation of a fluidized bed

reactor freeboard region: application to natural gas combustion, Chem. Eng. J. 2008;140(1-3):457-465.

[53] Andreux R, Hémati M. CFD Modeling of Sodium Carbonate Monohydrate Dehydration in a Circulating Fluidized Bed. In: A. Luckos and P. Smit. Johannesburg: South African Institute of Mining and Metallurgy (Ed.). Ifsa Industrial Fluidization South Africa. 2008. .

[54] Andreux R, Hémati M. CFD modeling of sodium carbonate monohydrate dehydration in a circulating fluidized bed, Int. J. of Chem. Reac. Eng. 2009, submitted;..

[55] Diguet S. Calcination de carbonate de sodium mono hydrate en lit fluidisé circulant. Institut National Polytechnique de Toulouse. France. 1996.

[56] Kouo Mbillé S. Etude expérimentale de l'hydrodynamique d'un lit fluidisé bi-dimensionnel. Stage Master Recherche, ENSIACET, Institut National Polytechnique de Toulouse, France. 2009.

[57] Simonin O, Neau H. Simulation numérique multi échelles de lits fluidisés réactifs, Centre Calculs IDRIS. 2008.

[58] Touche I, Andreux R. Tests de la boîte à outils numériques OpenFOAM sur le centre de calcul Alladin-Grid'5000, LGC UMR5503, Institut National Polytechnique de Toulouse, France. 2008 (*non publié*).

[59] Gagnepain J. Nouvelles technologies de l'énergie. Proposition de programme de recherche, Direction de la Technologie. 2005.

[60] Chambolle T, Méaux F. Nouvelles technologies de l'énergie, Direction de la Technologie. 2004.

[61] Buvat I. Cours : Les différents traceurs et leur production. Les détecteurs gamma et beta+, INSERM U678, Paris, France. 2006.

[62] Buvat I. Cours : Imagerie en Médecine Nucléaire, Imagerie et Modélisation en Neurobiologie et Cancérologie. UMR 8165 CNRS. Orsay. France. 2008.

[63] Buvat I. Cours : Les atouts et faiblesses de caméra TEP dédiées, TEP corps entier, TEP-CT, TEMP pour la quantification, U494 INSERM, CHU Pitié-Salpêtrière, Paris, France. 2002.

[64] Moretti J, Weinmann P, Tamgac F, Rigo P, Morère J. Imagerie fonctionnelle par positons en oncologie nucléaire. Springer (Ed.). 2004.

[65] Malber C. Utilisation de la tomographie d'émission positronique chez l'animal moyen. . .

[66] Geissler B. Médecine nucléaire : PET-scan et imagerie hybride. . .

[67] Bellgardt D, Werther J. A novel method for the investigation of particle mixing in gas-solid systems, Powder Techn. 1986;48:173-180.

- [68] Dounit S, Hémati M, Steinmetz D. Natural gas combustion in fluidised bed reactors between 600 and 850°C: experimental study and modelling of the freeboard, Powder Techn. 2001;120:49-54.