

RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

UNIVERSITÉ de SAAD DAHLEB BLIDA 1

Faculté de Technologie

Département de Génie des Procédés



Mémoire

En vue de l'obtention du diplôme de

MASTER 2 EN

Option : GÉNIE CHIMIQUE

Présenté par :

ABDESSELEM Abdelhak

BENKACIMI Karim

**Modélisation du Procédé de Reformage
Catalytique de la Raffinerie d'Adrar**

Encadreur :

Pr. Djamel TOUIL

Année universitaire : 2019/2020

Remerciement

Nos remerciements vont en premier à Dieu tout puissant pour la volonté, la patience et surtout la santé qu'il nous a donné pour terminer notre mémoire.

Au terme de ce travail, nous tenons à remercier vivement notre encadreur Mr. Djamel Fouil, pour son soutien sans faille à tout moment. Ses précieux conseils tout au long de notre travail nous ont été d'un précieux apport durant toute cette période.

Nos vifs remerciements s'adressent aux enseignants du département de génie des procédés et aux travailleurs de la Raffinerie d'Adrar pour leur amabilité, leurs conseils et l'aide qu'ils nous ont apportés tout au long notre séjour.

Enfin nous remercions tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à l'aboutissement de ce travail.

Résumé

L'un des processus les plus importants et les plus critiques dans les raffineries de pétrole est le reformage catalytique dans lequel de l'essence à indice d'octane élevé et des aromatiques précieux tels que le benzène, le toluène et le xylène (B.T.X.) sont produits. Compte tenu de l'importance de ce processus pour la production d'essence, la simulation du processus de reformage catalytique et la prédiction de paramètres vitaux tels que l'indice d'octane, la vitesse spatiale, les températures d'entrée du réacteur, la pression et le rapport hydrogène / hydrocarbures visant l'optimisation du processus sont primordiales importance. Dans ce travail, la précision du modèle de simulateur « Aspen Hysys 9.0 » est comparée aux données collectées de la raffinerie d'Adrar (RIAD). Ces résultats montrent que ce modèle a une capacité relativement acceptable pour prédire les paramètres de l'unité. Une étude paramétrique montre que les variables de décision, générées par le programme d'optimisation « MODDE 6.0 », peuvent augmenter le rendement d'aromatiques à environ 18%, en gardant la même consommation d'énergie.

Les résultats obtenus lors de l'utilisation des conditions opératoires de la Raffinerie sont : un débit d'aromatique de 7185.3 kg/h et une consommation spécifique d'énergie d'environ 1189.78 kJ/kg.

Mot clés : Reformage catalytique, Raffinage, Optimisation, essence.

ملخص

واحدة من أهم العمليات وأكثرها أهمية في مصافي البترول هي وحدة الإصلاح التحفيزية التي يكون فيها البنزين عالي الأوكتان والعطريات القيمة مثل البنزين والتولوين والزيلين (BTX) التي يتم إنتاجها. نظرًا لأهمية هذه العملية لإنتاج البنزين، فإن محاكاة عملية الإصلاح التحفيزي وتنبؤ العوامل الحيوية مثل رقم الأوكتان، الضغط، درجات حرارة مدخل المفاعل، وكذا زمن المكوث فيه ونسبة الهيدروجين / الهيدروكربون لهم أهمية قصوى في تحسين العملية. في هذا العمل، تمت مقارنة دقة نموذج محاكاة Aspen Hysys 9.0 بالبيانات التي تم جمعها من مصفاة أدرار (RAID). تظهر هذه النتائج أن هذا النموذج لديه قدرة مقبولة نسبيًا للتنبؤ بعوامل الوحدة. أظهرت دراسة حول العوامل أن متغيرات القرار التي تم إنشاؤها بواسطة برنامج تحسين "MODDE 6.0" يمكن أن تزيد من تدفق إنتاجية العطريات إلى حوالي 18٪، مع الحفاظ على نفس استهلاك الطاقة.

النتائج التي تم الحصول عليها عند استخدام ظروف تشغيل المصفاة هي: معدل تدفق عطري 7185.3 كغ / ساعة واستهلاك طاقة يبلغ حوالي 1189.78 كيلو جول / كغ.

كلمات مفتاحية: الإصلاح التحفيزي، التكرير، تحسين، بنزين

Abstract

One of the most important and critical processes in petroleum refineries is catalytic reforming in which high octane gasoline and valuable aromatics such as benzene, toluene

and xylene (BTX) are produced. Given the importance of this process for gasoline production, the simulation of the catalytic reforming process and the prediction of vital parameters such as octane number, space velocity (VVH), inlet temperatures of the reactor, the pressure and the hydrogen / hydrocarbon ratio aimed at optimizing the process are of prime importance. In this work, the accuracy of the "Aspen Hysys 9.0" simulator model is compared to data collected from the Adrar refinery (R1AD). These results show that this model has a relatively acceptable ability to predict unit parameters. A parametric study shows that the decision variables, generated by the "MODDE 6.0" optimization program, can increase the yield of aromatics to about 18%, while keeping the same energy consumption.

The results obtained when using the operating conditions of the Refinery are : an aromatic flow rate of 7185.3 kg / h and a specific energy consumption around 1189.78 kJ / kg.

Key words : Catalytic Reforming, Refining, Optimization, Gasoline.

Table des matières

Remerciement.....	I
Résumé	II
Table des matières	IV
Liste des tableaux	VII
Liste des figures.....	VIII
Liste des abréviations	X
Introduction générale.....	1
Chapitre I..... Généralités sur le Procédé de Reformage Catalytique.....	3
I. Généralité sur le raffinage du pétrole	3
I.1. L'industrie pétrolière	3
I.2. Le raffinage du pétrole.....	3
2.1. Historique du raffinage.....	3
2.2 Distillation atmosphérique du pétrole brut	5
2.3 Distillation sous vide	6
I.3. Le reformage catalytique	6
3.1 Principe.....	6
3.2 Réactions mises en jeu.....	6
3.3 Données thermodynamiques des réactions.....	7
3.4 Le procédé du reformage catalytique	7
3.4.1 Le procédé semi-régénératif (lit fixe)	8
3.4.2 Le procédé cyclique ou lit circulant.....	8
3.4.3 Le procédé de régénération continue ou lit mobile.....	9
3.4.4 Les procédés de reformage catalytique commercial	10
I.4 Les équipements utilisés	10
4.1. Réacteurs	10
4.2 Réchauffeurs du processus	11
4.3 Les échangeurs de chaleur	12
4.4 Les compresseurs du gaz	12
Chapitre II...Paramètres Opératoires du Reformage Catalytique de la Raffinerie d'Adrar	13
Introduction.....	13
II.1 Présentation de la raffinerie d'Adrar	13
1.1 Situation géographique	13
1.2 Les différentes unités de la raffinerie	14
1.3 Capacité de production.....	14
1.4. Spécifications physico-chimiques du pétrole brut de Hassi Ilatou et d'OTRA.....	14

II.2 Unité de Reformage catalytique (CRU)	15
2.1. Description du procédé de l'unité CRU	17
2.1.1 Section de Préfractionnement	17
2.1.2 Section de Prétraitement	17
2.1.3 Section réactionnel (reforming)	19
II.3. Collecte et relevé des paramètres opératoires.....	21
3.1 Données opératoires	21
3.1.1 Réacteurs chimiques	21
3.1.2 Colonne de stabilisation	22
3.1.3 Ballons de séparation	22
3.1.4 Fours	22
3.1.5 Echangeurs de chaleur	23
3.1.6 Aéroréfrigérants	23
3.1.7 Compresseurs.....	23
3.1.8 Pompes.....	24
3.2 Analyse chimique des gaz et du Naphta.....	24
3.2.1 Composition des gaz.....	24
3.2.2 Propriétés physico-chimiques et composition de Naphta	25
Chapitre III.....Modélisation et Simulation de la Section Reformage Catalytique.....	27
Introduction.....	27
III.1 Généralités sur la simulation d'un Procédé existant.....	27
III.2 Simulation de la Section étudiée par le logiciel Aspen Hysys.....	27
2.1 Introduction au Logiciel Aspen Hysys	28
2.2 Méthodologie de simulation suivie	28
2.2.1 Choix des composants	28
2.2.2- Choix de modèle thermodynamique	30
2.2.3 Construction du PFD	32
2.2.4 Représentation et configuration des Equipements.....	32
Réacteurs chimiques	32
Le Four.....	36
L'Echangeur de chaleur	37
La Pompe	39
Compresseur	40
III.3 Résultats de simulation.....	41
Chapitre IV.....Résultats et Interprétations	47
Introduction.....	47
IV.1 Etude Paramétrique simple du procédé de reformage catalytique.....	47

Paramètres opératoires sensibles	47
1.2 Influence des paramètres opératoires sur la production des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie calorifique.....	49
IV.2 Généralités sur l'approche du plan d'expériences	52
2.1 « Cost approach » et « DoE approach »	52
2.2 Définition et objectifs du plan d'expériences	53
IV.3. Etude paramétrique du Reformage catalytique par l'approche <i>DoE</i>	53
3.1 Méthodologie suivie	53
3.1.1 Les facteurs	54
3.1.2 Les réponses.....	54
3.1.3 Choix du modèle.....	55
3.1.4 Le design.....	55
3.2 Essais du plan d'expérience.....	56
3.3 Ajustement et validité du modèle	57
3.4 Analyse graphique	58
3.5 Diagrammes d'Effets.....	59
3.6. Analyse des courbes iso-réponses	60
3.7 Recherche des conditions optimales.....	62
Conclusion et Perspectives	
Bibliographie.....	
Annexe.....	

Liste des tableaux

Tableau I.1. Evolution mondiale de la demande en produits pétroliers	4
Tableau I.2. Spécifications des produits finis et futures contraintes pour l'Europe.....	5
Tableau II.1. Les quantités produites par l'unité.	14
Tableau II.2. Propriétés physico-chimiques de pétrole brut de Hassi Ilatou et d'OTRA.....	15
Tableau II.3. Bilan de matière section de préfractionnement.....	17
Tableau II.4. Caractéristique du catalyseur de la section Prétraitement.....	18
Tableau II.5. Bilan matière de prétraitement.....	19
Tableau II.6. Caractéristique du Catalyseur de la section Reforming.....	19
Tableau II.7. Bilan matière global section reforming.....	21
Tableau II.8. Conditions opératoires des réacteurs chimiques	21
Tableau II.9. Conditions opératoires et du design de la colonne de stabilisation	22
Tableau II.10. Conditions opératoires et du design des ballons de séparation.....	22
Tableau II.11. Conditions opératoires des fours.....	22
Tableau II.12. Conditions opératoires des échangeurs de chaleur	23
Tableau II.13. Conditions opératoires des aéroréfrigérants.....	23
Tableau II.14. Conditions opératoires des compresseurs	23
Tableau II.15. Conditions de design des pompes	24
Tableau II.16. Propriétés physiques du gaz naturel et du fiel gaz utilisés.....	24
Tableau II.17. Composition chimique du gaz naturel	24
Tableau II.18. Composition chimique du gaz procédé.....	25
Tableau II.19. Propriétés physico-chimiques de naphta.....	25
Tableau II.20. Composition de naphta par classes et groupe d'hydrocarbures	26
Tableau II.21. Composition chimique de naphta.....	26
Tableau III.1. Représentation de la charge naphta dans HYSYS	30
Tableau III.2 valeurs des paramètres M_0 , M_1 et M_2	31
Tableau III.3. Modèles de réactions mises en jeu dans Aspen Hysys.....	34
Tableau III.4. Paramètres opératoires des flux de matière dans les Pompes.....	41
Tableau III.5. Paramètres opératoires des flux de matière dans les ballons.....	42
Tableau III.6. Paramètres opératoires des flux de matière dans les Compresseurs.....	42
Tableau III.7. Paramètres opératoires des flux de matière dans les Réacteurs.....	43
Tableau III.8. Paramètres opératoires des flux de matière dans les Echangeurs	43
Tableau IV.1. Les 26 Essais du plan d'expériences	56
Tableau IV.2. validité du modèle.....	57
Tableau IV.3. Validité du modèle modifiés et améliorés	59
Tableau IV.4. Les conditions de réponses optimales	62

Liste des figures

Figure I.1. Schéma de principe de raffinage et ses différentes opérations.....	4
Figure I.2. Schéma du procédé semi-régénératif.....	8
Figure I.3. Schéma de procédé cyclique.....	9
Figure I.4. Reformeur à régénérateur continu.....	10
Figure I.5. Réacteur radial, axial et sphérique.....	11
Figure II.1. Situation géographique et gisements pétroliers de la raffinerie.....	13
Figure II.2. Unité reforming catalytique de la raffinerie d'Adrar.....	16
Figure II.3. Section réactionnelle de l'unité CRU.....	20
Figure III.1. Schéma simplifié de la section réactionnelle.....	29
Figure III.2. Liste des composés disponibles dans le logiciel Hysys.....	30
Figure III.3. Fluid package dans le logiciel Aspen Hysys.....	31
Figure III.4. Représentation du réacteur TBR.....	32
Figure III.5. PFD de simulation de la section réactionnelle.....	33
Figure III.6. Introduction de Données pour le PFR.....	34
Figure III.7. Simulation de la réaction de déshydrogénation des naphthènes.....	35
Figure III.8. Calcul de la perte de charge du PFR.....	36
Figure III.9 Représentation du four tubulaire dans Aspen Hysys.....	39
Figure III.10. Simulation de l'échangeur E201 de la section réactionnelle.....	39
Figure III.11. Simulation de la pompe centrifuge P201.....	40
Figure III.12. Simulation du compresseur K101.....	41
Figure III.13. Comparaison de la fraction des paraffines du Reformat.....	45
Figure III.14. Comparaison de la fraction des iso-paraffines du Reformat.....	45
Figure III.15. Comparaison de la fraction des naphthènes du Reformat.....	46
Figure III.16. Comparaison de la fraction des aromatiques du Reformat.....	46
Figure IV.1. Production des aromatiques et consommation spécifique d'Énergie en fonction de la température.....	49
Figure IV.2. Production des aromatiques et consommation spécifique d'énergie en fonction de la vitesse spatiale.....	50
Figure IV.3. Production des aromatiques et consommation spécifique d'énergie en fonction du rapport H ₂ /HC.....	51
Figure IV.4. Production des aromatiques et consommation spécifique d'énergie en fonction de la pression.....	51
Figure IV.5. Illustration « cost approach » et « DoE approach ».....	52
Figure IV.6. Choix des facteurs et leurs plages dans <i>MODDE 6.0</i>	54
Figure IV.7. Choix des réponses dans <i>MODDE 6.0</i>	54
Figure IV.8. Choix de modèle quadratique avec le design composite à face centré CCF.....	56

Figure IV.9. Valeurs observées en fonction de valeurs calculées pour les aromatiques.....	58
Figure IV.10. Valeurs observées en fonction de valeurs calculées pour la CSE.....	58
Figure IV.11. Effet des différents facteurs sur la production des aromatiques	59
Figure IV.12. Effet des différents facteurs sur la consommation spécifique d'énergie	60
Figure IV.13. Courbes d'iso-réponse des aromatiques en fonction de la température et la vitesse spatiale	61
Figure IV.14. Courbe d'iso-réponses de la CSE en fonction de la température et la vitesse spatiale	61

ABRÉVIATION				
A	Aromatique			
AF	Air-Fuel ratio			
API	American Petroleum Institute			
CCF	Composite à Faces Centrée			
CDU	Crude Distillation Unit			
CRU	Catalytic Reforming Unit			
DoE	Design of Experiments			
EOS	Equation Of State			
GPL	Gaz de Pétrole Liquéfiés			
IA	Intelligence Artificielle			
iP	iso-Paraffine			
MSF	Méthodologie des Surface des Réponses			
MODDE	Modeling and Design			
N	Naphtène			
NOM	Numéro d'octane Moteur			
NOR	Numéro d'octane recherche			
Ole	Oléfine			
P	Paraffine			
PBR	Packed Bed Reactor			
PFD	Process Flow Diagram			
PFR	Plug Flow Reactor			
PR	Peng Robinson			
RA1D	Raffinerie d'Adrar			
RFCC	Residual Fluid Ctalytic Craking			
RSM	Response Surface Methodology			
SRK	Soave-Redlich-Kwong			
TBR	Trickle Bed Reactor			
TVR	Reid Vapor Pressure			
UOP	Universal Oil Product			
VVH	Vitesse Volumétrique Horaire			
LETTRES GRECQUES				
η	Le rapport entre P_w , et P_f	η		
ω	Facteur acentrique			
	Vitesse angulaire	$\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$		
μ	Viscosité dynamique	$\text{kg}/\text{m}\cdot\text{s}$		
ε	Porosité	%		
ρ	La masse volumique du fluide	kg/m^3		
Δ_p	Perte de charge	N/m^2		
Δh	Variation d'enthalpie de			
			changement de phase	
		ΔT_{lm}	Température moyenne logarithmique	$^{\circ}\text{C}$
		ΔT	Variation de température	$^{\circ}\text{C}$
NOMENCLATURE				
		A_o	Zone extérieure des murs	m^2
		A_i	Zone intérieure des murs	m^2
		C_p	La capacité thermique des flux	J/k
		C_{p_c}	Chaleur spécifique de charge	$\text{J}/\text{kg}\cdot\text{k}$
		C_{p_g}	Moyenne de chaleur spécifique des fumées	$\text{J}/\text{kg}\cdot\text{k}$
		CV	Pouvoir calorifique du combustible	kJ/kg
		h	Coefficient de transfert de chaleur convectif	$\text{W}/\text{k}\cdot\text{m}^2$
		H_f	Chaleur fournie par le combustible	kW/h
		H_g	La perte de chaleur dans les fumées	$\text{Cal}/\text{m}\cdot\text{h}$
		H_r	Énergie de réaction	cal
		H_s	Pertes à travers les parois du four	$\text{w}/\text{m}\cdot\text{k}$
		k	Conductivité thermique des murs	$\text{W}/\text{m}\cdot\text{k}$
		m	Le débit massique total d'alimentation	Kg/h
		P_f	La puissance mécanique	W
		P_w	La puissance hydraulique	W
		q	Le débit de chaleur requis ou enlevé	J/h
		Q	Débit volumique de liquide	m^3/h
		Q_c	Débit de charge	Kg/h
		Q_f	Débit de carburant	Kg/h
		Q_g	Débit de gaz de combustion	m^3/h
		q_{perte}	Pertes de chaleur	$\text{W}/\text{m}\cdot\text{k}$
		T_a	Température ambiante	$^{\circ}\text{C}$
		T_c	Température de sortie de charge	$^{\circ}\text{C}$
		T_g	Température de sortie des fumées	$^{\circ}\text{C}$

Introduction générale

Le défi des raffineries modernes dans la concurrence mondiale toujours croissante est d'augmenter leur marge de raffinage et par là leurs bénéfices. De nos jours, la concurrence mondiale oblige les raffineries à maximiser l'intensification et l'optimisation des processus, qui sont des opérations nécessaires pour augmenter les marges de raffinage.

Tout d'abord, nous devons considérer le contexte : pourquoi l'optimisation des unités de processus de raffinage est si courante et si nécessaire. Le principal problème est que le raffinage du pétrole brut soit un processus continu et à grand volume avec des coûts de matières premières et d'énergie très importants. Les matières premières de pétrole brut varient continuellement en qualité, en disponibilité et en coût, tandis que les produits de raffinage et leurs marchés sont très dynamiques en termes de demande, de spécifications et de prix, ce qui nous oblige à améliorer l'efficacité de chacun de ces processus afin de pousser l'exploitation vers le profit.

Le reforming catalytique constitue le trait dominant de ce développement et figure parmi les premiers procédés utilisés à grande échelle dans cette industrie car le but de ce processus est essentiellement la transformation de coupes pétrolières à faible indice d'octane (40 à 60), couramment appelées naphthas en carburant à haut indice d'octane. Cette amélioration de l'indice est le résultat d'une forte augmentation de la teneur en aromatiques, qui nous permet d'éviter le phénomène de cliquetis dans les moteurs à essence, puisqu'un faible indice d'octane est considéré comme l'une des principales causes de la présence des cliquetis.

Cette étude d'optimisation sur le procédé de Reformage a été menée pour étudier l'influence des principaux paramètres opératoires sur la teneur en aromatiques du reformat ainsi que la consommation d'énergie.

L'objectif de cette étude est de déterminer la possibilité d'augmenter le rendement des aromatiques de l'essence sans augmenter la consommation d'énergie.

Notre travail s'inscrit dans l'optique de l'optimisation des mélanges d'essences dans la Raffinerie d'ADRAR (RA1D). Nous avons opté pour le plan suivant :

- Dans un premier lieu, nous allons décrire une généralité sur le Reformage catalytique pour être familiarisé avec les notions nécessaires.
- En deuxième lieu, nous allons donner un aperçu général sur la Raffinerie d'adrar et décrire le principe de fonctionnement de leur unité de Reformage catalytique puis présenter tous ces paramètres opératoires.
- La modélisation et la simulation de la section Réactionnelle de Reformage catalytique seront traitées dans le troisième chapitre tout en mettant l'accent sur les étapes majeures de la simulation.

- Le quatrième chapitre est consacré la discussion des résultats de l'étude paramétrique faite par le logiciel du plan d'expérience « MODDE 6.0 », afin d'optimiser le process du Reformage.
- Nous clôturerons notre étude par une conclusion suivie de quelques perspectives.

Chapitre I. Généralités sur le Procédé de Reformage Catalytique

I. Généralité sur le raffinage du pétrole

I.1. L'industrie pétrolière :

L'industrie pétrolière a eu un rôle majeur dans les grands événements de ces 150 dernières années : elle a accompagné les grandes découvertes et ainsi permis le développement économique. Les produits pétroliers sont présents dans notre vie de tous les jours et sont souvent synonymes de confort et de qualité de vie [1]. Certes les critiques ne sont pas absents : pétrole et politique, pétrole et environnement, mais pour longtemps encore, le pétrole aura un rôle déterminant dans le monde développé et peut-être encore plus dans les pays en voie de développement.

L'industrie pétrolière, comme elle l'a d'ailleurs déjà largement entrepris, devra répondre à des exigences accrues de qualité, en particulier en matière de protection de l'environnement. L'énergie fossile et donc forcément de disponibilité limitée, le pétrole offre encore des ressources considérables, soit par l'accès à de nouveaux domaines de production, soit par l'amélioration des taux de récupération, ou encore par la mise en exploitation du pétrole non conventionnel [1].

La production du pétrole implique deux systèmes généraux distincts mais intimement liés : le réservoir, qui est un milieu poreux avec des caractéristiques de stockage et d'écoulement uniques ; et les structures artificielles, qui comprennent le puits, une tête de puits et les installations de collecte, de séparation et de stockage en surface [2]. La séparation du pétrole au niveau des raffineries devra répondre à des normes sévères et ce, quelle que soit la nature des bruts dont ils seront issus, alors que la demande finale ira de plus en plus vers des produits légers (carburants, base pétrochimiques, gaz liquéfiés) et quelques produits de spécialités (bitumes, lubrifiants).

I.2. Le raffinage du pétrole

2.1. Historique du raffinage :

À la fin des années soixante, le raffinage du pétrole a subi des transformations liées à l'accroissement continu des besoins en produits légers (essences-gazoles) au détriment des produits lourds (fuels) comme l'indique le tableau I.1.

Tableau I.1. Evolution mondiale de la demande en produits pétroliers

Produit pétrolier (% masse)	1973	1990	2000
Produits légers	29.5	35	37-39
Produits moyens	30	36	39-41
Produits lourds	40.5	29	20-24

L'évolution de la demande s'est également accompagnée de l'amélioration de la qualité des produits, illustré par exemple par l'augmentation de l'indice d'octane des essences et l'augmentation de l'indice de cétane des gazoles. Avec l'introduction de nouvelles normes antipollution, ainsi que les limitations envisagées dans la constitution chimique des produits finis, le schéma de raffinage (figure I.1) devra s'adapter aux nouvelles spécifications par la mise en place de nouveaux procédés.

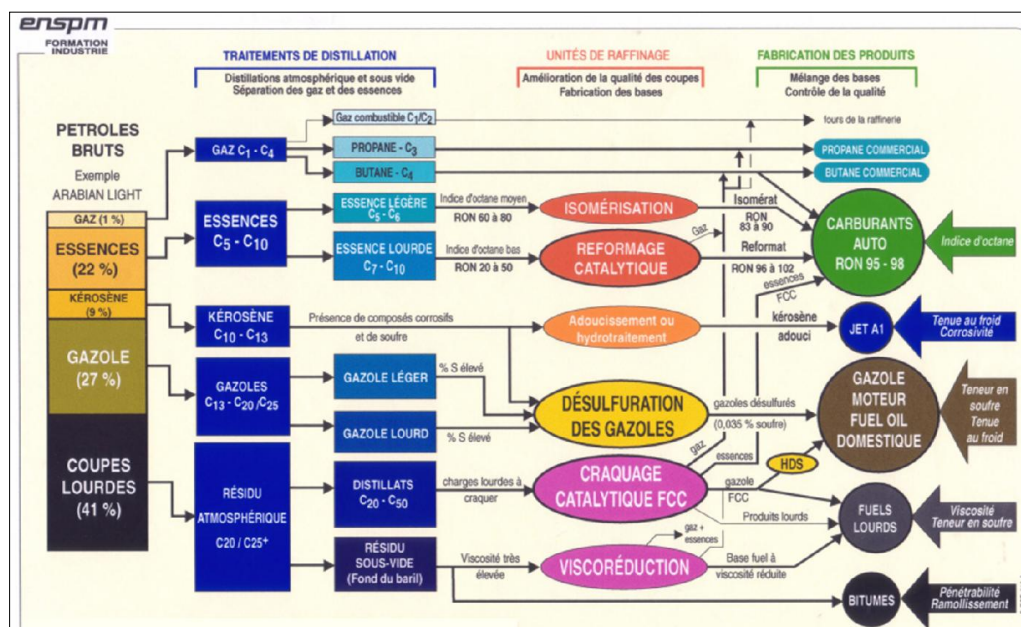


Figure I.1. Schéma de principe de raffinage et ses différentes opérations.

Le tableau I.2 indique l'évolution prévisible des fourchettes de spécification pour quelques grands produits. Grâce à sa souplesse, le raffinage peut répondre à cette évolution de la demande et de la qualité [3].

- Début des années 1970 : raffinerie simple (carburants, combustible lourds).
- Fin des années 1980 : première étape de l'introduction de la conversion des produits lourds.
- A moyen terme de 2020 : raffinerie complexe, respectant l'environnement et assurant la conversion totale des produits lourds.

Tableau I.2. Spécifications des produits finis et futures contraintes pour l'Europe

Produits	Spécification	Situation en 1991	Evaluation prévisible (2000-2020)
Essence	NOR	89-94	95-98
	NOM	80-84	85-88
	Benzène (%masse)	3-5	1-2
	Aromatiques (% vol)	30-50	20-30
	Oléfines (%vol)	10-20	5-10
	Soufre (ppm)	300-500	50-100
Gazole	Soufre (%masse)	0.2-0.5	0.05
	Nombre de cétane	45-50	50-53
	Aromatiques (%vol)	25-35	10-20
Fuel lourd	Soufre (%masse)	3-4	0.5-1
	Azote (%masse)	0.5-0.7	0.3-0.5

2.2 Distillation atmosphérique du pétrole brut

Le premier traitement subi par le pétrole brut en raffinerie est une distillation sous pression atmosphérique qui classe les hydrocarbures en fonction de leur point d'ébullition et permet ainsi d'obtenir une série de coupes ou fraction : gaz, essence légère, essence lourde, kérozène, gasoil et résidu. Ces produits sont sélectionnés pour satisfaire essentiellement les spécifications et le produit peut être considéré comme commercial, ou bien le satisfait pas et la fraction n'est qu'un produit intermédiaire qui devra subir des transformations ultérieures qui. Elle-même, exigent souvent des spécifications de compositions [4]. D'une manière générale, on peut classer les coupes du raffinage comme suivant :

- des gaz combustibles C_1 - C_2 qui serviront à alimenter les fours de la raffinerie.
- du propane commercial C_3 et du butane commercial C_4 .
- des essences légères C_5 - C_6 et lourdes C_7 - C_{10} qui seront transformées en bases carburant respectivement par les procédés d'isomérisation et de reformage catalytique.
- du kérosène C_{10} - C_{13} qui après élimination des composés corrosifs constituera le carburant d'aviation.
- des gazoles C_{13} - C_{25} qu'il faudra désulfurer dans des unités adaptées pour qu'ils puissent être utilisés comme carburant dans les véhicules diesel.
- des distillats C_{20} - C_{50} et un résidu sous vide, difficiles à utiliser directement, qui seront craqués respectivement dans des unités de craquage catalytique et de viscoréduction afin de les valoriser en produits plus légers [5]

2.3 Distillation sous vide

La distillation sous vide du résidu atmosphérique complète la distillation primaire, permettant ainsi la récupération des coupes de distillat lourd à partir des résidus atmosphériques qui subissent bien une conversion supplémentaire ou serviront de bases d'huile lubrifiante. Le résidu sous vide contenant la plupart des contenants bruts (métaux, sels, sédiments, soufre, azote, asphaltènes, etc.) est utilisé pour la fabrication de l'asphalte, pour le fioul lourd ou pour l'alimentation d'autres procédés de conversion [3]

I.3. Le reformage catalytique

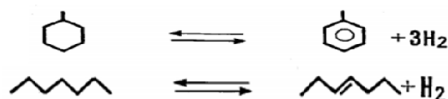
3.1 Principe :

Le reformage catalytique du naphta a évolué rapidement au cours des quatre dernières décennies pour devenir l'un des procédés les plus importants dans l'industrie du raffinage. Le reformage a pour but de transformer une coupe pétrolière à faible indice d'octane (naphta lourd) en une essence à indice d'octane élevé. Pour cela, il est nécessaire d'isomériser des alcanes linéaires en alcanes ramifiés et d'augmenter la teneur en composés aromatiques par déshydrogénation des cycloalcanes ou déshydrocyclisation des alcanes. Cette opération est effectuée de façon catalytique. Le reformage s'effectue vers 530°C, donc à plus haute température que le craquage. Le reformage utilise comme catalyseur le platine, d'où le nom de « Platforming » donné à ce type de procédé. On obtient de 75 à 80 % d'essence reformée à haut indice d'octane, des gaz liquéfiés et environ 1% en poids d'hydrogène, considéré aujourd'hui comme un précieux réactif pour l'épuration des produits par désulfuration. Le mélange obtenu contient beaucoup de composés aromatiques (benzène, toluène, xylène), constituants de certaines essences et matières premières de l'industrie chimique. L'opération de reformage catalytique est conduite sous une pression de 20 à 40 atmosphères en présence d'hydrogène fabriqué par la réaction, ce qui évite la formation de coke [6].

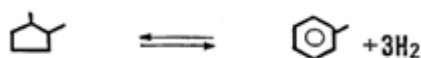
3.2 Réactions mises en jeu

Seules les aromatiques et les isoparaffines présentent des indices d'octane compatibles avec les spécifications. La transformation dans l'unité de reformage consistera donc à convertir les hydrocarbures de la charge en un mélange d'aromatiques et d'isoparaffines le plus sélectivement possible. Les réactions recherchées sont :

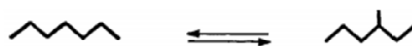
- Les réactions de déshydrogénation des paraffines ou des cycloalcanes qui produisent respectivement une mole d'oléfine et une mole d'hydrogène, ou une mole d'aromatique et 3 moles d'H₂.



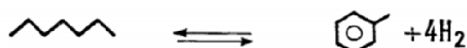
- Les réactions d'isomérisation des alkylcyclopentanes en alkylcyclohexanes qui vont conduire par déshydrogénation à l'aromatique correspondant avec production de 3 moles d' H_2 .



- Les réactions d'isomérisation des paraffines en isoparaffines.



- Les réactions de déshydrocyclisation des paraffines en aromatiques avec production de 4 moles d' H_2 .



3.3 Données thermodynamiques des réactions

Les réactions de déshydrogénation des cycloalcanes et de déshydrocyclisation des paraffines qui produisent des aromatiques sont des réactions fortement endothermiques, $\Delta H = + 209$ et **260 kJ/mol respectivement**. Elles seront donc thermodynamiquement favorisées à haute température et basse pression. Les réactions d'isomérisation des paraffines, des cycloalcanes ou des aromatiques, sont faiblement exothermiques, $\Delta H = - 10$ kJ/mol et se produisent sans variation du nombre de moles. Elles sont donc indépendantes de la pression et favorisées à basses températures. Les conditions opératoires optimales déterminées par la thermodynamique des réactions recherchées sont donc une température élevée de l'ordre de 500 °C et une pression d'hydrogène la plus faible possible. Malheureusement, des réactions parasites telles que la dismutation des aromatiques, l'alkylation des aromatiques par les oléfines, le craquage, l'hydrodoalkylation et le cokage, apparaissent dans les conditions de mise en œuvre habituelle du reformage. Il est important de noter que la plupart de ces réactions consomment de l'hydrogène [5].

3.4 Le procédé du reformage catalytique

À l'heure actuelle, plusieurs procédés sont utilisés dans l'industrie du raffinage ; les principales différences entre ces processus sont : la nature des catalyseurs (qui peut être mise en œuvre soit en lit fixe, soit en lit mobile), les procédures de régénération des catalyseurs et la conformation de l'équipement [7].

Les processus de reformage sont généralement classés en trois types : *semi-régénératifs*, *cyclique* (entièrement régénératif), ou *processus de régénération continue* (lit mobile). Cette classification est basée sur la fréquence et le mode de régénération.

3.4.1 Le procédé semi-régénératif (lit fixe)

La technologie la plus ancienne dans laquelle la charge totale de catalyseur est répartie de manière inégale dans trois réacteurs successifs de taille croissante (figure I.2). La quantité de catalyseur dans les réacteurs est d'autant plus faible que la vitesse de la réaction considérée est élevée. Ainsi, les réactions de déshydrogénation se déroulent pour partie dans le premier réacteur et l'autre partie dans le second avec les réactions d'hydroisomérisation, les réactions de déshydrocyclisation des paraffines ayant lieu dans le dernier réacteur avec les réactions parasites de craquage. Des fours placés devant chaque réacteur permettent de compenser l'endothermicité des réactions. A la fin du cycle, l'unité est arrêtée pour que le catalyseur soit régénéré, soit directement dans l'unité, soit hors site. La durée de cycle dans les reformages semi-régénératifs est de l'ordre de 1 an. Dans le meilleur des cas, le catalyseur peut subir une vingtaine de régénérations avant d'être remplacé [5].

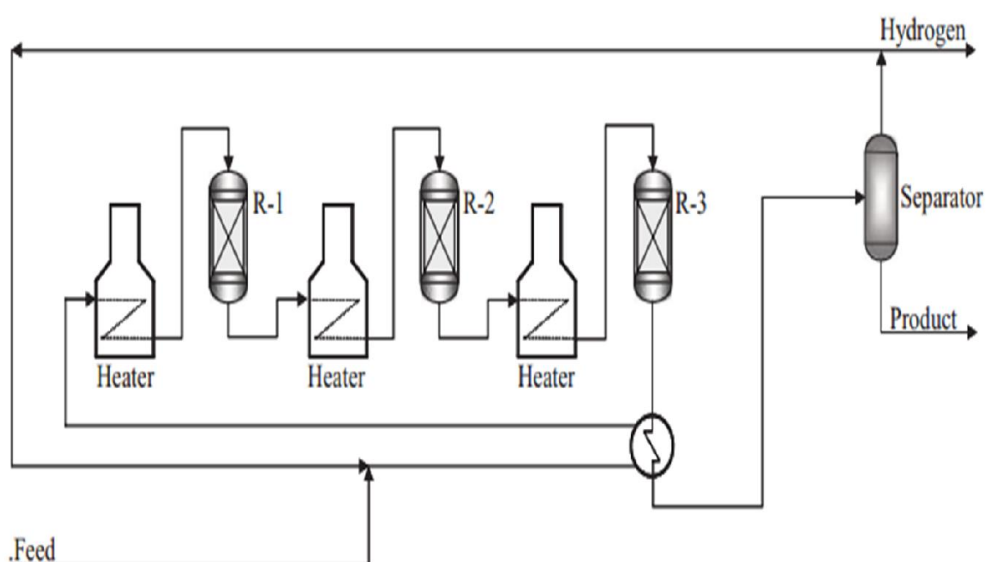


Figure I.2. Schéma du procédé semi-régénératif.

3.4.2 Le procédé cyclique ou lit circulant

Outre les réacteurs de reformage catalytique, le processus de régénération cyclique comporte un réacteur alterné supplémentaire (swing reactor), qui est utilisé lorsque le catalyseur à lit fixe de l'un des réacteurs réguliers doit être régénéré. Le réacteur avec le catalyseur régénéré devient alors le réacteur de réserve. Par ce moyen, le processus de reformage maintient un fonctionnement continu. Le fonctionnement à une pression inférieure (~ 1.4 Mpa) permet au processus de régénération cyclique d'atteindre un rendement de reformat et une production d'hydrogène plus élevés. Par rapport au type semi-régénératif, dans le processus de

régénération cyclique, l'activité globale du catalyseur varie beaucoup moins avec le temps, de sorte que la conversion et la pureté de l'hydrogène sont maintenues plus ou moins constantes pendant toute l'opération. Le principal inconvénient de ce type de reformage catalytique est la nature complexe de la politique de commutation des réacteurs, nécessitant des précautions de sécurité élevées. De plus, pour permettre des commutations entre réacteurs, ils doivent être de la même taille maximale.

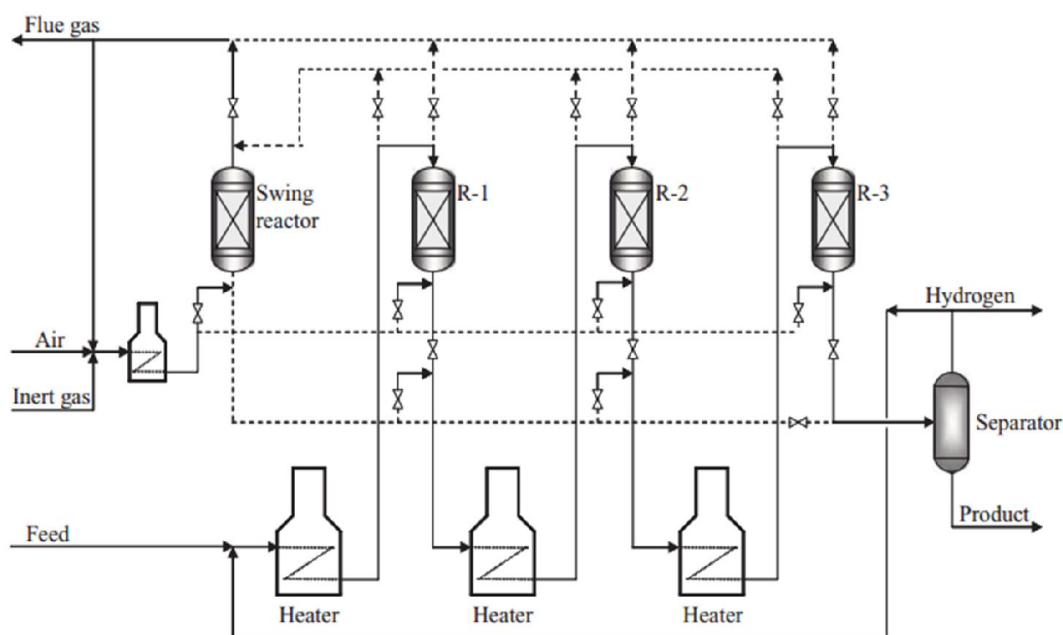


Figure I.3. Schéma de procédé cyclique.

3.4.3 Le procédé de régénération continue ou lit mobile

Le processus de reformage continu a été développé par UOP à la fin des années 1960 pour produire de grandes quantités de reformat à indice d'octane élevé et d'hydrogène de haute pureté sur une base continue. Le procédé est caractérisé par une activité élevée du catalyseur avec des besoins réduits en catalyseur, un reformat plus uniforme, une teneur en aromatiques plus élevée et une pureté d'hydrogène élevée. Le processus peut atteindre et dépasser les sévérités de reformage telles qu'appliquées dans le processus cyclique, mais évite les inconvénients du processus cyclique. Dans ce processus, de petites quantités de catalyseur sont soutirées en continu d'un réacteur en fonctionnement, transportées vers une unité de régénération, régénérées et renvoyées au système de réacteur. Dans la conception à lit mobile la plus courante, tous les réacteurs sont empilés les uns sur les autres [7].

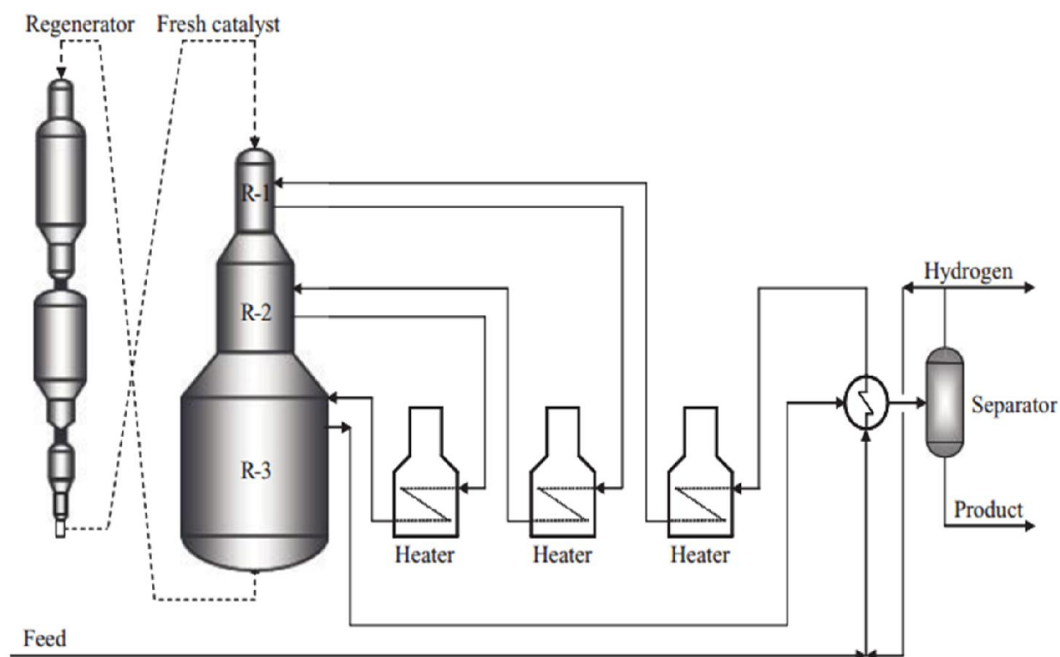


Figure I.4. Reformeur à régénérateur continu.

3.4.4 Les procédés de reformage catalytique commercial

Plusieurs processus de reformage commercial sont disponibles dans le monde entier. Ces processus diffèrent par le type d'opération, le type de catalyseur et la conception de l'ingénierie des processus. Tous les concédants de licence conviennent de la nécessité d'hydrotraiter l'alimentation pour éliminer les poisons du catalyseur de reformage permanents et pour réduire les poisons du catalyseur temporaires à de faibles niveaux. Le premier procédé de reformage catalytique commercial a été introduit aux États-Unis en 1939 ; en raison de la forte demande d'essence et d'aromatiques à indice d'octane élevé [7]. Il existe plus de 800 installations commerciales de catalyse, dont a plupart des reformeurs de base sont équipés d'une régénération continue du catalyseur.

I.4 Les équipements utilisés :

4.1. Réacteurs

Au début, les pressions utilisées étaient supérieures à 50 bars et les pertes de charges par réacteurs avaient une influence faible par rapport à la perte de charge totale. C'est pourquoi, à cette époque, les réacteurs axiaux qui ont des structures internes simples et, sont donc moins couteux, ont été choisis pour la mise en œuvre du procédé. Ce type de réacteurs est utilisé dans les reformeurs catalytiques à régénération semi-catalytique à lit fixe. Le réacteur radial a commencé à apparaître vers les années 1970 en même temps que les catalyseurs

bimétalliques qui permettent d'opérer à pression inférieurs à 25 bars. Dans ce cas, les pertes de charge dans les réacteurs deviennent significatives par rapport aux pertes de charges totales. De plus, le coût de la compression de l'hydrogène de recyclage devient non négligeable. Ce type de réacteurs sont largement utilisés dans le reformage semi-régénérateur à lit fixe.

L'évolution vers le reformage régénératif et la mise en œuvre de circulation continue de catalyseur ont imposé définitivement ce type de réacteur à faible perte de charge, l'évolution vers des pression totales de 3 bars ne laisse pas d'autre choix. Les réacteurs sont réalisés en aciers au carbone faiblement alliés qui résistent à la corrosion par l'hydrogène ainsi qu'aux atmosphère oxydante lors des régénérations et des oxychlorations [1]. Un troisième type de réacteur est le réacteur sphérique, qui est principalement utilisé dans les reformeurs régénératifs à catalyseur cyclique. Les principales caractéristiques des réacteurs sphériques sont similaires à celles du réacteur à lit fixe à écoulement descendant, à l'exception des plus grands diamètres du réacteur sphérique, qui pourraient poser des problèmes pratiques avec le nivellement du catalyseur et le mélange de billes inertes pendant le chargement du catalyseur.

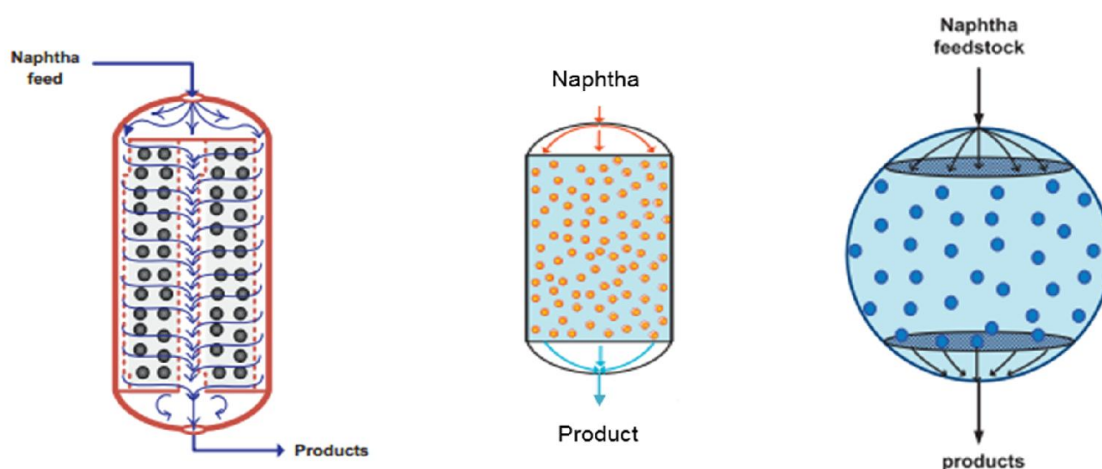


Figure I.5. Réacteur radial, axial et sphérique.

4.2 Réchauffeurs du processus

Le processus de reformage catalytique est endothermique en raison des réactions de déshydrogénation du naphène hautement endothermiques. Un transfert de chaleur vers les réactifs et l'hydrogène est nécessaire avant d'alimenter le réacteur principal et pour le transfert de chaleur vers les réactifs et le mélange de produits intermédiaires entre les réacteurs. La charge de naphtha et l'hydrogène sont chauffés initialement par échange de

chaleur avec l'effluent produit du dernier réacteur dans un échangeur de chaleur d'alimentation combiné. Entre les réacteurs, l'effluent d'un réacteur est chauffé pour fournir la chaleur nécessaire aux réactifs. Des appareils de chauffage sont utilisés pour fournir la chaleur nécessaire. Le réchauffeur à combustion est un échangeur de chaleur qui utilise les gaz chauds de combustion pour augmenter la température d'une alimentation circulant à travers des bobines de tubes disposés à l'intérieur du réchauffeur. Le gaz naturel, le gaz combustible de raffinerie, les gaz résiduels et les huiles résiduelles sont généralement utilisés comme combustibles pour les chauffages au feu ou les chauffages de traitement. Selon l'utilisation, les appareils de chauffage au feu sont également appelés fours et appareils de chauffage [8].

4.3 Les échangeurs de chaleur

Un échangeur de chaleur est un équipement utilisé dans le transfert de chaleur entre un objet solide et un fluide ou entre deux fluides ou plus. La coque et le tube, la plaque soudée, la plaque et la coque, l'ailette de la plaque, le tube et le tube, les échangeurs de chaleur verticaux et l'équipement de récupération de chaleur représentent une variété de certains des échangeurs de chaleur utilisés. Pour la plupart des applications dans les reformeurs catalytiques et en particulier pour les échangeurs combinés d'alimentation et d'effluents, les échangeurs à coque et à tube (à tube et à calandre) et à plaques soudées sont principalement utilisés [8].

4.4 Les compresseurs du gaz

Les compresseurs de gaz sont utilisés dans les reformeurs catalytiques et pour diverses applications dans les unités de raffinage du pétrole et de pétrochimie comme compresseurs de gaz d'appoint et de recyclage. Dans un reformeur catalytique, le gaz riche en hydrogène d'un séparateur de gaz est renvoyé à l'aspiration des compresseurs d'hydrogène gazeux recyclés. Le gaz est comprimé et recyclé dans le réacteur pour servir de réactif et fournir de l'hydrogène pour réduire les taux de formation de coke et de dépôt de coke sur le catalyseur dans les réacteurs [8].

Chapitre II. Paramètres Opérateurs du Reformage Catalytique de la Raffinerie d'Adrar

Introduction

Ce chapitre a pour but de décrire le principe de fonctionnement de l'unité de reformage catalytique de la raffinerie d'Adrar (RA1D) et de présenter les paramètres opératoires de ce procédé qui ont été collectés et relevés in-Situ.

II.1 Présentation de la raffinerie d'Adrar

1.1 Situation géographique :

La raffinerie d'Adrar (RA1D) est située au sud algérien à environ 1400 km de la capitale Alger, elle occupe une superficie totale de 84 hectares dont 37 hectares occupés par le process. Elle est construite sur un site se trouvant à 2 km à l'est de la commune de SbAA et à 44 km au nord d'Adrar (figure II.1). Elle est limitée :

- Au Nord : par la daïra de Tsabit,
- Au Sud : par la commune de Gourara,
- À l'Ouest : par la commune de Sbaa,
- À l'Est : par un terrain non urbanisé.

L'alimentation en pétrole brut se fait à partir des gisements situés dans la cuvette d'Oued Tourhar, Oued Zine, Foukroun et spécialement de Hassi Ilatou, Touat est le gisement du gaz naturel de Sbaa.

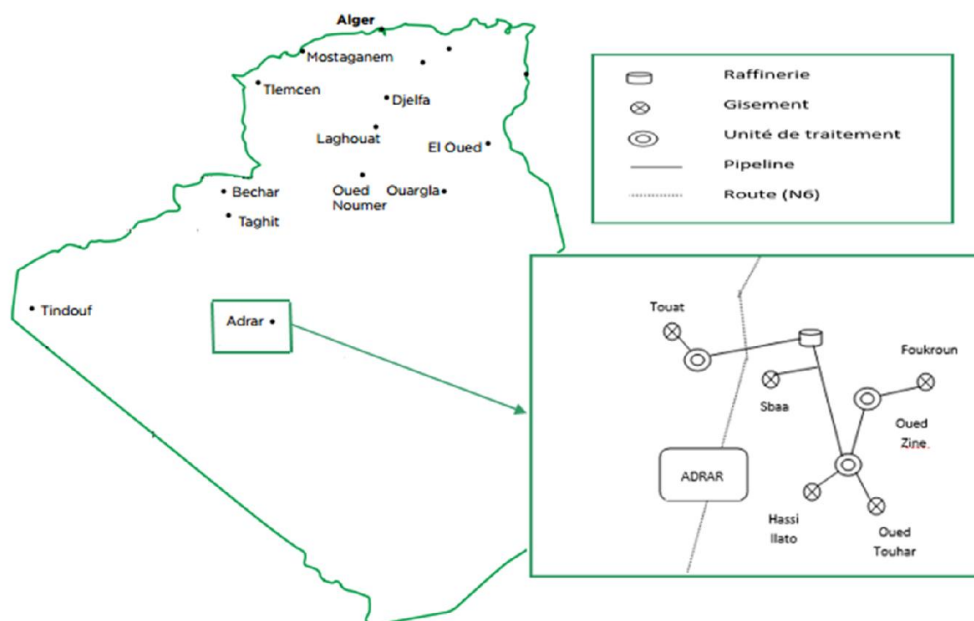


Figure II.1. Situation géographique et gisements pétroliers de la raffinerie

1.2 Les différentes unités de la raffinerie

Le projet de raffinerie SBAA d'Adrar, construit en 2006, se compose de 6 aires spécialisées comportant les unités suivantes :

❖ *Unités de process*

- Une unité de distillation atmosphérique de brute (CDU)
- Une unité de reformage catalytique de naphta (CRU)
- Une unité de craquage catalytique de résidu atmosphérique (RFCC)
- Unité de séparation de GPL

❖ *Unité de stockage des produits finis*

❖ *Unité des utilités et auxiliaires*

❖ *Routes intérieures*

❖ *Administration*

❖ *Base de vie*

1.3 Capacité de production [9]

La capacité annuelle de traitement de la raffinerie de Saba est de 600 000 tonnes environ de pétrole brut pendant une période de 330 jours en continu par jour de vingt-quatre (24) heures (8000h).

Tableau II.1. Les quantités produites par l'unité.

Produits	Quantités (tonnes/an)
Propane	20 500
Butane	32 500
Essence super	10 000
Essence normal	208 300
Kerosene (Jet A1)	30 000
Gas oil	238 400
Fuel oil	13 000

1.4. Spécifications physico-chimiques du pétrole brut de Hassi Ilatou et d'OTRA

Le tableau (II.2) donne les spécifications physico-chimiques des deux pétroles bruts des gisements d'OTRA et de Hassi Ilatou. Selon les valeurs de la densité et la teneur en soufre (critères les plus importants dans la classification des pétroles) nous pouvons dire que le pétrole exploité au niveau de la raffinerie de Sbaa constitué du mélange des deux bruts est un pétrole léger de faible teneur en soufre. Ainsi, ce pétrole est identifié comme étant un pétrole intermédiaire de premier choix

Tableau II.2. Propriétés physico-chimiques de pétrole brut de Hassi Ilatou et d'OTRA [9]

Analyse	Unité	Hassi Ilatou	OTRA	
API°	/	42.80	38.97	
Densité (20°C)	g/cm ³	0.8078	0.8260	
Viscosité (20°C)	mm ² /s	11.77	9.226	
Viscosité (40°C)	mm ² /s	7.44	7.218	
Point de congélation	°C	-24	-26	
Carbone résiduel	w%	4.69	1.43	
Soufre	µg/g	662	100	
Nitrogène	µg/g	513	0.1	
Eau	w%	Trace	0	
Point flash	°C	<30	<30	
Acidité	mgKOH/g	<0.02	<0.02	
Salinité (présente de sel)	mgNaCl/l	50	7.6	
Collide	w%	8.5	6.0	
Concentration en paraffine	w%	4.4	2.2	
	Fe	µg/g	2.8	1.2
	Ni	µg/g	2.1	1.3
	Cu	µg/g	0.1	0.1
Contenu en métal	V	µg/g	1.1	2.5
	Pb	µg/g	<0.1	<0.1
	Ca	µg/g	1.2	4.2
	Mg	µg/g	0.4	0.2
	Na	µg/g	38.6	1.0

II.2 Unité de Reformage catalytique (CRU)

L'unité reforming catalytique (figure II.2) est conçue pour traiter 116 000 tonnes par an de charge naphta pour but de convertir les essences provenant de la distillation atmosphérique en essences de qualité supérieure, à haut indice d'octane. Cette unité est divisée en trois sections :

- Section de Préfractionnement : a pour but de séparer la charge en une coupe légère et une coupe plus lourde recueillie au fond de la colonne.
- Section de Prétraitement : a pour but d'éliminer les impuretés et les éléments toxiques contenus dans la charge afin de préserver l'activité chimique du catalyseur
- Section Reforming : a pour but d'améliorer l'indice d'octane en présence de catalyseur spécifique.

Les produits de l'unité sont essentiellement du carburant à haut indice d'octane, des L.P.G, du naphta léger (light naphta), naphta traité, des gaz incondensables et de l'hydrogène

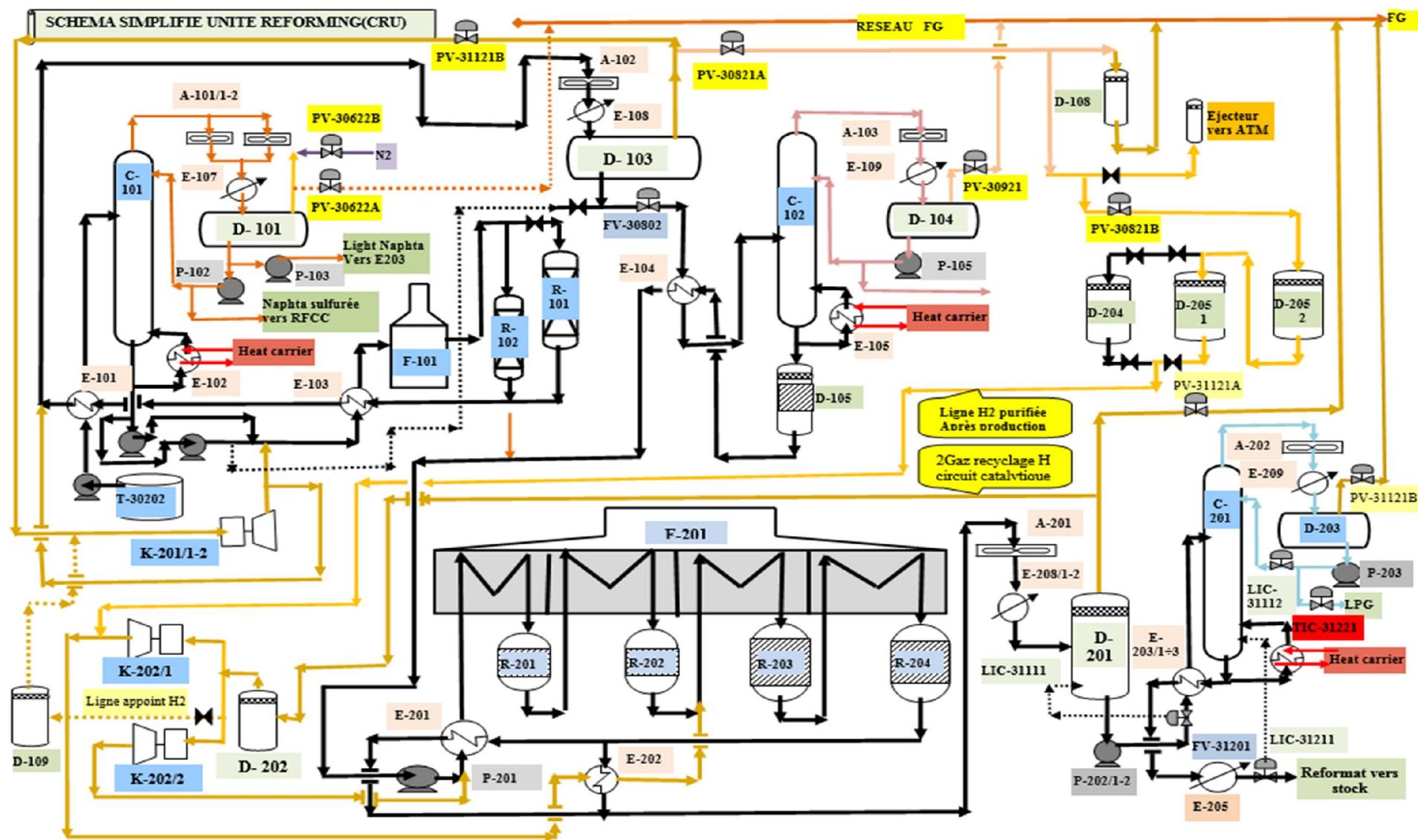


Figure II.2. Unité reforming catalytique de la raffinerie d'Adrar

2.1. Description du procédé de l'unité CRU

2.1.1 Section de Préfractionnement

La charge est aspirée à partir du bac de stockage par la pompe P-30205 /1.2 puis refoulée à travers les échangeurs : E-101 / 1.2.3 pour chauffage. À la sortie des échangeurs, la charge acquiert une température de 159 °C et entre dans la colonne de préfractionnement C-101 au niveau des plateaux 20 et 24. Après séparation, les fractions légères sont refroidies par l'aéroréfrigérants A-101 et le condenseur E-107 puis sont recueillies dans le ballon de reflux D-102. Les gaz incondensables sont évacués vers le réseau fuel gaz, tandis que la phase liquide est refoulée vers la tête de la colonne comme reflux par les pompes P-102 / 1.2 et P-103 /1.2 vers entrée E-203 / 1-3 (échangeurs de chauffage de la charge du stabilisateur C-201) et vers stockage comme naphta léger. Le tableau II.2 donne bilan de matière design de la section de préfractionnement.

Tableau II.3. Bilan de matière section de préfractionnement

		% (poids)	kg/h	t/j	10 ⁴ t/an
Alimentation	Naphta	100	14500	348	11.6
	Total	100	14500	348	11.6
Produits	Light Naphta	16.69	2420	58.08	1.94
	Charge de prétraitement	83.38	12080	289.92	9.66
	Total	100	14500	348	11.6

2.1.2 Section de Prétraitement

La section de prétraitement de naphta consiste à épurer la fraction du naphta pour que celui-ci puisse être utilisé comme charge à section réactionnel. La section hydrotraitement a pour rôle d'éliminer les composants indésirables (métaux ou non métaux) contenus dans la charge afin de protéger le catalyseur de reforming. Il s'agit d'un traitement à l'hydrogène qui permet d'éliminer le soufre et l'azote sous forme d'hydrogène sulfuré « H₂S » et d'ammoniac « NH₃ » volatils et en même temps à saturer les oléfines et de piéger les métaux ; pour obtenir des produits de haute qualité. Le catalyseur choisi pour cette section est le catalyseur RS-1, il se présente sous forme d'extrudé d'alumine de très haute pureté de 1,4 mm de diamètre (tableau II.3).

Tableau II.4. Caractéristique du catalyseur de la section Prétraitement [10]

Catalyseur	Composition (wt %)	Support	Grain (mm)	Densité	Rigidités	Volume Poreux	Capacité
Co-w – Ni-Al ₂ O ₃ (RS-1)	NiO: 2.0 CoO: 0.03 wO3: 19.0	Al ₂ O ₃	Ø1.5	0.88 kg/l	≥16N/mm	0.27 ml/g	3.79

Le fond de la colonne C-101 est refoulé par la pompe P-104 / 1.2 vers les échangeurs E-103 /1-3. À l'entrée de ces échangeurs, de l'hydrogène refoulé par le compresseur K-101/1.2 est mélangé à la charge. A la sortie de ces échangeurs, le mélange (charge +hydrogène) entre dans le four F- 101 puis dans le réacteur R-101 à une température de 320 °C pour subir les réactions de désulfuration, de dénitrogénéation, demétalisation, etc., décrites ci-après :

- **Désulfuration** (Mercaptans « RSH » : $RSH + H_2 \rightarrow H_2S + RH$, Sulfures « RSR' » : $RSR' + 2H_2 \rightarrow RH + R'H + H_2S$, Disulfures « RSSR' » : $RSSR' + 3H_2 \rightarrow RH + R'H + 2H_2S$)
- **Dénitrogénéation** ($RNH_2 + H_2 \rightarrow RH + NH_3$, $NH_3 + HCl \rightarrow NH_4Cl$)
- **Hydrogénation des hydrocarbures oxygénés** ($ROH + H_2 \rightarrow RH + H_2O$, $RCO_2H + 3H_2 \rightarrow RCH_3 + 2H_2O$)
- **Saturation des oléfines** ($C_nH_{2n} + H_2 \rightarrow C_nH_{2n+2}$)
- **Elimination des métaux** : Les métaux sont éliminés sous forme de dépôts sur le catalyseur, sans influencer à son activité, car il a été conçu pour supporter ces dépôts.

À la sortie du fond du réacteur R-101, la charge purifiée cède la chaleur au mélange à travers l'échangeur E-103/1-3 puis à la charge C-101 dans E-101/1-3. Le refroidissement se poursuit dans les aéroréfrigérants A-102 et le condenseur E-108. Le mélange biphasique est recueilli dans le ballon accumulateur D-103. Les gaz sont évacués vers le réseau fuel-gaz et le liquide constituant la charge C-102, après chauffage dans les échangeurs E-104/1-3, alimente la colonne au 11^{ème} plateau. Après séparation les vapeurs sont refroidies dans l'aéroréfrigérant A-103 et le condenseur E-109. Le mélange biphasique retenu dans le ballon D-104 est séparé en gaz incondensables qui sont finalement évacués vers le réseau fuel gaz et une phase liquide qui est refoulée vers la tête de la colonne comme reflux et vers l'unité F.C.C. Le fond de la colonne qui constitue la charge raffinée est refoulée vers la section reforming ou vers le bac de stockage T-30201. Le tableau II.4 donne bilan matière design de la section.

Tableau II.5. Bilan matière de prétraitement

		% (poids)	kg/h	t/j	10 ⁴ t /an
Alimentation	Charge De prétraitement	100.00	12,080	289.92	9.66
	Total	100.00	12,080	289.92	9.66
Produits	Gaz riche en H ₂ + pertes	12.38	1,496	35.904	1.20
	LPG	1.36	164	3.94	0.13
	Light naphtha	2.51	303	7.27	0.24
	Essence stable	83.75	10,117	242.808	8.09
	Total	100.00	12,080	289.92	9.66

2.1.3 Section réactionnel (reforming)

Le reformage catalytique est le processus de transformation d'hydrocarbures en C⁷ – C¹⁰ à faible indice d'octane en aromatiques et iso-paraffines qui ont un indice d'octane élevé. Il s'agit d'un processus hautement endothermique nécessitant de grandes quantités d'énergie.

La section reforming (figure II.3) utilise 4 réacteurs à lits fixes ; 2 réacteurs à écoulement axial de la charge R-201/1.2 et 2 réacteurs à écoulement radial R-204/3.4, la régénération est en mode discontinu.

Le catalyseur du reforming est un catalyseur bimétallique Pt (Platine)– Re (Rhénium). Le Pt est l'élément métallique essentiel du catalyseur, il a une grande affinité pour les atomes d'hydrogène et est le promoteur de la plupart des réactions du reforming. En plus de cela, le Pt défavorise la contamination du catalyseur. Le catalyseur type (PRT-C) est utilisé au niveau des premiers réacteurs R201/R202 et (PRT-D) au niveau des derniers réacteurs R203/R204. Le tableau II.5 donne les caractéristiques de ces catalyseurs.

Tableau II.6. Caractéristique du Catalyseur de la section Reforming. [10]

Catalyseur	Composition (wt%)	Densité	Volume (tonnes)	Diamètre (mm)	Volume Poreux	Support
PRT-C-	Pt : 0.25 Re : 0.26	0.74	3.455	Ø1.2×3 - 6	0.49 ml/g	Cl /AL ₂ O ₃ : 0.31 Cl/AL ₂ O ₃ : 1.2
PRT-D	Pt : 0.22 Re : 0.46	0.74	9.948	Ø1.2×3 - 6	0.49 ml/g	Cl /AL ₂ O ₃

Le fond de la colonne C-102 est aspiré par la pompe P-201/1.2 à travers le ballon de désulfuration D-105 et les échangeurs E-104 /1-3 puis refoule vers la section reforming. A l'entrée de E-201, l'hydrogène refoulé par le compresseur K-201/1 est mélangé avec la charge de naphta raffiné, le mélange ainsi constitué est chauffé dans cet échangeur, puis dans le four

F-201/1. A la sortie du four, le mélange réactionnel entre dans le réacteur R-201/1 à une température de 492 ° C et une pression de 1.35 MPa. Le produit du 1^{er} réacteur entre dans le four F-201/2 puis dans le réacteur R-202 à la même température et pression 492°C et 1.35 MPa. Le produit du 2^e réacteur est enrichi par un appoint d'hydrogène refoulé par le compresseur K-201/2-3 et chauffé dans E-202 par le fond du 4e réacteur. Le reste des réactions de reforming se poursuivent dans les réacteurs R-203, R-204 à la même température et pression (492°C, 1.35 MPa) après chauffage de la charge dans F-201/3 et F-201/4.



Figure II.3. Section réactionnelle de l'unité CRU

Le produit refroidi quittant la section réactionnelle (mélange liquide-gaz) est séparé dans le ballon D-201. La charge du sommet de ce ballon passe dans un deuxième ballon de séparation D-202 dans lequel le gaz de recyclage riche en hydrogène (H_2 + méthane + éthane +.....) se sépare du liquide (eau + hydrocarbures condensés) et alimente les compresseurs de l'unité en hydrogène. La charge du fond de D-201 est un produit non stabilisé constitué d'un mélange de carburant + L.P.G + gaz incondensables. Après passage dans E-203 /1-3, le mélange de la charge et une partie du naphta léger du ballon de reflux de la colonne de préfractionnement C-101, alimente la colonne de stabilisation C-201 au niveau des plateaux 16 et 20 et à la température $T= 170$ °C. Les vapeurs de tête de la colonne sont refroidies par l'aéro A- 202 et le condenseur E- 209 et le mélange LPG + eau + incondensables est recueilli dans le ballon de reflux D-203. Les L.P.G sont refoulés par la pompe P-203 /1-2 vers la C-201 comme reflux de tête et vers la section gaz plant (fractionnel section). Les gaz incondensables sont évacués vers le réseau fuel gaz. Le fond de la C-201 est refroidi à travers les échangeurs E-203 /1-3 puis dans le condenseur E-205. Le produit de sortie de E-205 ($T = 40$ °C) constitue le carburant super (NO=96) sans Pb est véhiculé vers le stockage. Le tableau II.6 donne le bilan matière de la section reforming.

Tableau II.7. Bilan matière global section reforming.

		% (poids)	kg/h	t/j	10 ⁴ t/an
Alimentation	Naphta	100	14500	348	11.6
	Fuel gas + Pertes	10.32	1496	35.904	1.20
	LPG	1.13	164	3.936	0.13
Produits	Naphta légère	18.78	2723	65.352	2.19
	Essence stable (reformat)	69.77	10117	242.808	8.09
	Total	100	14500	348	11.6

II.3. Collecte et relevé des paramètres opératoires

La campagne de collecte et de relevé des paramètres opératoires s'est déroulée lors de notre stage in situ du 19 Février au 05 Mars 2020. Les données opératoires non relevées sont soit estimées à partir des spécifications de fonctionnement des installations ou du design. Les tableaux ci-après regroupent d'une part les données opératoires des différents flux de matière de la section réactionnelle (T, P et débit) et d'autre part la composition chimique du combustible (gaz naturel), du gaz process ainsi que la charge du naphta entrée -sortie.

3.1 Données opératoires

3.1.1 Réacteurs chimiques

Tableau II.8. Conditions opératoires des réacteurs chimiques

Numéro	Paramètre	Conditions Opératoires					Moyenne
		Design Max	Design Normal	1 ^{er} jour Relevé	2 ^{ème}	3 ^{ème}	
R201	T (°C)	530	492	477	476.7	477	476.9
	P (MPa)	1.9	1.7	-	-	-	1.7
R202	T	530	492	482.4	481.5	482.4	485.2
	P	1.9	1.7	-	-	-	1.7
R203	T	540	498	486.8	486.5	487.4	486.9
	P	1.7	1.5	-	-	-	1.5
R204	T	540	501	492.2	492	492	492.06
	P	1.7	1.5	-	-	-	1.5

3.1.2 Colonne de stabilisation

Tableau II.9. Conditions opératoires et du design de la colonne de stabilisation

N°	Jour Relevé	Paramètre							Plateaux	
		Design (colonne)				Opératoire (fluide)			Nbre	Feed
		P (Mpa)	V (m ³)	T(°C)		T entrée (°C)	T sortie (°C)			
				Tête	Fond		Tête	Fond		
	1 ^{er}					146.7	56.9	196.3		
C201	2 ^{ème}	1.45	21.8	120	260	143	58.5	197.2	40	16/20
	3 ^{ème}					141.5	54.2	197		

3.1.3 Ballons de séparation

Tableau II.10. Conditions opératoires et du design des ballons de séparation

N°	Jour	Paramètre						Moyenne	
		Design			Opératoire			T (°C)	P (Mpa)
		T (°C)	P (Mpa)	V (m ³)	Q (Kg/h)	T (°C)	P (Mpa)		
	1 ^{er}					46.505	1.201		
D201	2 ^{ème}	60	1.4	13.24	20300	32.504	1.2	37.192	1.2
	3 ^{ème}					32.568	1.2		
	1 ^{er}					-	-		
D202 ⁽¹⁾	2 ^{ème}	60	1.35	3.9	9841	-	-	40	1.2
	3 ^{ème}					-	-		
	1 ^{er}					39.2	0.994		
D203	2 ^{ème}	60	2.55	3.5	4842	42	0.994	36.4	0.994
	3 ^{ème}					28	0.994		

⁽¹⁾ Données Design

3.1.4 Fours

Tableau II.11. Conditions opératoires des fours

N°	Jour	Paramètre				Débit Fuel gaz (kg/h)
		T(°C) fluide		P(Mpa) fluide		
		Entrée	Sortie	Entrée	Sortie	
	1 ^{er}	418.3/ 414	477 / 482.4			858.9
F201,		448.8 /467.8	486.8 /492.2			
F202,	2 ^{ème}	419.5/ 412	476.7 /481.8	1.75/1.65/	1.7/1.6/	828.3
F203,		447.9 / 467.4	486.8 / 492	1.55/1.45	1.5/1.5	
F204	3 ^{ème}	420.7/ 412	477 / 482.4			953.9
		447.3 / 467.2	487.4 / 492			

3.1.5 Echangeurs de chaleur

Tableau II.12. Conditions opératoires des échangeurs de chaleur

N°	Coté	Paramètre				
		Q(kg/h)	T(°C)		P(Mpa)	
			Entrée	Sortie	Entrée	Sortie
E201	Tube	16190	58.8	419.5	1.8	-
	Calandre	15062	476	96.4	1.35	-
E202	Tube	4100	54.1	407	1.6	-
	Calandre	5238	476	110	1.35	-
E203	Tube	10117	196.8	83	1.15	-
	Calandre	10459	40	143.6	1.69	-
E205	Tube	24935	32	40	0.5	-
	Calandre	10117	83	40	1.1	-
E208	Tube	54395	32	40	0.5	-
	Calandre	20300	60	40	1.25	-
E209	Tube	22898	32	40	0.5	-
	Calandre	4842	60	40	1.1	-

3.1.6 Aéroréfrigérants

Tableau II.13. Conditions opératoires des aéroréfrigérants

N°	Jour	Paramètre			P (Mpa)	Consommation Annuelle d'Énergie (10 ⁴ kW.h)
		T(°C)				
		E	S			
A201/1-2	1 ^{er}	101.2	46.51			
	2 ^{ème}	94.5	32.5	1.9	21.60	
	3 ^{ème}	93.5	32.44			
A202	1 ^{er}	56.8	41.6			
	2 ^{ème}	58.5	44.1	1.1	11.2	
	3 ^{ème}	54.2	30.9			

3.1.7 Compresseurs

Tableau II.14. Conditions opératoires des compresseurs

N°	Jour	Paramètre				Moyenne				Énergie Nécessaire (kW)	
		Q (m ³ /min)	T(°C)		P(Mpa)		T(°C)		P(Mpa)		
			E	S	E	S	E	S	E		S
K201/1-3	1 ^{er}		42.3	48.5	1.195	1.556					
	2 ^{ème}	193.7	35.7	58	1.191	1.568	39.6	53.27	1.193	1.561	256
	3 ^{ème}		40.8	53.3	1.192	1.559					

3.1.8 Pompes

Tableau II.15. Conditions du design des pompes

N°	Paramètre				Consommation annuelle d'Énergie (10 ⁴ kW.h)
	Q (m ³ /h)	T(°C)	P(Mpa)		
			E	S	
P202201/1-2	17.8	95	0.7	2.18	13.52
P202202/1-2	13.8	40	1.2	1.69	3.6
P202203/1-2	8.7	40	1.05	1.52	2.99

3.2 Analyse chimique des gaz et du Naphta

3.2.1 Composition des gaz

Les tableaux ci-après donnent les propriétés physiques et la composition chimique du gaz naturel et du gaz procédé quittant le ballon de séparation D201. Notons que le gaz procédé séparé de l'hydrogène, des traces d'eau et des hydrocarbures condensables représente le fuel gaz devient combustible principal de l'unité.

Tableau II.16. Propriétés physiques du gaz naturel et du fuel gaz utilisés

Combustible	Pression (G) (MPa)	Température (°C)	Densité (kg/Nm ³)	Masse moléculaire (g/mol)	PCI (MJ/kg)	PCS (MJ/kg)
Gaz naturel	0.3	Ambiante	0.86	19.24	40.23	-
Fuel gaz	0.4	40	0.45	9.93	44.76	51.68

Tableau II.17. Composition chimique du gaz naturel

Constituants	N ₂	CO ₂	CH ₄	C ₂ H ₆	C ₃ H ₈	iC ₄ H ₁₀	nC ₄ H ₁₀	iC ₅ H ₁₂	nC ₅ H ₁₂	C ₆ H ₁₄	Total
Composition (Mol %)	2.51	8.05	85.92	2.70	0.61	0.07	0.09	0.01	0.03	0.01	100

Tableau II.18. Composition chimique du gaz procédé

Constituants	Composition (Mol %)
H ₂	67.19
N ₂	3.6
CO ₂	0.3342
H ₂ O	0.002
H ₂ S	255ppm
C ₁	13.9256
C ₂	7.14
C ₂ =	3.95
C ₃	1.99
C ₃ =	0.077
nC ₄	0.369
iC ₄	0.0367
nC ₄ =	0.4
iC ₄ =	0.011
Cc ₄	0.011
Tc ₄ =	0.007
nC ₅	0.15
iC ₅	0.0042
nc ₅ =	0.0019
∠c ₅	0.54
Total	99.7403

3.2.2 Propriétés physico-chimiques et composition de Naphta [11]

Les tableaux suivants donnent les propriétés physico-chimiques, la composition chimique par constituant et par classes d'hydrocarbures de la charge du naphta avant et après reforming.

Tableau II.19. Propriétés physico-chimiques de naphta.

Analyse	Unité	Naphta non traité	Naphta traité
API°		66,09	(55,5)
Densité	Kg/l	0,7161	0,7567
Teneur en acide		-	-
Teneur en soufre	Masse %	0,01	-
Teneur en nickel	ppm	2,50	-
TVR		1,2555	8,0195
Indice d'octane	/	60,1619	94,0971

Tableau II.20. Composition de naphta par classes et groupe d'hydrocarbures

Analyse	Unité	Naphta non traité	Naphta traité
n-Alcane		28,3461	12.7377
i-Alcane		34,8225	26,6289
Naphtène	Masse %	28,0684	1,2374
Oléfine		1,87143	0,8587
Aromatique		4,8489	54,4446

Tableau II.21. Composition chimique de naphta [9]

Analyse	Unité	Naphta non traité	Naphta traité (Reformat)
C ₁		0,00000	0,00000
C ₂		0,00000	0,00137
C ₃		0,00000	1,02998
C ₄		0,00000	3,08185
C ₅		0,21491	4,77337
C ₆		15,50061	16,94715
C ₇	Masse%	25,01006	29,11301
C ₈		27,98919	24,52252
C ₉		22,50003	15,72427
C ₁₀		6,66400	1,82677
C ₁₁		0,06390	0,74093
C ₁₂		0,00000	0,14285
C ₁₃		0,02024	0,00317
C ₁₄₊		0,15487	0,06806
Inconnus		0,85882	0,80404
Composés Oxygénés		1.02338	1,22065
Total		100	100

Chapitre III. Modélisation et Simulation de la Section Reformage Catalytique

Introduction

Après le relevé et la collecte de toutes les conditions opératoires de la section de reformage catalytique de l'unité RAID, nous procédons à la modélisation et simulation de son procédé au moyen du logiciel « *Aspen Hysys 9* ». Cette étude vise à trouver les paramètres et conditions optimales de fonctionnement de cette section réactionnelle de l'unité.

III.1 Généralités sur la simulation d'un Procédé existant

La simulation est un processus de conception d'un modèle opérationnel d'un système et de réalisation d'expériences avec ce modèle dans le but de comprendre le comportement du système ou d'évaluer des stratégies alternatives pour le développement ou le fonctionnement du système. Il doit être capable de reproduire certains aspects du comportement du système modélisé avec un degré de précision acceptable.

La modélisation des processus n'est pas utilisée uniquement dans la conception de nouveaux processus. Elle est considérée comme un outil très important dans l'intensification et l'optimisation des processus existants. L'augmentation de l'efficacité du fonctionnement de l'unité, la minimisation des pertes de matériaux et d'énergie et l'élimination des différents dysfonctionnements opérationnels sont les raisons habituelles de la modélisation des processus existants [12]. Les étapes de ce type de simulation sont :

- Définir le but en fonction de l'exigence d'une amélioration du procédé existant.
- Etudier les schémas technologiques du procédé et extraire les informations nécessaires à la simulation. Les schémas technologiques des processus sont généralement très détaillés et contiennent différents types d'informations.
- Créer le diagramme de flux du procédé (PFD) basé sur le schéma technologique du procédé.
- Collecter les données d'exploitation de l'usine. Certaines données de l'installation peuvent être utilisées comme données d'entrée dans le simulateur et d'autres pour la comparaison du modèle
- Après la préparation d'un PFD simplifié et la collecte de toutes les données nécessaires, une simulation de processus avec différents scénarios peut être réalisée.

- Sur la base des résultats de la simulation et de leur comparaison avec les données opérationnelles et l'analyse de différents scénarios, la modification du procédé peut être suggérée et préconisée.

III.2 Simulation de la Section étudiée par le logiciel Aspen Hysys

La modélisation et la simulation de la section réactionnelle simplifiée (figure III.1) de reformage catalytique de l'unité d'Adrar a été effectuée et réalisée au moyen du logiciel « *Aspen Hysys* » d'AspenTech orientés au Génie des Procédés.

2.1 Introduction au Logiciel Aspen Hysys

« Aspen Technology » est la société qui intègre l'intelligence artificielle (IA) dans les environnements de fabrication industriels. Logiciel de pointe aide les plus grandes sociétés pétrolières et gazières, chimiques et d'ingénierie au monde à atteindre leurs objectifs en matière de sécurité, de durabilité et de performance opérationnelle [13].

2.2 Méthodologie de simulation suivie

Pour une meilleure compréhension, nous décrivons ci-après, la méthodologie de simulation suivie sous le logiciel Aspen Hysys.

2.2.1 Choix des composants [14]

Un modèle cinétique efficace de reformage du naphta doit représenter l'ensemble des principaux types de réactions. La présentation d'un modèle prenant compte de tous les composés et réactions de la charge d'alimentation est pratiquement irréalisable.

Le modèle cinétique proposé par Smith (1959), divisait l'alimentation en naphta en trois types d'hydrocarbures : les paraffines, les naphènes et les aromatiques. Chacune de ces trois classes d'hydrocarbures est représentée par un seul composé qui a les propriétés moyennes de cette classe. Le tableau III.1 donne la représentation par classes d'hydrocarbures (% molaire) des 30 composés proposés pour la charge naphta de l'unité d'Adrar (voir tableau II.21 du chapitre précédent).

La figure III.2 donne la liste de tous les composants disponibles dans HYSYS

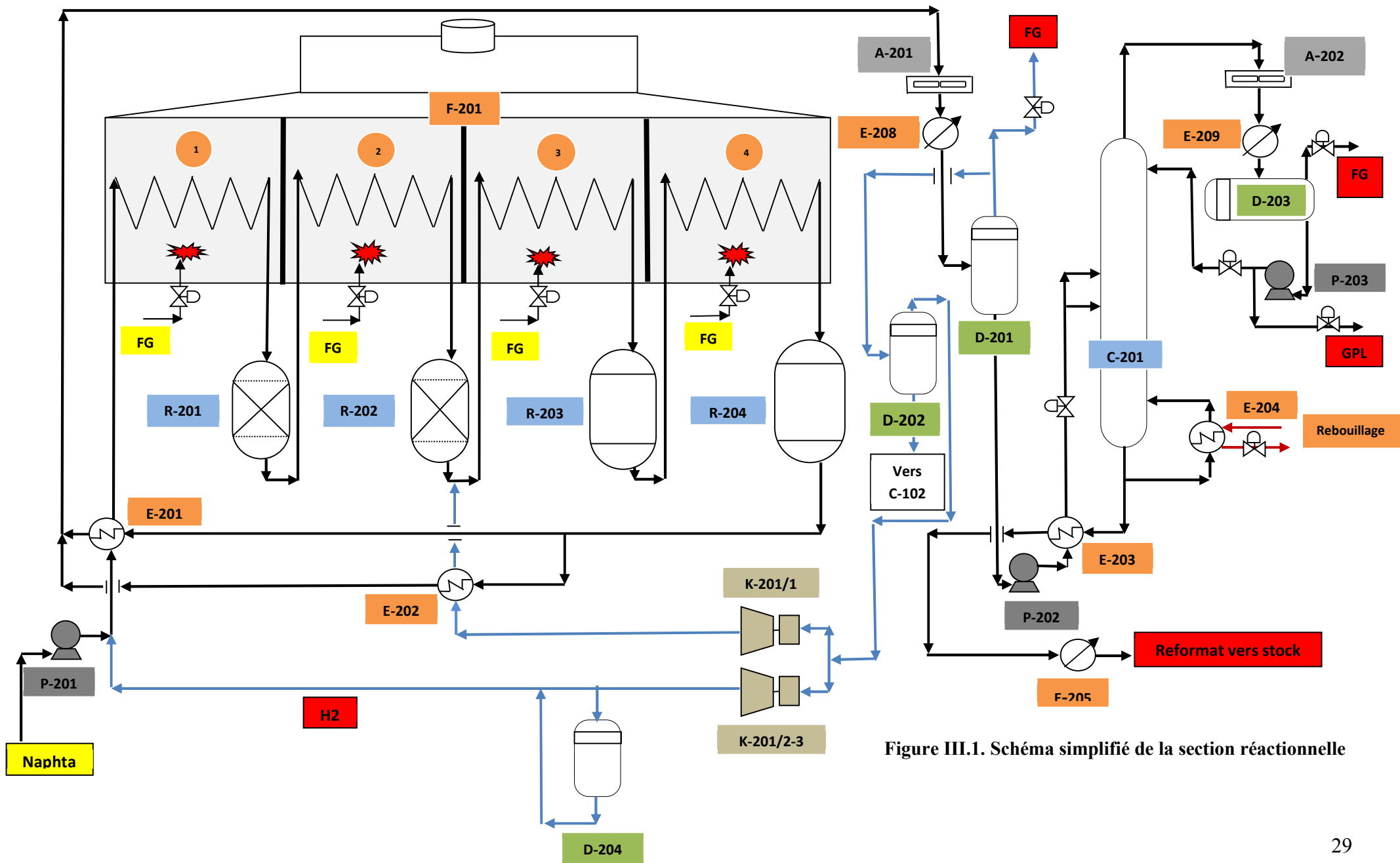


Figure III.1. Schéma simplifié de la section réactionnelle

Tableau III.1. Représentation de la charge naphta dans HYSYS

Composition	Paraffines (P)	Iso-Paraffines (iP)	Oléfines (Ole)	Naphtènes (N)	Aromatiques (A)	Total
C₅	0.03219	0.00667	0.17605	0.00000	0.00000	0.214910
C₆	6.27944	3.79129	0.02832	5.24333	0.15824	15.50061
C₇	8.26865	7.14175	0.25444	8.69944	0.64578	25.01006
C₈	7.35141	10.85419	0.29367	7.33600	2.15393	27.98919
C₉	5.72828	8.27905	0.88374	5.89146	1.71750	22.50003
C₁₀	0.67922	4.72457	0.23812	0.01595	0.13985	6.664000
Total	28.33918	34.79751	1.87434	28.05247	4.81529	97.87879

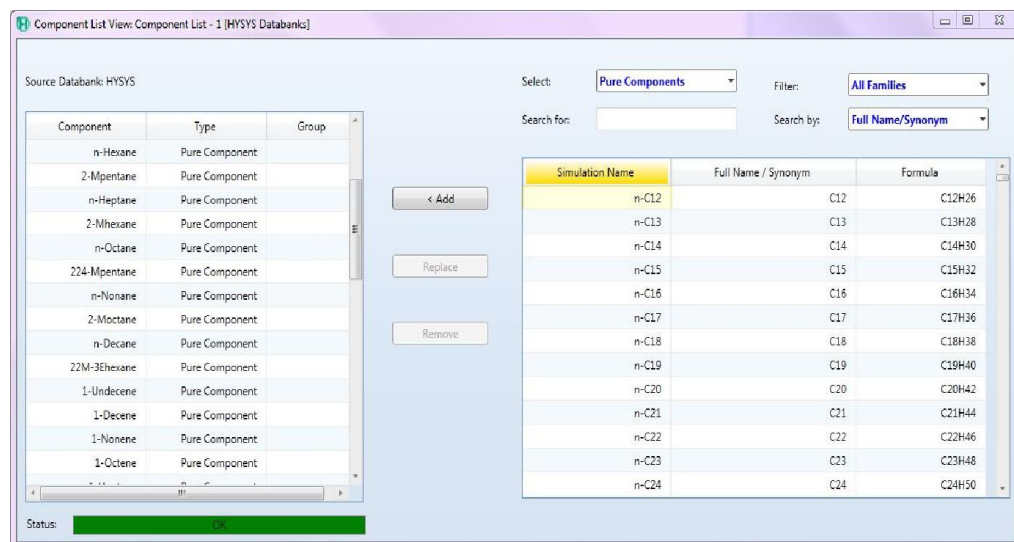


Figure III.2. Liste des composés disponibles dans le logiciel Hysys

2.2.2- Choix de modèle thermodynamique

La sélection du modèle thermodynamique est une étape cruciale dans la simulation du procédé. La précision des résultats de simulation dépend de l'adéquation de la propriété utilisée. Les simulateurs de procédés contiennent des outils de calcul des propriétés physiques des flux de composants purs et de leurs mélanges ainsi que de l'équilibre de phase. Le package fluide « fluid package » dans Aspen Hysys, se compose de différents modèles pour le calcul des propriétés physiques. Pour les applications pétrolières, gazières et pétrochimiques, les modèles Peng-Robinson (PR) et Soave-Redlich-Kwong (SRK) sont généralement les équations d'état (EOS) recommandés [12]. Le modèle Soave-Redlich-Kwong (SRK) fournit des résultats comparables à Peng-Robinson, mais son champ d'application est nettement plus limité ($T > -143$ ° C, $P < 35$ 000 kPa), par contre celui de PR (équations III.1-III.5), choisi pour cette étude, résout

rigoureusement tout système monophasé, biphasé ou triphasé avec un haut degré de fiabilité et applicable dans un large éventail de conditions ($T > -271^\circ\text{C}$, $P < 100\,000\text{ kPa}$).

L'équation de Peng-Robinson

$$P = \frac{RT}{V_m - b} - \frac{a(T)}{V_m^2 + 2bV_m - b^2} \quad (\text{III.1})$$

$$\begin{cases} a(T) = a^* \times \frac{R^2 T_c^2}{P_c} \alpha(T) \\ b = b^* \times \frac{RT_c}{P_c} \end{cases} \quad (\text{III.2})$$

$$a^* \approx 0.45724 \text{ et } b^* \approx 0.07780 \quad (\text{III.3})$$

$$\alpha(T) = [1 + m(1 - \sqrt{T_r})]^2 \quad (\text{III.4})$$

$$m = M_0 + M_1\omega + M_2\omega^2 \quad (\text{III.5})$$

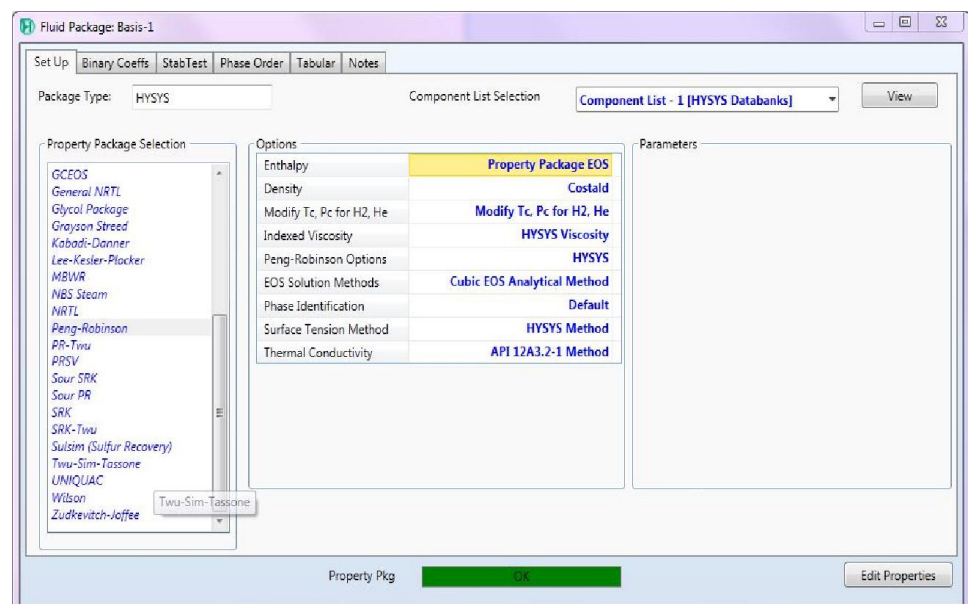
Les paramètres M_0 , M_1 et M_2 sont données au tableau III.2

Tableau III.2. Valeurs des paramètres des deux modèles

Paramètre	SRK	PR
c_1	0	$-1 - \sqrt{2}$
c_2	-1	$-1 + \sqrt{2}$
a^*	$1/[9(2^{1/3} - 1)]$	0.45724
b^*	$(2^{1/3} - 1)/3$	0.07780
M_0	0.48	0.37464
M_1	1.574	1.54226
M_2	-0.176	-0.26992

La figure III.3 donne le fluide package qui permet de sélectionner le modèle Peng-Robinson

Figure III.3.
Fluide package
dans le logiciel
Aspen Hysys



2.2.3 Construction du PFD

Le PFD fournit la meilleure représentation du schéma de traitement dans son ensemble. L'utilisation du PFD donne une référence immédiate à l'avancement de la simulation en cours de construction, Le PFD construit pour le schéma simplifié de la section réactionnelle étudiée (figure III.1) est représenté ci-après en figure III.5.

2.2.4 Représentation et configuration des Equipements

- Réacteurs chimiques

Choix de réacteur [14]

Pour les réactions triphasées gaz et liquide en contact avec un catalyseur solide stationnaire, le logiciel Aspen Hysys utilise en général, les réacteurs Packed Bed Reactors (PBR). Ensuite, pour le réacteur de reformage caractérisé par un flux descendant de liquide et un gaz à co-courants, le Trickle Bed Reactors (TBR) est sélectionné. Le TBR est constitué d'une colonne très haute, équipée d'un ou de plusieurs lits fixes de catalyseurs solides. L'avantage du TBR est que le débit du liquide se rapproche du comportement plug-flow, conduisant à des conversions élevées.

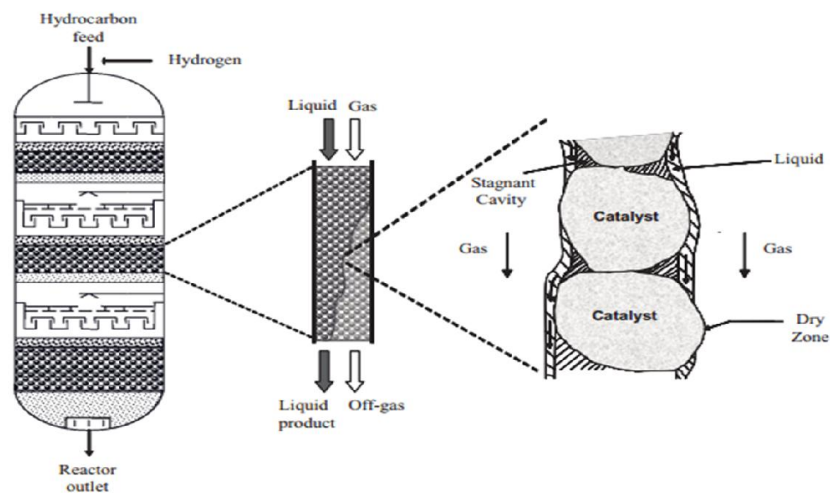


Figure III.4. Représentation du réacteur TBR

D'autre part, pour les réactions catalytiques hétérogènes à vitesse réactionnelle simple, le logiciel Aspen Hysys utilise aussi le réacteur à écoulement piston (PFR) [13]. Ce réacteur, également connu sous le nom de réacteur tubulaire, se compose généralement d'un faisceau de tubes cylindriques, dont le mélange axial est supposé négligeable. La figure III.6 montre l'introduction des données spécifiques pour le PFR (volume, longueur, fraction de vide du catalyseur, etc..) lors de la simulation.

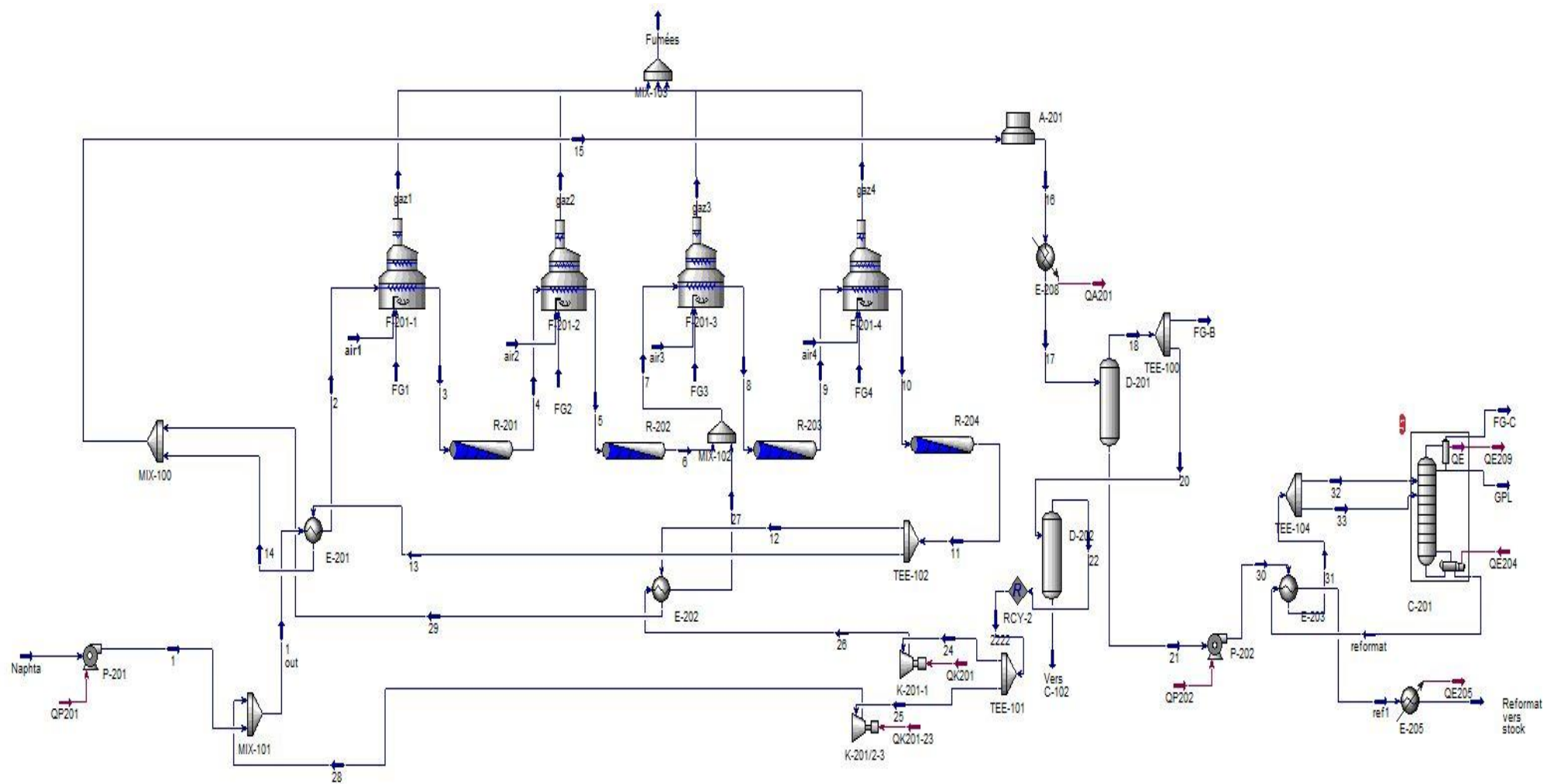
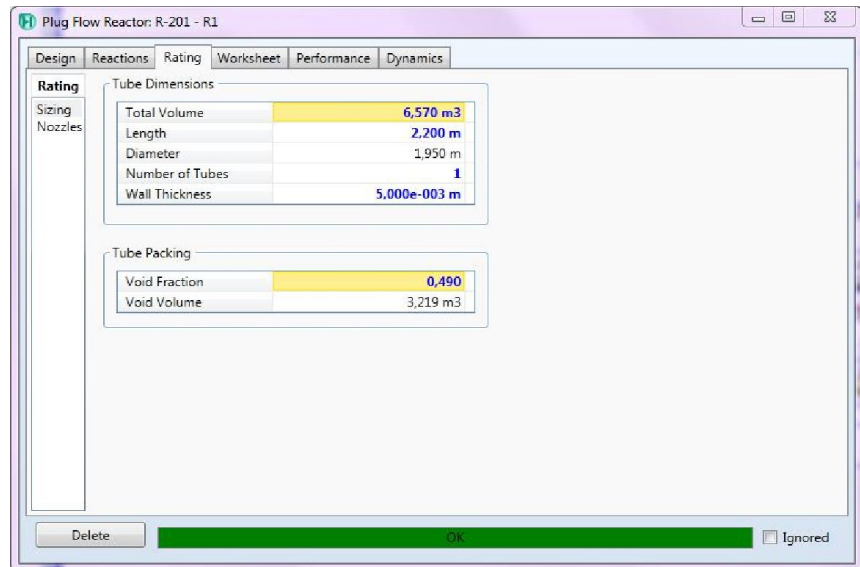


Figure III.5. PFD de simulation de la section réactionnelle

Figure III.6.
Introduction de
Données pour le PFR



Cinétique réactionnelle

Étant donné que les réactions catalytiques hétérogènes impliquent une réaction de surface avec l'adsorption et désorption de réactifs et de produits, l'expression du taux résultants dépendra fortement du mécanisme. Le logiciel Aspen Hysys fournit un modèle de cinétique de réaction catalytique hétérogène pour décrire le taux, celui de *Langmuir-Hinshelwood* [13].

$$r = \frac{k_+ K_A K_B C_A C_B}{(1 + K_A C_A + K_B C_B + K_P C_P)^2} \quad (\text{III.6})$$

Par ailleurs, le tableau III.3 donne les réactions mises en jeu dans le logiciel Aspen Hysys.

Tableau III.3. Modèles de réactions mises en jeu dans Aspen Hysys

Réaction	Nbr de réaction	Agent
Déshydrocyclisation des paraffines : $P \rightarrow A + 4H_2$	5	M+A
Déshydrogénation des naphthènes : $N \rightarrow A + 3H_2$	5	M+A
Isomérisation des paraffines : $P \rightarrow iP$	5	A
Hydrocraquage des paraffines : $P_n + H_2 \rightarrow 2P_{n-1}$	2	M+A

M : fraction métal / A : fraction acide / n : nombre de carbone

La figure III.7 donne l'exemple de simulation de la réaction de déshydrogénation des naphthène (C6), les valeurs des paramètres cinétiques sont fournies par [15] et [16].

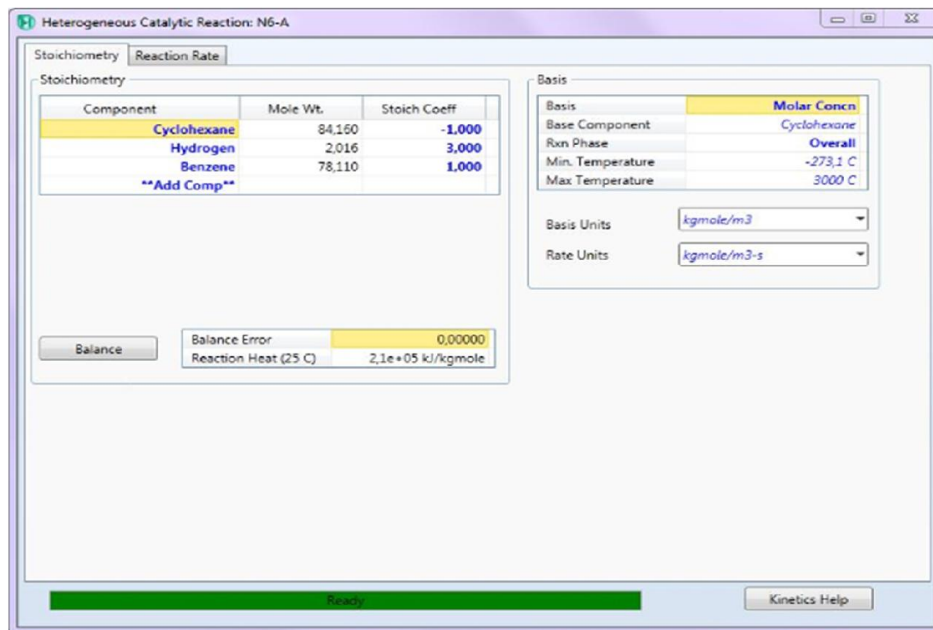


Figure III.7. Simulation de la réaction de déshydrogénation des naphènes

Avancement des réactions chimiques [17]

La vitesse de réaction de déshydrogénation du naphène est la plus rapide, dont la plupart se déroule principalement dans le premier réacteur, et peu dans le deuxième réacteur. Les réactions d'isomérisation de la paraffine ont lieu principalement dans le deuxième et le troisième réacteur, tandis que les réactions de déshydrocyclisation et d'hydrocraquage ont principalement lieu dans le troisième et le quatrième réacteur.

Calcul de chute de pression

Aspen Hysys utilise l'équation (III.7) de Ergun [13] pour calculer la chute de pression à travers le PFR.

$$\frac{\Delta_p}{L} = 151.2 \frac{\mu}{d^2} \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3} u + 1.8 \frac{\rho}{d} \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon^3} u^2 \quad (\text{III.7})$$

Δ_p : est la perte de charge (variation de pression) [N/m²], L : l'épaisseur du lit de particules[m],

u : la vitesse du fluide en fut vide[m/s], ε porosité du lit [%], μ : viscosité

dynamique[kg/m.s], ρ : la masse volumique du fluide[kg/m³], d : diamètre des billes constituant ce lit[m]

La figure III.8 donne l'interface de calcul de la perte de charge du PFR au sein du logiciel

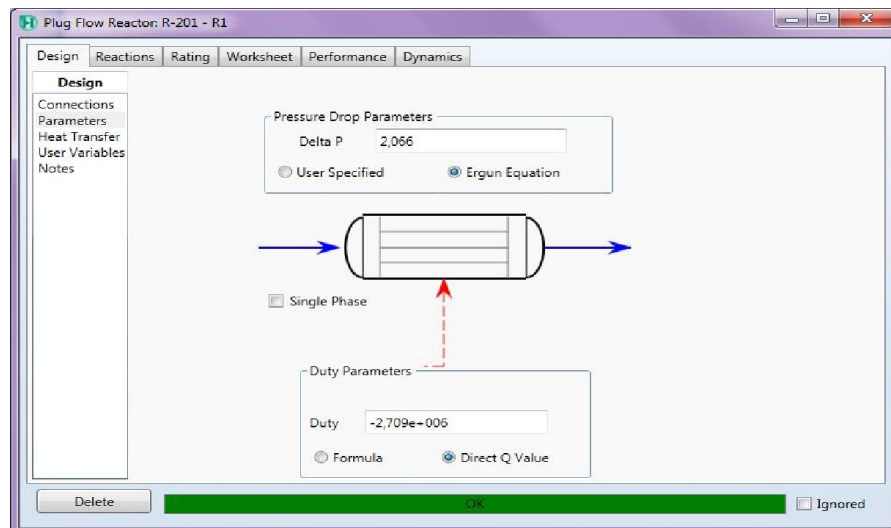


Figure III.8. Calcul de la perte de charge du PFR

- **Le Four**

Ce type d'équipement nécessite un apport important de chaleur. La chaleur est générée par la combustion du carburant et transférée aux flux de traitement. Un schéma simplifié du four à chauffage direct est illustré dans la figure III.9. Il peut être divisé en trois zones ; zone rayonnante, zone convective et zone économiseur.

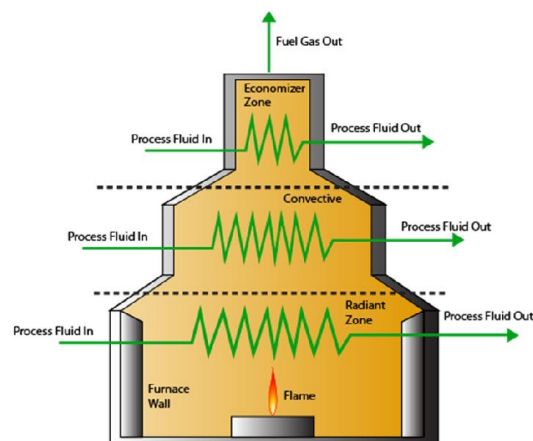


Figure III.9 Représentation du four tubulaire dans Aspen Hysys

- **La combustion**

Le modèle de brûleur de flamme effectue uniquement le calcul de combustion d'hydrocarbures purs (C_xH_y). L'étendue de la combustion dépend de la disponibilité de l'oxygène qui est généralement régie par le rapport air / carburant. Le rapport air / carburant (AF) est défini comme suit :

$$AF = \frac{\left(\frac{\text{débit massique d'O}_2}{\sum \text{débit massique de fuel}} \right)}{\text{rapport massique d'O}_2 \text{ dans l'air}} \quad (\text{III.8})$$

- **Performance de four**

Pour tout four en fonctionnement permanent, nous pouvons écrire le bilan thermique simple :

$$H_f = H_c + H_s + H_g \quad (\text{III.9})$$

H_f : chaleur fournie par le combustible, dépend du type de combustible et de la conception du brûleur [Watts],

$$H_f = Q_f \times CV \quad (\text{III.10})$$

Q_f : débit de carburant [kg/s] et CV : pouvoir calorifique du combustible[J/kg]

La chaleur utile H_c est quantifiée comme suit :

$$H_c = Q_c \times (Cp_c \times (T_c - T_a) + H_r) \quad (\text{III.11})$$

Q_c : débit de charge[kg/s], Cp_c : chaleur spécifique de charge [J/K. kg],

T_c : température de sortie de charge[°C], T_a : température ambiante[°C], H_r : Énergie de réaction

H_s : Pertes à travers les parois du four, se produisent car la chaleur est transférée par conduction à travers les murs et ouvertures, puis par convection et rayonnement de l'extérieur vers l'atmosphère [W].

$$H_s = A_i \times k \times (T_i - T_o) = A_o \times (h \times (T_o - T_a) + \sigma \times \varepsilon \times (T_o^4 - T_a^4)) \quad (\text{III.12})$$

A_i : zone intérieure des murs[m²], A_o : zone extérieure des murs[m²], k : conductivité thermique des murs[w/m. K], h : coefficient de transfert de chaleur convectif [w/m². K], T_o^4 : température du visage chaud[°C], T_a^4 : température du visage froid[°C], ε : émissivité des murs, σ : Constante de Stefan-Boltzmann [$5,67 \times 10^{-8}$ w/m²K⁴].

La perte de chaleur dans les fumées s'écrit :

$$H_g = Q_g \times Cp_g \times (T_g - T_a) \quad (\text{III.13})$$

Q_g : débit de gaz de combustion[kg/s], Cp_g : moyenne de chaleur spécifique des fumées[J/K. kg], T_g : Température de sortie des fumées [°C],

• **L'Echangeur de chaleur [12]**

Les blocs des unités de chauffage et de refroidissement se composent de bilans de matière et d'énergie ainsi que le calcul thermodynamique de phases. Le bilan matière est donné par l'équation (III.14), dans lequel i,j représentent l'indice du flux et ses composants.

$$\sum_{i,j} m_{i,entr\acute{e}e}^j = \sum_{i,j} m_{i,sortie}^j = m_{entr\acute{e}e} = m_{sortie} = m \quad (\text{III.14})$$

Le bilan enthalpique de l'échangeur de chaleur donne l'équation (III.15)

$$q = m(h_{sortie} - h_{entr\acute{e}e}) + q_{perte} \quad (\text{III.15})$$

Dans le cas d'un équilibre de phase, les enthalpies à l'entrée et à la sortie du système s'écrivent :

$$h_{entr\acute{e}e} = \int_{T_{sortie}}^{T_{entr\acute{e}e}} C_{p_{entr\acute{e}e}} dT + \Delta v h_{entr\acute{e}e} = h_{sortie} = \int_{T_{entr\acute{e}e}}^{T_{sortie}} C_{p_{sortie}} dT + \Delta v h_{sortie} \quad (\text{III.16})$$

m : le débit massique total d'alimentation, q : le débit de chaleur requis ou enlevé, q_{perte} : pertes de chaleur, $C_{p_{entr\acute{e}e}}$ et $C_{p_{sortie}}$: la capacité thermique des flux d'entrée et de sortie, $\Delta v h_{entr\acute{e}e}$ et $\Delta v h_{sortie}$: variation d'enthalpie de changement de phase du flux d'entrée et de sortie.

Si le taux de transfert de chaleur doit être pris en compte, la chaleur transférée, q s'écrira en fonction du coefficient global de transfert thermique, U :

$$q = UA\Delta T_{lm} \quad (\text{III.17})$$

ΔT_{lm} est la Température moyenne logarithmique entre l'entrée (ΔT_1) et la sortie de l'échangeur (ΔT_2)

$$T_{lm} = \frac{\Delta T_1 - \Delta T_2}{\ln \frac{\Delta T_1}{\Delta T_2}} \quad (\text{III.18})$$

Pour les échangeurs de chaleur avec plusieurs passes côté tube et / ou côté calandre, l'équation (III.17) est modifiée en introduisant le facteur de correction F :

$$q = UAF\Delta T_{lm} \quad (\text{III.19})$$

Le facteur F peut être calculé par :

$$F = \frac{\sqrt{R^2 + 1} \ln \frac{(1-S)}{(1-RS)}}{(R-1) \ln \frac{2-S(R+1-\sqrt{R^2+1})}{2-S(R+1+\sqrt{R^2+1})}} \quad (\text{III.20})$$

Avec

$$R = \frac{T_{entr\acute{e}e}^h - T_{sortie}^h}{T_{sortie}^c - T_{entr\acute{e}e}^c}, \quad R = \frac{T_{sortie}^c - T_{entr\acute{e}e}^c}{T_{entr\acute{e}e}^h - T_{entr\acute{e}e}^c} \quad (\text{III.21})$$

La figure (III.10) donne la simulation de l'échangeur de chaleur E201 de la section étudiée

Worksheet	Name	1	2	13	14
Conditions	Vapour	0,0000	1,0000	1,0000	1,0000
Properties	Temperature [C]	28,64	420,0	471,0	106,0
Composition	Pressure [kPa]	2180	1800	1262	1262
PF Specs	Molar Flow [kgmole/h]	121,7	121,7	1189	1189
	Mass Flow [kg/h]	1,312e+004	1,312e+004	7278	7278
	Std Ideal Liq Vol Flow [m3/h]	17,80	17,80	41,57	41,57
	Molar Enthalpy [kJ/kgmole]	-2,055e+005	-7,036e+004	5154	-8681
	Molar Entropy [kJ/kgmole-C]	57,91	224,0	144,8	119,4
	Heat Flow [kJ/h]	-2,501e+00	-2,055e+005	27e+006	-1,032e+007

Figure III.10. Simulation de l'échangeur E201 de la section réactionnelle

- La Pompe

Une pompe augmente la pression du liquide de ΔP , entre son entrée P_1 et sa sortie P_2

$$P_2 = P_1 + \Delta P \quad (\text{III.22})$$

En négligeant l'effet visqueux, l'équation de Bernoulli donne pour ΔP , en régime stationnaire

$$\Delta P = P_2 - P_1 = H\rho g \quad (\text{III.23})$$

H est la tête, ρ est la densité du liquide et g est l'accélération gravitationnelle.

La puissance hydraulique du fluide, calculée en fonction du débit volumique (Q) du liquide :

$$P_w = H\rho gQ \quad (\text{III.24})$$

La puissance mécanique donnée à la pompe par le moteur de l'activateur peut être calculée par

$$P_f = \omega T = \frac{2\pi}{60} fT \quad (\text{III.25})$$

ω vitesse angulaire ($\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$), f fréquence de rotation (tr/min), T le couple dans l'axe en ($\text{N}\cdot\text{m}$).

L'efficacité de pompage, η est définie comme le rapport entre P_w , et P_f .

$$\eta = \frac{P_w}{P_f} \quad (\text{III.26})$$

La figure III.11 représente la simulation de la pompe centrifuge et les données introduites

The screenshot shows a software window titled 'Pump: P-201' with tabs for Design, Rating, Worksheet, Performance, and Dynamics. The 'Worksheet' tab is active, displaying a table with the following data:

Worksheet	Name	Naphta	1	QP201
Conditions	Vapour	0,0000	0,0000	<empty>
Properties	Temperature [C]	27,60	28,74	<empty>
Composition	Pressure [kPa]	700,0	2180	<empty>
PF Specs	Molar Flow [kgmole/h]	121,7	121,7	<empty>
	Mass Flow [kg/h]	1,312e+004	1,312e+004	<empty>
	Std Ideal Liq Vol Flow [m3/h]	17,80	17,80	<empty>
	Molar Enthalpy [kJ/kgmole]	-2,050e+005	-2,046e+005	<empty>
	Molar Entropy [kJ/kgmole-C]	59,92	60,54	<empty>
	Heat Flow [kJ/h]	-2,495e+007	-2,490e+007	4,910e+004

At the bottom of the window, there are buttons for 'Delete', 'OK', and checkboxes for 'On' and 'Ignored'.

Figure III.11. Simulation de la pompe centrifuge P201

- **Compresseur :**

L'énergie développée (H_m) par le compresseur pour faire passer un flux gazeux de la pression d'entrée P_1 à la pression de sortie P_2 , s'écrit en fonction du volume molaire V est :

$$H_{com} = \int_{P_1}^{P_2} V dP \quad (III.27)$$

L'équation (III.27) n'est applicable que pour les gaz parfaits. Pour la variation d'enthalpie réelle par mole de gaz, le facteur d'efficacité, η_h , doit être utilisé, soit :

$$\Delta h = \frac{H_{com}}{\eta_h} \quad (III.28)$$

La variation d'enthalpie réelle du gaz, pour un processus polytropique (n exposant polytropique) est

$$\Delta h = \frac{P_1 V_1}{\eta_p \left(\frac{n-1}{n}\right)} \left[\left(\frac{P_2}{P_1}\right)^{\frac{n-1}{n}} - 1 \right] \quad (III.29)$$

La figure III.12 représente la simulation du compresseur K101 et les données introduites

Worksheet	Name	25	28	QK201-23
Conditions	Vapour	1,0000	1,0000	<empty>
Properties	Temperature [C]	40,00	62,92	<empty>
Composition	Pressure [kPa]	1261	1561	<empty>
PF Specs	Molar Flow [kgmole/h]	3,328e+005	3,328e+005	<empty>
	Mass Flow [kg/h]	2,025e+006	2,025e+006	<empty>
	LiqVol Flow [m3/h]	1,162e+004	1,162e+004	<empty>
	Molar Enthalpy [kJ/kgmole]	-1,088e+004	-1,012e+004	<empty>
	Molar Entropy [kJ/kgmole-C]	112,9	113,5	<empty>
	Heat Flow [kJ/h]	-3,620e+009	-3,367e+009	2,535e+008

Figure III.12. Simulation du compresseur K101

III.3 Résultats de simulation

Les résultats de simulation de la section réactionnelle étudiée sont donnés ci-après. Les tableaux (III.4-III.8) donnent pour les cas actuel et Design une comparaison des valeurs de leurs paramètres opératoires de flux de matière enregistrés et simulés. De même, les figures (III.13-III.17), donnent une comparaison des fractions massique de paraffines, isoparaffines, naphènes et aromatiques constituant la composition chimique du reformat obtenu.

Tableau III.4. Paramètres opératoires des flux de matière dans les Pompes

Equipement	Stream	Paramètre Opérateur	Design Enregistré	Design Simulé	Actuel Enregistré	Actuel Simulé
P201	Naphta	T(°C)	86	86	57.9	57.9
		P(MPa)	0.8	0.8	0.7	0.7
		D(kg/h)	12530	12530	16.39	16.39
	1	T	-	87.16	-	59.08
		P	2.18	2.18	2.18	2.18
		D	12530	12530	16.39	16.39
		Densité(kg/m ³)	680	681.7	-	706
	Viscosité (mm ² /s)	0.378	0.3119	-	0.4164	
P202	21	T	40	39.43	37.02	37.12
		P	1.2	1.2	1.2	1.194
		D	10500	11770	-	14.88
	30	T	40	39.82	37.4	37.51
		P	1.69	1.69	1.69	1.69
		D	10500	11770	-	14.98
		Densité	760	754	-	752.9
	Viscosité	0.344	0.4031	-	0.4199	

Tableau III.5. Paramètres opératoires des flux de matière dans les ballons

Equipement	Stream	Paramètre Opérateur	Design Enregistré	Design Simulé	Actuel Enregistré	Actuel Simulé
D201	17	T(°C)	40	40	37.13	37.10
		P(MPa)	1.2	1.221	1.2	1.19
		D(kg/h)	-	22170	-	21720
		Densité(kg/m3)	3.88	4.507	-	0.4597
	18	T	40	39.43	37.13	37.10
		P	1.2	1.2	1.2	1.19
		D	-	10400	-	10290
	20	T	40	39.87	37.13	37.1
		P	1.2	1.2	1.2	1.19
D		9641	9641	-	14.88	
D202	20	T	40	39.43	37	37.10
		P	1.2	1.2	1.192	1.19
		D	9841	9641	-	9641
	22	T	-	40	37	37.1
		P	-	1.2	1.192	1.19
		D	-	9641	-	9641
	Vers colonne c-201	T	-	40	37	37.1
		P	-	1.2	1.192	1.19
		D	-	0	-	0

Tableau III.6. Paramètres opératoires des flux de matière dans les Compresseurs

Equipement	Stream	Paramètre Opérateur	Design Enregistré	Design Simulé	Actuel Enregistré	Actuel Simulé
K201-1	24	T(°C)	40	40	40	37.1
		P(MPa)	1.2	1.2	1.192	1.19
		D(kg/h)	4172	4172	4110	4110
	26	T	90	72.85	54.1	57.1
		P	1.7	1.6	1.5	1.5
		D	4172	4172	4110	4110
K202.-2-3	25	T	40	40	40	37.1
		P	1.2	1.2	1.192	1.19
		D	4172	5469	-	5531
	26	T	90	111.4	-	64.46
		P	2.35	2.18	1.513	1.513
		D	4172	5469	-	5531

Tableau III.7. Paramètres opératoires des flux de matière dans les Réacteurs

Equipement	Stream	Paramètre Opérateur	Design Enregistré	Design Simulé	Actuel Enregistré	Actuel Simulé
R201	3	T(°C)	492	492	476.9	477
		P(MPa)	1.7	1.75	-	1.500
		D (kg/h)	16190	18000	17610	17550
	4	T	400	434.4	412.6	425.9
		P	1.65	1.733	-	1.480
		D	16190	18000	-	17550
R202	5	T	492	492	482.1	483
		P	1.6	1.732	-	1.480
		D	16190	18000	-	17550
	6	T	448	479.7	447.6	472.1
		P	1.55	1.501	-	1.401
		D	16190	18000	-	17550
R203	8	T	492	492	487	487
		P	1.5	1.501	-	1.401
		D	20300	22170	-	21720
	9	T	464	481	467.7	477.6
		P	1.45	1.424	-	1.316
		D	20300	22170	-	21720
R204	10	T	492	492	491.9	492
		P	1.4	1.424	-	1.316
		D	20300	22170	-	21720
	11	T	471	462.1	476.06	468.5
		P	1.35	1.397	-	1.289
		D	20300	22170	-	21720

Tableau III.8. Paramètres opératoires des flux de matière dans les Echangeurs

Equipement	Stream	Paramètre Opérateur	Design Enregistré	Design Simulé	Actuel Enregistré	Actuel Simulé
E201	13	T (°C)	471	462.1	476.06	468.5
		P (MPa)	1.35	1.397	-	1.289
	14	T	106	129.7	-	106
		P	1.3	1.397	-	1.289
	1out	T	95	90.8	58.83	59.34
		P	2.18	2.18	-	1.513
	2	T	420	420	419.5	419.5
		P	1.75	1.75	-	1.500
E202	12	T	471	462.1	476.06	468.5
		P	1.35	1.397	-	1.289
	29	T	110	80	-	73.89
		P	1.3	1.298	-	1.19
	26	T	74	72.85	54.1	63.45
		P	1.6	1.6	-	1.5
	27	T	415	413	407	407
		P	1.55	1.501	-	1.401

E203	30	T	40	49.82	37.4	37.49
		P	1.69	1.69	1.69	1.69
	31	T	170	170	143.7	143.7
		P	1.25	1.69	-	1.69
	Reformat	T	207	199.2	196.8	202.6
		P	1.15	1.1	-	1.1
	Ref1	T	83	74.49	-	108.2
		P	1.1	1.1	-	1.1
A201 (Aéroréfrigérant)	15	T	110	112	96.43	97.19
		P	1.3	1.298		1.19
		D	20300	22170		21720
	16	T	60	61.07	59	56.32
		P	1.25	1.288		1.190
		D	20300	22170		21720

Interprétation :

On constate que les pressions simulées pour les cas actuel et design sont identiques (tableau III.4), pour la pompe P202 et ce malgré une différence de débit transporté par la pompe de 1000kg/h. Pour la pompe P201, une différence de température de 28°C est constatée entre les valeurs enregistrées et simulées.

Pour les ballons D201, D202 (tableau III.5), les paramètres calculés et enregistrés sont assez proches, ce qui met en évidence la fiabilité du modèle thermodynamique représentant l'équilibre liquide vapeur dans ce type d'équipement.

Pour les réacteurs chimiques (tableau III.6), la comparaison des paramètres opératoires enregistrés et simulés montre une assez bonne concordance entre leurs valeurs, soit un écart constaté de 8%.

Pour le compresseur K201 et K202, une différence de température de 20°C est observée entre les valeurs enregistrées et simulées du cas design. Quant aux valeurs des autres paramètres, ils sont presque identiques.

Les résultats de simulation des pressions et des températures coté tube et coté calandre des échangeurs de chaleur (tableau III.8) sont en bon accord avec les données réelles de l'unité enregistrées in-situ. Une même observation est dégagée pour le cas de l'aéroréfrigérant A201.

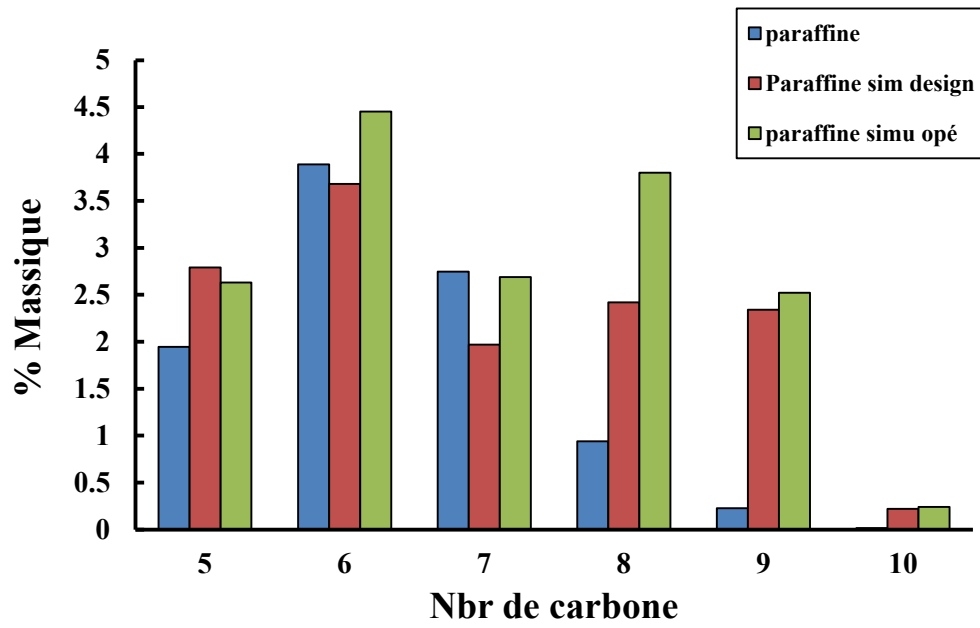


Figure III.13. Comparaison de la fraction des paraffines du Reformat

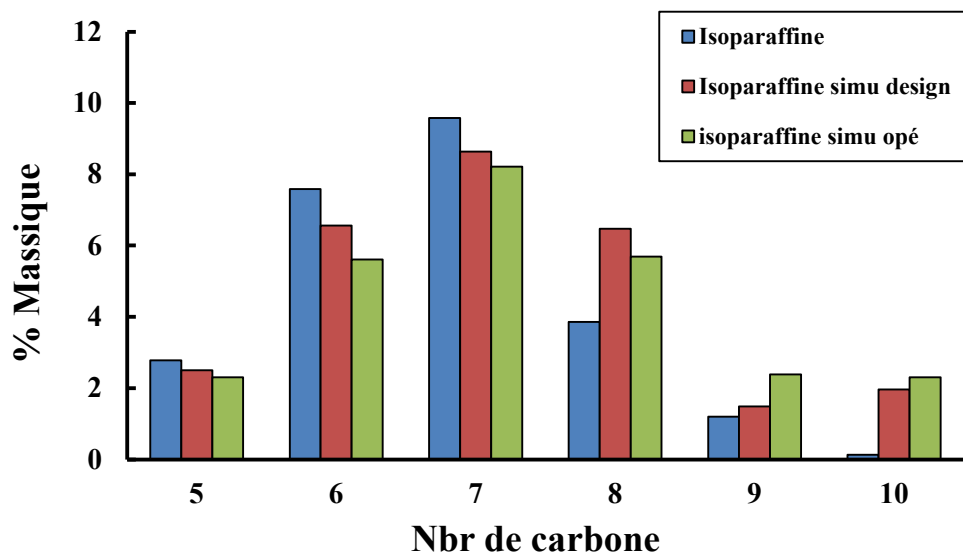


Figure III.14. Comparaison de la fraction des iso-paraffines du Reformat

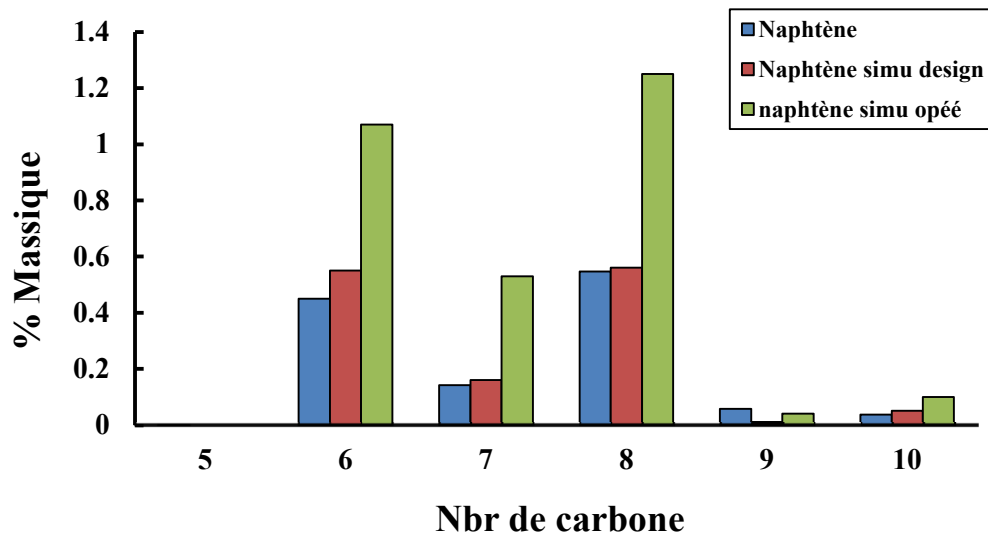


Figure III.15. Comparaison de la fraction des naphtés du Reformat

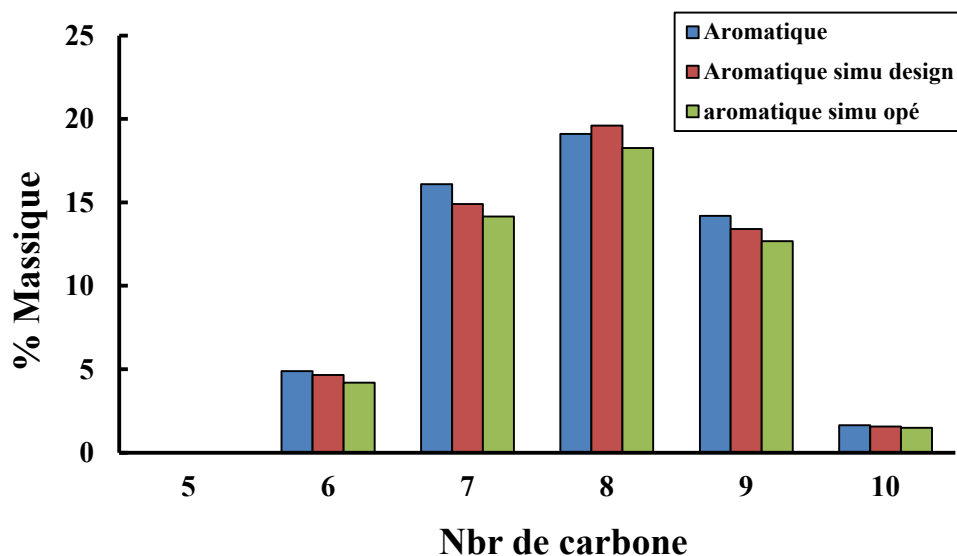


Figure III.16. Comparaison de la fraction des aromatiques du Reformat

Interprétation :

Pour la classe des paraffines dans le reformat, on remarque que le pourcentage massique est proche pour le cas des C_5 , C_6 et C_7 , par contre, il diffère de 1.5% pour le C_8 et C_9 . Pour les iso-paraffines, les histogrammes sont très proches sauf pour le cas C_8 et C_{10} où on observe une différence de 2% par rapport à la référence. Quant aux naphtés, elle est identique à celle de la référence pour le design, par contre, dans le cas opérationnel, elle diffère de 0.4% pour le cas C_6 , C_7 et C_8 . Pour le cas des aromatiques, les pourcentages massiques sont identiques à celles de la référence pour les deux cas design et opérationnel.

Introduction

Les résultats présentés au précédent chapitre III ont montré que la simulation de la section de reformage catalytique effectuée est assez valable pour prédire dans le cas design, les conditions opératoires du procédé et la composition du réformat obtenu lors de la transformation de la charge naphtha. De ce fait, en utilisant le logiciel Aspen-Hysys 9, la recherche donc d'un minimum de consommation spécifique d'énergie calorifique nécessaire à la production de la classe des aromatiques contenus dans le reformat, peut se traduire par l'identification des paramètres opératoires de décision qui affectent considérablement ces deux objectifs.

Aussi, les meilleures conditions opératoires d'exploitation, correspondants aux critères choisis, peuvent être déterminées par une seconde étude paramétrique, conduite par l'approche du plan d'expériences ou « *Design of Experiments (DoE)* » du logiciel « *MODDE 6.0* »

IV.1 Etude Paramétrique simple du procédé de reformage catalytique

1.1 Paramètres opératoires sensibles

A l'exception de la propriété du catalyseur et de la nature de la charge naphtha, les principaux facteurs affectants le processus de reformage catalytiques sont la température, la pression, la vitesse spatiale et le rapport hydrogène / hydrocarbure. Ces paramètres majeurs constituent une base théorique importante pour une meilleure conduite de la production et la détermination des conditions nominales de fonctionnement.

- **Température de réaction [17]**

Une réaction chimique ne peut pas être effectuée avec succès si sa température n'est pas atteinte. Toutes les principales réactions de reformage, telles que la déshydrogénation du naphène et la déshydrocyclisation de la paraffine, sont des réactions endothermiques. Toutefois, l'augmentation de la température de réaction est limitée par le matériel d'équipement, la stabilité thermique du catalyseur et la réaction secondaire non désirée. De plus, l'augmentation de la température de la réaction de reformage catalytique intensifiera la réaction d'hydrocraquage, qui favorisera le dépôt de carbone du catalyseur et réduira le rendement en liquide. La température de la plupart des entrées du réacteur de reformage est comprise entre 480 ~ 550 °C.

- **Pression du réacteur [17]**

L'augmentation de la pression du réacteur est désavantageuse à la fois pour les aromatiques formant des réactions de déshydrogénation du naphène et de déshydrocyclisation de la paraffine, alors qu'à l'inverse, elle est en faveur de la réaction d'hydrocraquage. Sous une pression plus basse, un rendement en aromatiques et un rendement en essence plus élevés peuvent être obtenus, et le rendement et la pureté de l'hydrogène sont plus élevés ; mais une pression plus basse entraînera une augmentation de la vitesse de dépôt de carbone sur le catalyseur, et le cycle de fonctionnement sera raccourci. Au niveau du catalyseur, avec une stabilité élevée et une capacité de tolérance au coke comme Pt-Re et Pt-Sn, une pression de réacteur plus faible peut être appliquée, ce qui non seulement peut augmenter la conversion des aromatiques, mais peut également maintenir un cycle de fonctionnement plus long. la pression du réacteur de l'unité de reformage Pt-Re à demi régénération est d'environ 1.5MPa.

- **Vitesse spatiale**

Dans les réactions de reformage catalytique, la vitesse de réaction de chaque type de réaction est différente. Par exemple, la réaction de déshydrogénation du naphène à six chaînons, a une vitesse de réaction élevée et est facile à atteindre un équilibre chimique, l'allongement du temps de réaction est moins important pour ce type de réaction. Cependant, l'allongement du temps de réaction a une influence significative sur les réactions qui ont une vitesse de réaction lente, telles que l'hydrocraquage et la déshydrocyclisation de la paraffine. Le choix de la vitesse spatiale dépend également de la propriété de la charge. Une vitesse spatiale plus élevée peut être utilisée pour la charge de base de naphène (contient plus de naphène). Alors que la charge de base de paraffine a besoin d'une vitesse spatiale inférieure.

- **Rapport hydrogène / hydrocarbure**

Lorsque la pression totale est constante, augmenter le rapport hydrogène / hydrocarbures signifie augmenter la pression partielle d'hydrogène, ce qui favorise l'inhibition du dépôt de carbone sur le catalyseur. Cependant, l'augmentation du rapport hydrogène / hydrocarbures augmentera le taux de circulation, augmentera la consommation d'énergie du compresseur et augmentera la charge du système de refroidissement en aval. Si le rapport hydrogène / hydrocarbures est trop élevé, la conversion sera diminuée car le temps de réaction est raccourci. Par conséquent, pour le catalyseur avec une stabilité élevée et la charge avec une tendance à la formation de moins de coke, un rapport hydrogène / hydrocarbures plus faible peut être adopté, et vice versa. L'unité de reformage adopte généralement un rapport molaire hydrogène / hydrocarbures de 2 ~ 8.

1.2 Influence des paramètres opératoires sur la production des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie calorifique

La sensibilité de la production de la classe des aromatiques du reformat ainsi que la consommation spécifique d'énergie calorifique (CSE) de la section CRU est examinée sous diverses conditions opératoires du processus de reformage catalytique. A cet effet, nous représentons en figures ci-après, les principaux résultats de leur sensibilité et nous renvoyons le détail de calcul en annexe. La production des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie calorifique sont définies par :

$$\text{débit Aromatiques } \left(\frac{\text{kg}}{\text{h}} \right) = \text{débit Réformat} \times \text{Fraction massique aromatiques} \quad (\text{IV.1})$$

$$\text{CSE } \left(\frac{\text{kJ}}{\text{kg}} \right) = \frac{\text{Quantité chaleur consommée par les fours}}{\text{débit Production Reformat}} \quad (\text{IV.2})$$

- **Influence de la température**

Les évolutions de la production des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie en fonction de la température sont représentées en figure IV.1. L'augmentation de la température entraîne l'augmentation simultanée des critères de production et de consommation d'énergie. Toutefois, cette augmentation est très prononcée pour la production des aromatiques que pour la CSE. En effet, la variation de la température de 480 à 550 °C, conduit à une augmentation de production des aromatiques de 5700 à 6500 kg/h et la CSE de 1000 à 1400 kJ/kg de Reformat.

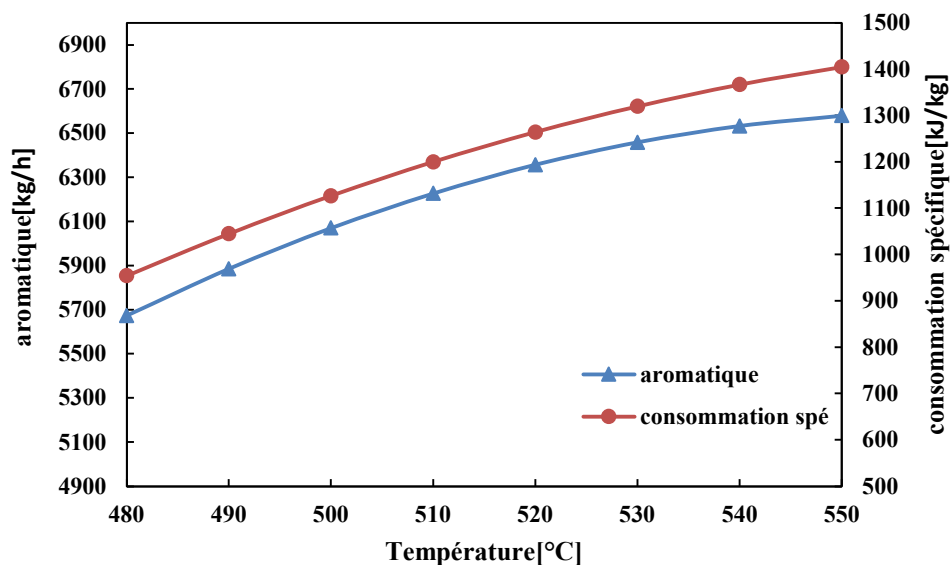


Figure IV.1. Production des aromatiques et consommation spécifique d'Énergie en fonction de la température

- **Influence de la vitesse spatiale**

L'influence de la vitesse spatiale sur la production des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie est illustrée en figure IV.2. Le débit des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie présentent des tendances inversées par rapport à l'augmentation de la vitesse spatiale. En effet, l'augmentation de la vitesse spatiale de 1 à 4.5 1/h conduit à une augmentation progressive du débit des aromatiques de 5000 à 6800 kg/h et une diminution de la CSE de 1400 à 1150 ensuite une légère augmentation jusqu'à 1200 kJ/kg Reformat. Ceci montre que ce paramètre opératoire présentant une valeur optimale correspondant à 3.5 1/h, est très favorable à la production des aromatiques avec le minimum de consommation spécifique d'énergie calorifique.

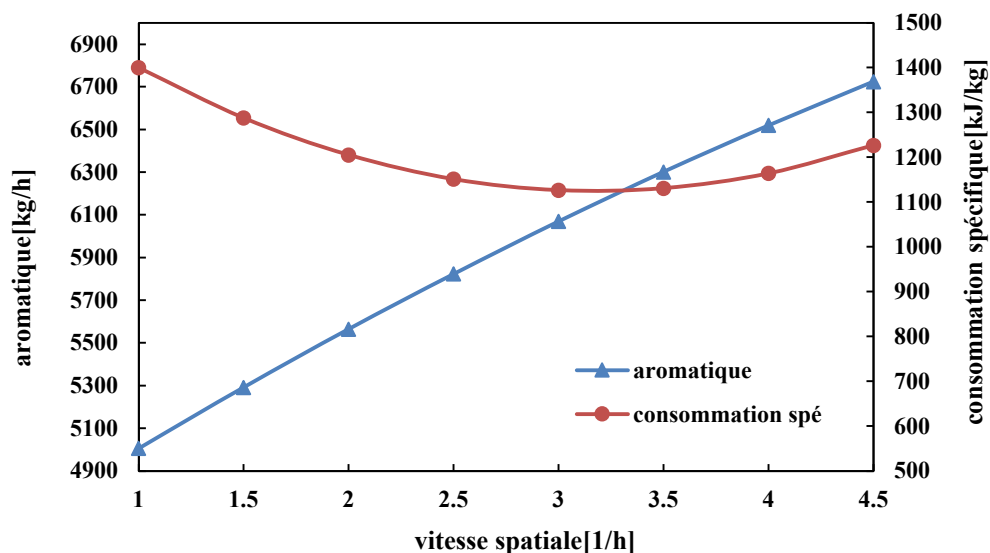


Figure IV.2. Production des aromatiques et consommation spécifique d'énergie en fonction de la vitesse spatiale

- **Influence du rapport hydrogène / hydrocarbures**

L'influence de rapport hydrogène/hydrocarbures sur la production des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie calorifique est représentée en figure IV.3. On constate que l'augmentation de l'hydrogène fait diminuer le débit des aromatiques de 6190 kg/h à 6060 kg/h, par contre la consommation spécifique d'énergie augmente de 1000 à 1160 kJ/kg. Cette augmentation peut être liée à une température de sortie des réacteurs, plus grande que la température d'hydrogène recyclé. A cet effet, l'augmentation de ce paramètre reste défavorable pour ces deux critères.

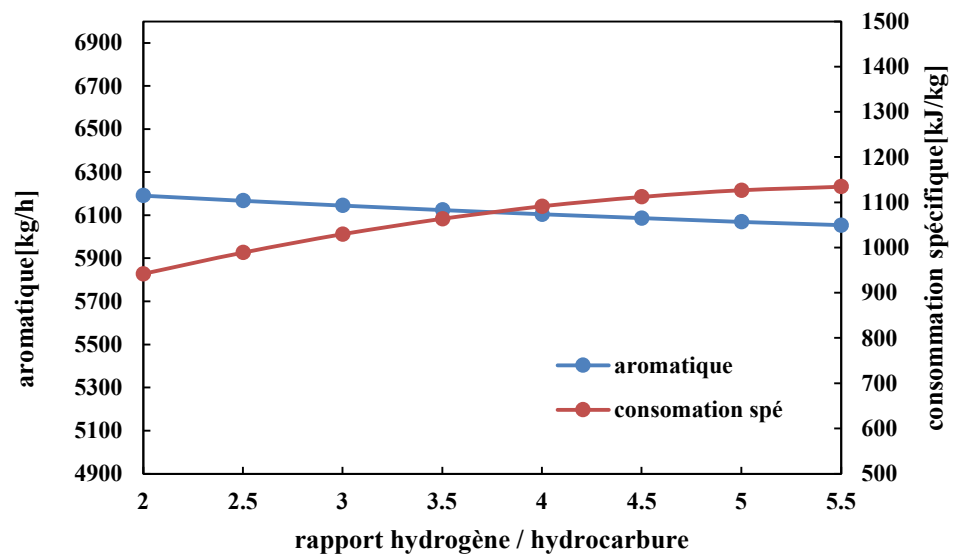


Figure IV.3. Production des aromatiques et consommation spécifique d'énergie en fonction du rapport H₂/HC

- **Influence de la pression**

L'influence de la pression est illustrée en figure IV.4. L'évolution de la production des aromatiques est complètement en accord avec la littérature, elle diminue avec l'augmentation de la pression. Elle chute de 6070 à 6005 kg/h lorsque la pression passe de 1.3 à 1.9 MPa. Quant à la consommation spécifique d'énergie, elle diminue aussi de 1130 à 1090 kJ/kg Reformat.

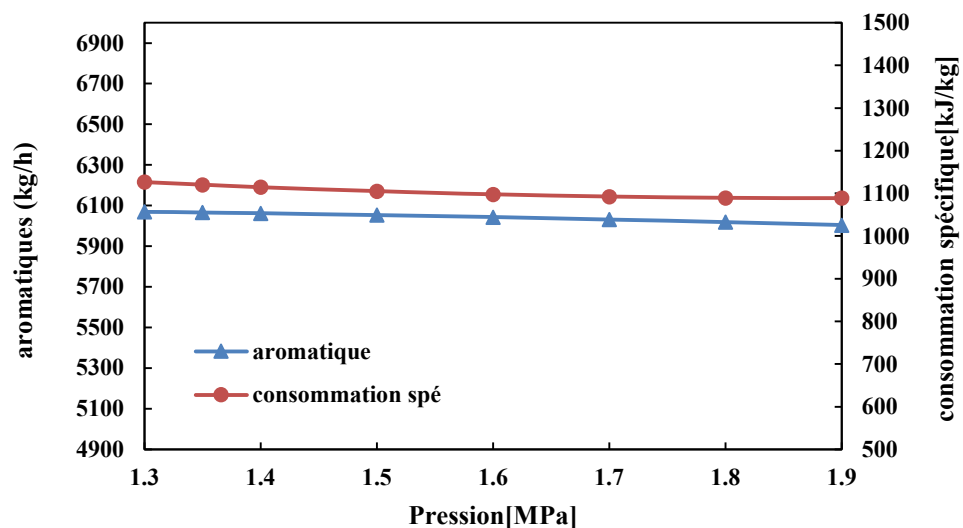


Figure IV.4. Production des aromatiques et consommation spécifique d'énergie en fonction de la pression

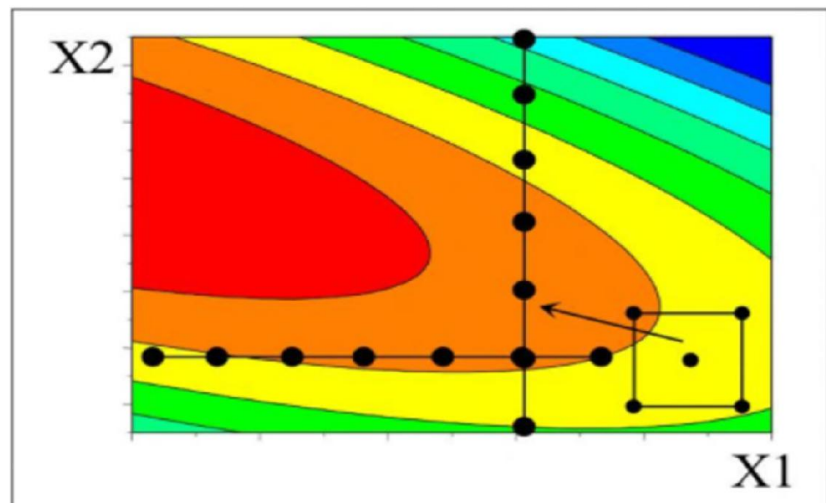
Dans l'ensemble, d'après les représentations précédentes, on peut dire que la température et la vitesse spatiale ont un impact plus grand sur la production des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie. Cependant, d'un point de vue graphique certains facteurs semblent ne pas avoir un grand effet sur la réponse. Ce qui nous conduit à passer à l'analyse de diagramme d'effet, afin de conclure sur la significativité des éléments du modèle envers ces tendances.

IV.2 Généralités sur l'approche du plan d'expériences

2.1 « Cost approach » et « DoE approach » [18]

L'optimisation d'un procédé, implique la régulation des facteurs importants afin que les résultats deviennent optimaux. Habituellement, cela se fait en modifiant la valeur d'un facteur à la fois jusqu'à ce qu'aucune amélioration supplémentaire ne soit effectuée. C'est ce qu'on appelle « *Cost approach* », illustrée en figure.IV.1. Néanmoins, il a été prouvé que cette approche est inefficace, changer un facteur à la fois ne donne pas nécessairement des informations sur l'optimum. Cela est particulièrement vrai que s'il existe une interaction entre les facteurs. La variation des deux facteurs, x_1 et x_2 (figure IV.1), une à la fois, rend difficile d'atteindre l'optimum.

La solution est de construire une série d'expériences soigneusement sélectionnées, dans lesquelles tous les facteurs pertinents varient simultanément. C'est ce qu'on appelle la conception expérimentale statistique ou le plan l'expérience ou bien « *Design of Experiments (DoE)* ». La figure.IV.1 montre aussi comment deux facteurs sont étudiés en même temps à l'aide d'un petit plan expérimental. L'analyse des données réelles des expériences réalisées permettra d'identifier les conditions optimales et de révéler les facteurs les plus influents. En d'autres termes, l'approche *DoE* fournit une base fiable pour la prise de décision et fournit ainsi un cadre pour changer tous les facteurs importants systématiquement, et avec un nombre limité d'expériences.



**Figure IV.5. Illustration
« cost approach » et
« DoE approach »**

2.2 Définition et objectifs du plan d'expériences

La conception expérimentale consiste à savoir comment mener et planifier des expériences afin d'extraire un maximum d'informations des données collectées, dans le plus petit nombre d'essais expérimentaux. L'idée de base est de faire varier simultanément tous les facteurs pertinents sur un ensemble d'expériences planifiées, puis de relier les résultats au moyen d'un modèle mathématique. Ce modèle est ensuite utilisé pour l'interprétation, les prévisions et l'optimisation.

Fondamentalement, il existe trois principaux types de problèmes auxquels le « DoE » s'applique. Ces zones problématiques seront appelées objectifs expérimentaux. Le premier objectif expérimental est *le criblage « screening »*, il est utilisé pour découvrir les facteurs les plus influents et pour déterminer dans quelles plages ils doivent être examinés. Le deuxième objectif expérimental est *l'optimisation (méthode MSF Méthodologie des Surface des Réponses)*. L'intérêt est de définir quelle combinaison approuvée des facteurs importants aboutira à des conditions de fonctionnement optimales. Le troisième objectif expérimental est *le test de robustesse*, on veut déterminer dans quelle mesure une procédure de production est sensible à de petits changements dans les paramètres des facteurs.[18]

IV.3 Etude paramétrique du Reformage catalytique par l'approche DoE

Le progiciel *MODDE* (Modeling and Design) *version 6.0* est un programme Windows permettant de générer et d'évaluer des plans statistiques expérimentaux. Il utilise les principes du *DoE* pour analyser les processus et aide l'utilisateur à obtenir des informations précieuses à partir des données brutes. Avec différents outils d'analyse et de visualisation, l'utilisateur obtient de l'aide pour comprendre des processus complexes et a la possibilité d'améliorer les processus en réalisant des conceptions expérimentales suggérées.

3.1 Méthodologie suivie

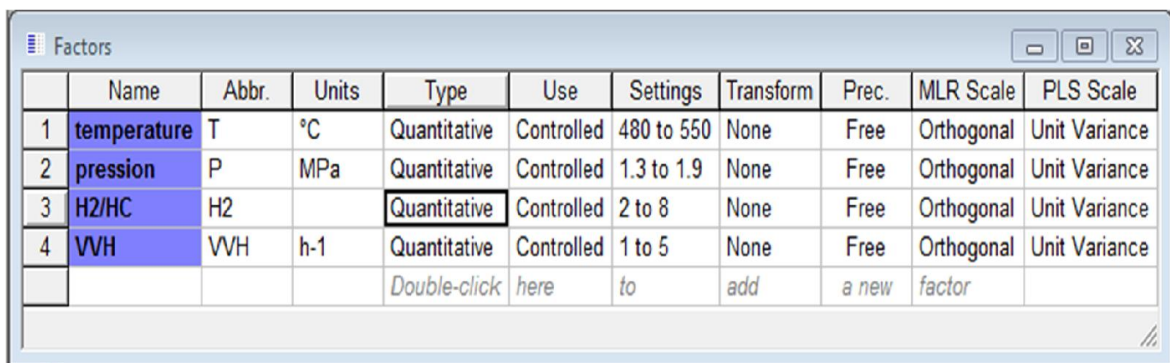
L'expérimentateur doit spécifier certaines conditions d'entrée, le nombre de facteurs et leurs plages, le nombre de réponses et les objectifs expérimentaux. Ensuite, le plan expérimental est créé et ses expériences sont menées, soit en parallèle, soit l'une après l'autre. Chaque expérience donne des résultats, c'est-à-dire des valeurs des variables de réponse. Par la suite, ces données sont analysées par analyse de régression. Cela donne un modèle reliant les changements des facteurs aux changements des réponses. Le modèle indiquera quels facteurs sont importants et comment ils se combinent pour influencer les réponses. Les résultats de la modélisation peuvent

également être convertis en tracés de contour de réponse, appelés courbes iso-réponses, qui sont utilisés pour clarifier où les meilleures conditions de fonctionnement sont attendues.

3.1.1 Les facteurs

Les facteurs sont des grandeurs physiques variables qui, en raison du changement de leurs niveaux, exerceront une influence sur le système ou le procédé.

Dans le processus de reformage catalytique, à l'exception de la propriété du catalyseur et du naphta, les principaux facteurs affectants comprennent **la température, la pression, la vitesse spatiale et le rapport hydrogène/hydrocarbure** (figure IV.2). Ces paramètres majeurs constituent une base théorique importante pour une meilleure supervision de la production et pour déterminer des conditions d'exploitation raisonnables.

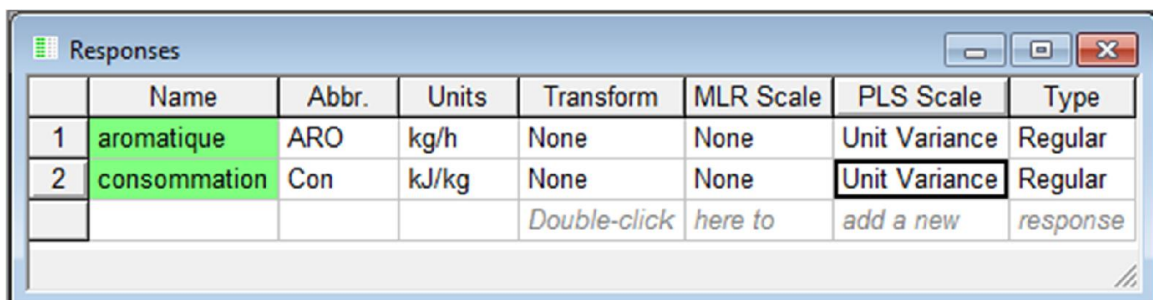


	Name	Abbr.	Units	Type	Use	Settings	Transform	Prec.	MLR Scale	PLS Scale	
1	temperature	T	°C	Quantitative	Controlled	480 to 550	None	Free	Orthogonal	Unit Variance	
2	pression	P	MPa	Quantitative	Controlled	1.3 to 1.9	None	Free	Orthogonal	Unit Variance	
3	H2/HC	H2		Quantitative	Controlled	2 to 8	None	Free	Orthogonal	Unit Variance	
4	VVH	VVH	h-1	Quantitative	Controlled	1 to 5	None	Free	Orthogonal	Unit Variance	
				Double-click here to add a new factor							

Figure IV.6. Choix des facteurs et leurs plages dans MODDE 6.0

3.1.2 Les réponses

Dans cette étape, il est important de sélectionner des réponses pertinentes en fonction de la formulation du problème. De nombreuses réponses sont souvent nécessaires pour bien cartographier les caractéristiques de performance d'un procédé. Dans notre problématique, on va étudier la variation de débit des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie (figure IV.3).



	Name	Abbr.	Units	Transform	MLR Scale	PLS Scale	Type
1	aromatique	ARO	kg/h	None	None	Unit Variance	Regular
2	consommation	Con	kJ/kg	None	None	Unit Variance	Regular
				Double-click here to add a new response			

Figure IV.7. Choix des réponses dans MODDE 6.0

3.1.3 Choix du modèle

Cette sélection fait partie intégrante de la formulation du problème. On distingue les trois principaux types de modèles polynomiaux, qui sont fréquemment utilisés. Ce sont des modèles polynomiaux linéaires, d'interaction et quadratiques

- **Modèle linéaire**

Dans ce cas, un terme linéaire signifie une combinaison d'un coefficient β_i et d'un facteur x_i . Un modèle linéaire à quatre facteurs présente les éléments suivants d'équation :

$$y = \beta_0 + \beta_1x_1 + \beta_2x_2 + \beta_3x_3 + \beta_4x_4 + \varepsilon \quad (\text{IV.1})$$

- **Modèle d'interaction**

Le modèle d'interaction contient les mêmes termes que le modèle linéaire mais a des termes d'interaction supplémentaires. Le terme d'interaction est la combinaison de deux facteurs x_i et x_j avec un coefficient conjoint β_{ij} . L'équation (IV.2) donne un modèle d'interaction à trois facteurs.

$$y = \beta_0 + \beta_1x_1 + \beta_2x_2 + \beta_3x_3 + \beta_4x_4 + \beta_{12}x_1x_2 + \beta_{13}x_1x_3 + \beta_{14}x_1x_4 + \beta_{23}x_2x_3 + \beta_{24}x_2x_4 + \beta_{34}x_3x_4 + \varepsilon \quad (\text{IV.2})$$

- **Modèle quadratique**

Le troisième modèle couramment utilisé est le modèle quadratique. Un terme quadratique est le carré d'un facteur x_i avec son coefficient β_{ii} . Les modèles quadratiques sont les plus complexes des trois types de modèles de base et sont utilisés pour les processus d'optimisation. De la même manière que les modèles précédents, un modèle quadratique à trois facteurs s'écrit sous la forme suivante :

$$y = \beta_0 + \beta_1x_1 + \beta_2x_2 + \beta_3x_3 + \beta_4x_4 + \beta_{12}x_1x_2 + \beta_{13}x_1x_3 + \beta_{14}x_1x_4 + \beta_{23}x_2x_3 + \beta_{24}x_2x_4 + \beta_{34}x_3x_4 + \beta_{11}x_1^2 + \beta_{22}x_2^2 + \beta_{33}x_3^2 + \beta_{44}x_4^2 + \varepsilon \quad (\text{IV.3})$$

3.1.4 Le design

L'ensemble d'essais expérimentaux couvrant la région expérimentale est appelée design. Un plan de deuxième degré appelé « plan composite à faces centrées CCF » constitué par des surfaces de réponse (RSM), offrant une modélisation quadratique est proposé pour établir une relation entre les facteurs et les réponses (figure IV.4).

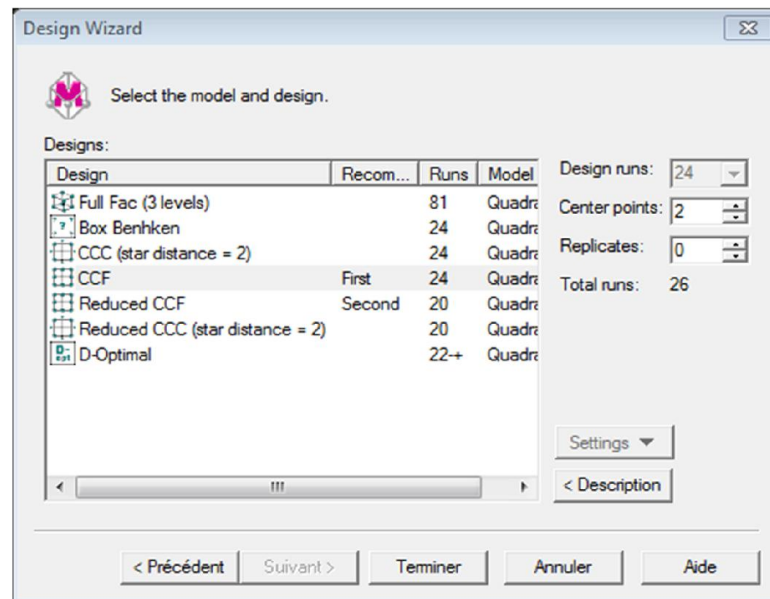


Figure IV.8. Choix de modèle quadratique avec le design composite à face centré CCF

3.2 Essais du plan d'expérience

Le tableau IV.1 donne les conditions expérimentales triées par défaut selon le plan d'expériences. Les valeurs des réponses sont celles calculées auparavant par le logiciel Aspen-Hysys.

Tableau IV.1. Les 26 Essais du plan d'expériences

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
	Exp No	Exp Name	Run Order	Incl/Excl	temperature	pression	H2/HC	VVH	aromatique	consommation
1	1	N1	13	Incl	480	1.3	2	1	4746.67	1046.21
2	2	N2	9	Incl	550	1.3	2	1	5376.62	1475.3
3	3	N3	23	Incl	480	1.9	2	1	4680.08	1036.88
4	4	N4	12	Incl	550	1.9	2	1	5406.98	1475.76
5	5	N5	22	Incl	480	1.3	8	1	4656.68	1144.45
6	6	N6	11	Incl	550	1.3	8	1	5359.68	1624.81
7	7	N7	26	Incl	480	1.9	8	1	4580.27	1142.2
8	8	N8	3	Incl	550	1.9	8	1	5357.9	1632.91
9	9	N9	19	Incl	480	1.3	2	5	6647.77	951.84
10	10	N10	8	Incl	550	1.3	2	5	7766.81	1346
11	11	N11	16	Incl	480	1.9	2	5	6544.45	928.84
12	12	N12	5	Incl	550	1.9	2	5	7775.52	1345.9
13	13	N13	2	Incl	480	1.3	8	5	6309.75	1085.96
14	14	N14	4	Incl	550	1.3	8	5	7674.64	1612.58
15	15	N15	20	Incl	480	1.9	8	5	6174.54	1059.56
16	16	N16	25	Incl	550	1.9	8	5	7686.27	1609.62
17	17	N17	6	Incl	480	1.6	5	3	5071.68	1331.54
18	18	N18	15	Incl	550	1.6	5	3	6586.3	1411.21
19	19	N19	10	Incl	515	1.3	5	3	6285.39	1344.47
20	20	N20	18	Incl	515	1.9	5	3	6258.86	1119.11
21	21	N21	1	Incl	515	1.6	2	3	6399.99	1050.01
22	22	N22	7	Incl	515	1.6	8	3	6112.87	1550.78
23	23	N23	14	Incl	515	1.6	5	1	5179.93	1509.01
24	24	N24	24	Incl	515	1.6	5	5	7160.08	1399.28
25	25	N25	17	Incl	515	1.6	5	3	6283.02	1159.11
26	26	N26	21	Incl	515	1.6	5	3	6281.75	1149.2

3.3 Ajustement et validité du modèle [19]

Les statistiques récapitulatives sont représentées en histogrammes (figure IV.5). Quatre indicateurs sont utilisés pour l'appréciation de l'ajustement et la validité du modèle :

- Coefficient d'ajustement (R2), un modèle avec R2 de 0,5 est un modèle de signification plutôt faible.
- Coefficient de prédictions (Q2), il affiche une estimation de la précision de prédiction. Q2 doit être supérieur à 0,1 pour un modèle significatif et supérieur à 0,5 pour un bon modèle. La différence entre R2 et Q2 doit également être inférieure à 0,3 pour un bon modèle.
- Barre de validité, une valeur inférieure à 0,25 pour la validité du modèle indique la présence de valeurs aberrantes, un modèle incorrect ou un problème de transformation. Une valeur faible peut également indiquer qu'une interaction ou un carré, est manquant.
- Reproductibilité ; indique la variation des répliques par rapport à la variabilité globale. La reproductibilité doit être supérieure à 0,5.

	1	2	3	4	5	6	7	8	9
1		R2	R2 Adj.	Q2	SDY	RSD	N	Model Validity	Reproducibility
2	aromatique	0.99371	0.985705	0.970289	998.993	119.44	26	-0.2	0.999999
3	consommation	0.846645	0.651466	0.370342	226.99	134.008	26	0.186423	0.999047
4									
5	N = 26	Cond. no. = 6.6024							
6	DF = 11	Y-miss = 0							
7									

Tableau IV.2. validité du modèle

On constate à travers cette représentation que les coefficients R2, Q2 et la reproductibilité ont de très bonnes valeurs pour la réponse des aromatiques. Ces indicateurs atteignent pour cette réponse une valeur supérieure à 0.8 par contre la reproductibilité atteint la valeur de 1. Toutefois, la valeur de la barre de validité est négative pour la réponse des aromatiques et faible pour la consommation spécifique d'énergie. Ainsi, pour l'amélioration de ces indicateurs, les réponses aberrantes doivent être éliminées. Pour cela l'analyse graphique permet de détecter ces réponses défectueuses.

3.4 Analyse graphique

La représentation des valeurs de réponses observées (observed) en fonction des valeurs de réponses calculées (predicted) en figures IV.6 et IV.7, montre bien que les réponses calculées par le modèle traduisent assez bien la réalité. Les points représentatifs sont proches de la ligne bissectrice ce qui indique la fiabilité du modèle, en particulier pour la réponse des aromatiques. D'autre part, cette illustration a permis de détecter les essais aberrantes 17, 22, 14 et 16 afin de les supprimer et corriger le modèle. Notons, que cette réduction d'essais est sans effet sur l'enquête.

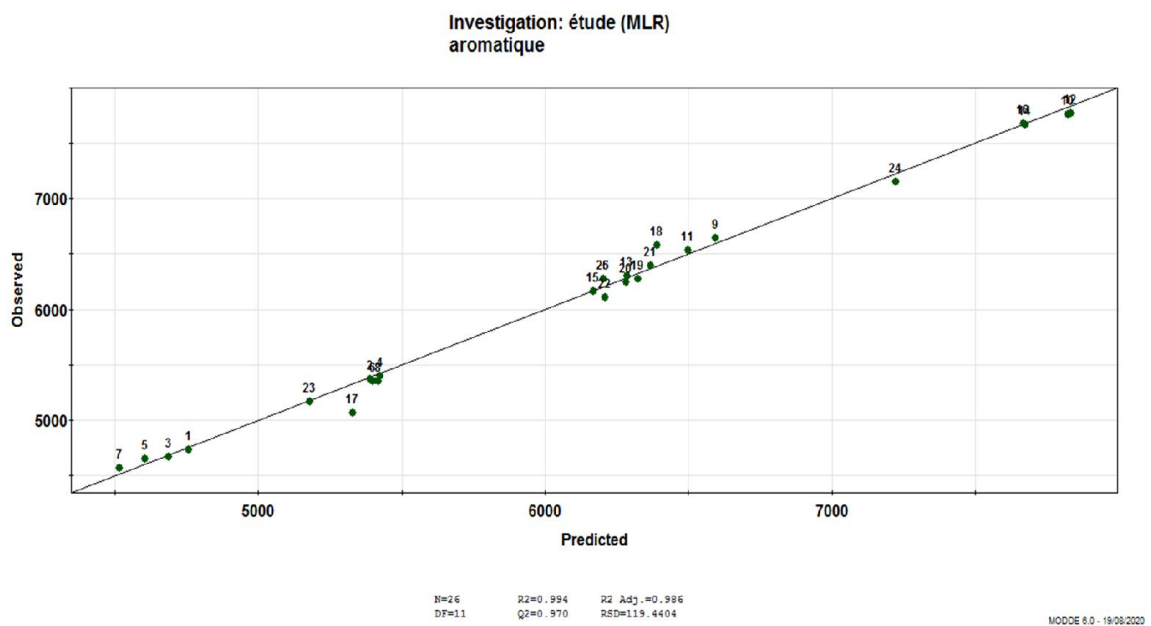


Figure IV.9. Valeurs observées en fonction de valeurs calculées pour les aromatiques

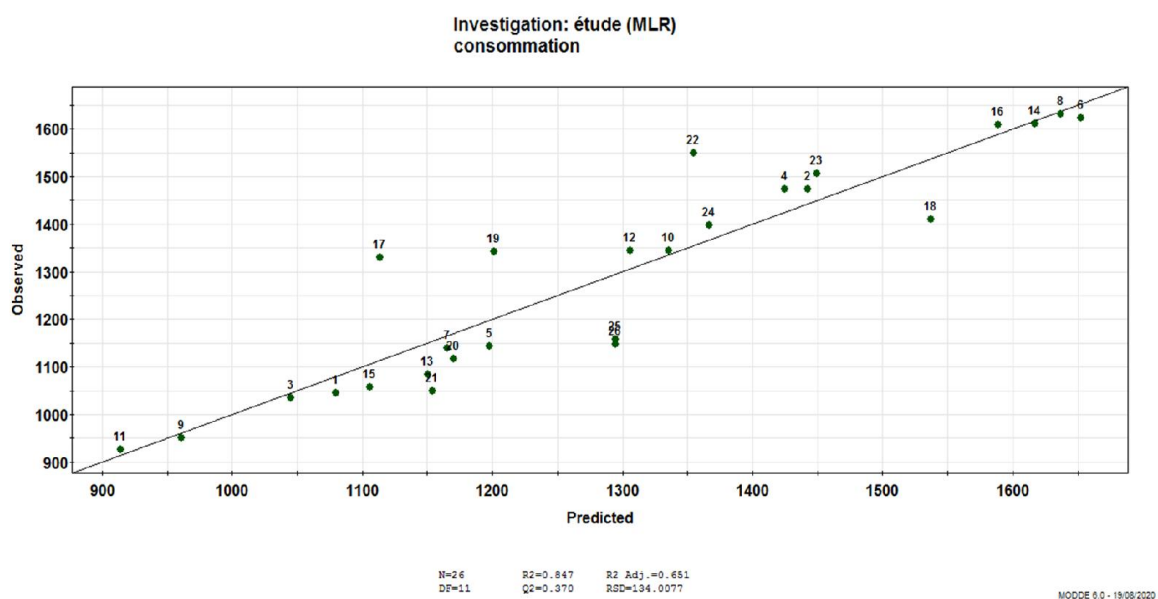


Figure IV.10. Valeurs observées en fonction de valeurs calculées pour la CSE

Après élimination des réponses aberrantes indiquées ci-dessus, les nouveaux histogrammes modifiés et améliorés sont représentés en figure IV.8 suivante. Il est évidemment clair que la barre de validité s'est améliorée et devient supérieure à 0.25 pour les deux cas, et le modèle est validé et fiable pour son utilisation.

	1	2	3	4	5	6	7	8	9
1		R2	R2 Adj.	Q2	SDY	RSD	N	Model Validity	Reproducibility
2	aromatique	0.999966	0.999897	0.9996	942.155	9.55923	22	0.321416	0.999999
3	consommation	0.969559	0.908676	0.701015	215.123	65.0098	22	0.355825	0.998939
4									
5	N = 22	Cond. no. = 9.7868							
6	DF = 7	Y-miss = 0							
7									

Tableau IV.3. Validité du modèle modifiés et améliorés.

3.5 Diagrammes d'Effets

Le but de cette analyse est d'identifier les facteurs et les interactions ayant une influence statistiquement significative sur les réponses. Le diagramme des effets présente une représentation graphique des termes du modèle afin de déterminer leur signification. Les figures IV.9 et IV.10, illustrent ces diagrammes à barres pour les réponses de la production des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie.

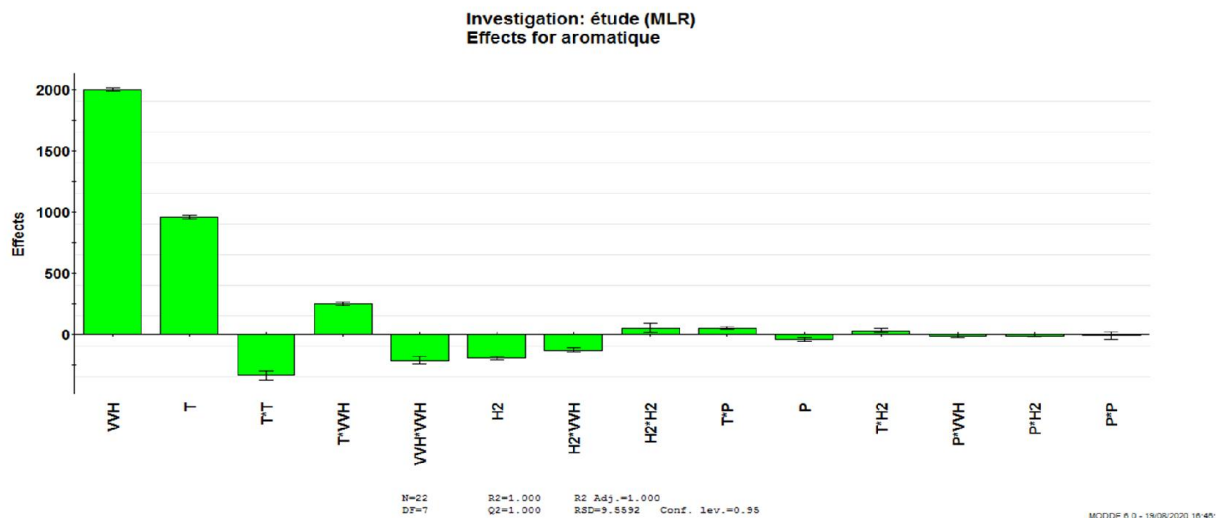


Figure IV.11. Effet des différents facteurs sur la production des aromatiques

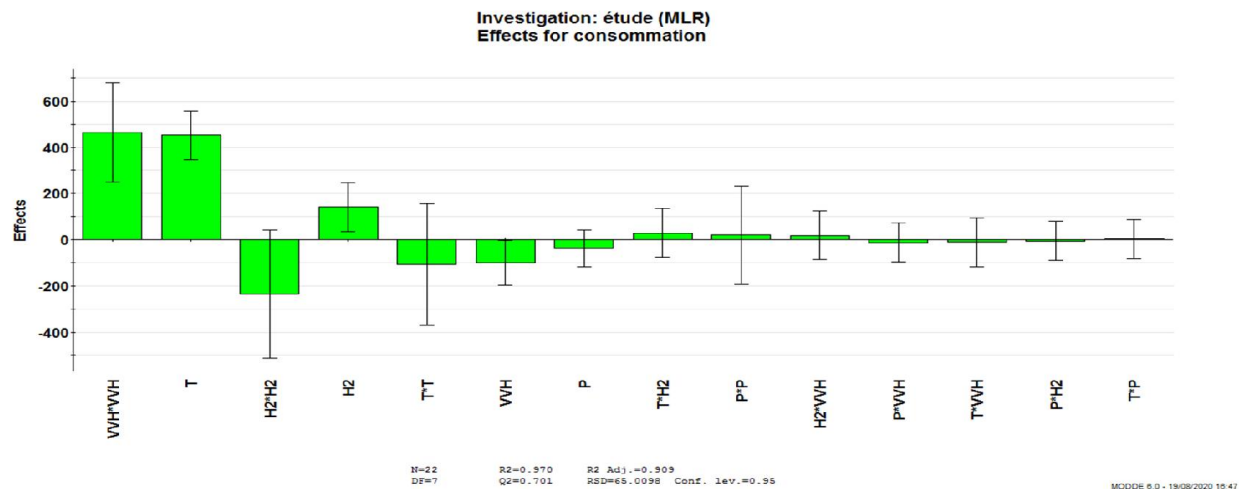


Figure IV.12. Effet des différents facteurs sur la consommation spécifique d'énergie

Pour la figure IV.9, on constate qu'étant donnée la plage d'incertitude est faible, presque tous les facteurs sont significatifs. Les facteurs dominants sur la production des aromatiques sont : la vitesse spatiale (VVH), la température (T ; T*T) et l'interaction entre la température et la vitesse spatiale. Pour la figure IV.10, on remarque que la vitesse spatiale (VVH ; VVH*VVH), la température et le rapport hydrogène/hydrocarbures (H2) sont les paramètres les plus influents sur la consommation spécifique d'énergie. Ainsi, on peut conclure que pour l'ensemble, les paramètres qui ont le grand impact sur la production des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie sont la température et la vitesse spatiale. Ce résultat a été déjà mis en évidence lors de l'étude paramétrique simple.

3.6 Analyse des courbes iso-réponses

Ce type de figure est utile pour comprendre l'impact des interactions et nous permet d'avoir les domaines optimaux de température et de vitesse spatiale pour une production maximale d'aromatique et un minimum de consommation spécifique d'énergie. De ce fait, les courbes iso-réponses pour une pression fixe égale à 1.4 MPa et un rapport H2/HC égal à 4, sont représentées en figures IV.11 et IV.12 respectivement pour la production des aromatiques et la consommation spécifique d'énergie.

La production d'un débit d'aromatique supérieur à ce de design, égale 6194kg/h fait apparaitre des domaines d'efficacité prononcée pour des températures entre 500-550°C et de vitesse spatiale supérieur à 3 (1/h). Par contre, la recherche d'une consommation spécifique d'énergie

proche de celle du design (1212kJ/kg), conduit à un domaine nominal de vitesse spatiale entre 1.8 et 4.5 (1/h) et une variation de température entre 480-530°C.

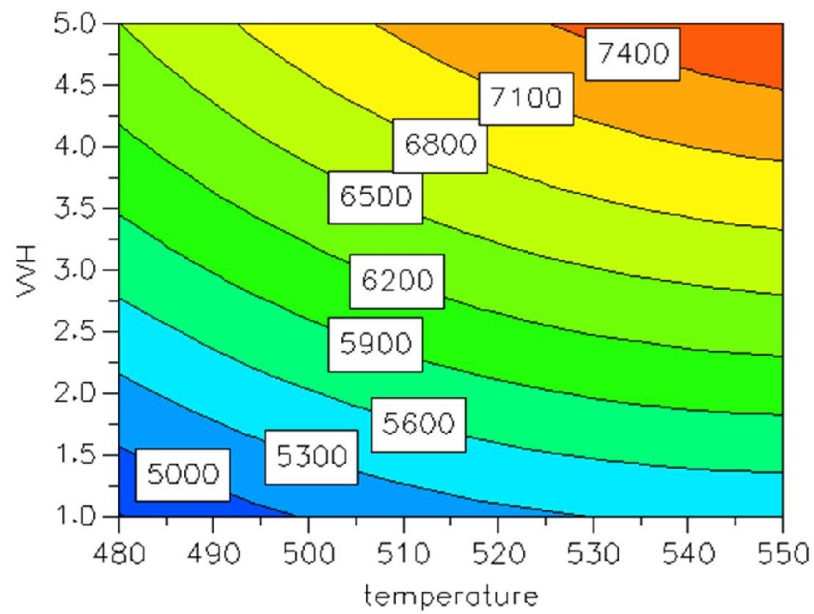


Figure IV.13. Courbes d'iso-réponse des aromatiques en fonction de la température et la vitesse spatiale

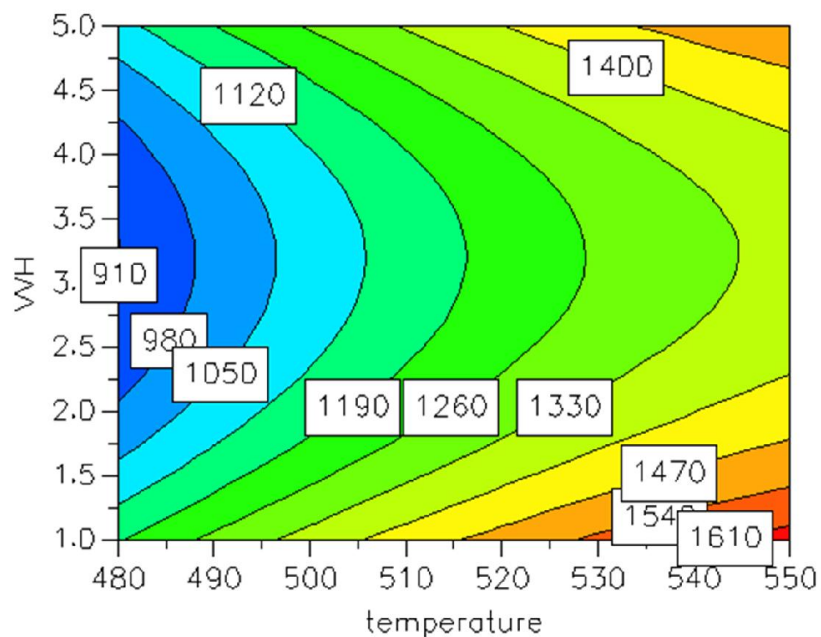


Figure IV.14. Courbe d'iso-réponses de la CSE en fonction de la température et la vitesse spatiale

3.7 Recherche des conditions optimales

D'après l'analyse effectuée par le logiciel « *MODDE 6.0* », on constate que la recherche et la vérification du point optimal est simple (tableau III.2). Selon les valeurs données par le programme, la maximisation des aromatiques et la minimisation de la consommation spécifique d'énergie peut être réalisée par l'expérience correspondante à une température de 528.7°C, une pression de 1.89 MPa, une vitesse spatiale de 4.65 1/h et un rapport hydrogène/hydrocarbure de 2.

Tableau III.4. Les conditions de réponses optimales

	1	2	3	4	5	6
	temperature	pression	H2/HC	VVH	aromatique	consommation
1	544.889	1.3	2	3.7467	7086.91	1194.14
2	531.778	1.3	2	4.4012	7322.12	1206.45
3	528.732	1.8903	2	4.6547	7385.3	1189.78
4	549.991	1.3094	2	4.0749	7292.59	1234.12
5	546.001	1.3002	2	4.0891	7278.34	1224.5
6	549.58	1.9	2.0174	4.0512	7284.88	1197.89
7	544.783	1.5997	2	4.4969	7487.96	1240.67
8	524.086	1.3785	2	4.69	7368.24	1203.82

Les modèles mathématiques utilisés pour calculer nos réponses sont les suivants :

$$y_1 = 6279.55 + 477.549x_1 - 22.0673x_2 - 97.8005x_3 + 998.527x_4 + 24.5232x_1x_2 + 14.2972x_1x_3 + 122.982x_1x_4 - 8.865x_4x_2 - 65.9418x_4x_3 - 6.812x_2x_3 - 168.913x_1^2 - 6.4843x_2^2 + 24.5249x_3^2 - 108.604x_4^2$$

$$y_2 = 1204.82 + 226.314x_1 - 18.311x_2 + 70.7435x_3 - 49.3131x_4 + 1.107x_1x_2 + 14.3043x_1x_3 - 5.677x_1x_4 - 6.1375x_4x_2 + 9.0768x_4x_3 - 53.6965x_1^2 + 10.0848x_2^2 - 117.839x_3^2 + 232.44x_4^2$$

Avec :

y_1 : Quantité d'aromatique, y_2 : La consommation spécifique d'énergie, x_1 : La température, x_2 : La pression, x_3 : Le rapport hydrogène sur hydrocarbures, x_4 : La vitesse spatiale.

Conclusion et Perspectives

Dans le cadre du projet de fin d'étude, nous avons effectué un stage au sein de la société nationale SONATRACH, précisément dans la raffinerie d'Adrar. Ce stage fructueux nous a été très bénéfique car il nous a permis d'explorer toutes les unités de la raffinerie et mieux comprendre le processus du reformage catalytique.

La simulation de la section réactionnelle de l'unité de reformage catalytique sous les conditions opératoires collectés durant 3 jours et du design ont été effectuées par le logiciel Aspen Hysys. Les résultats de simulation ont montré une prédiction acceptable des paramètres après la validation avec les données de la raffinerie.

Les problèmes rencontrés lors la réalisation de la simulation rendirent cette étape délicate et difficile à mettre en place surtout au niveau des réacteurs, ce qui nous a poussé à étudier en détails le fonctionnement de « l'Aspen Hysys », par conséquent nous avons développé nos connaissances dans les différents domaines touchant au reformage catalytique. Puisque, nous étions obligés de simuler plusieurs équipements, comme les réacteurs, les fours, la colonne ...

La conception et l'interprétation de l'étude paramétrique sur l'unité de reformage catalytique sont compliquées en raison de la variété des réactions concurrentes qui se déroulent simultanément. Ces réactions sont dictées par les conditions opératoires et les propriétés du catalyseur. Par conséquent, l'établissement d'une stratégie appropriée pour une conception expérimentale bien définie est d'une importance primordiale afin d'obtenir des données significatives et fiables. La stratégie adoptée et les procédures suivies étaient telles qu'elles élucidaient les effets de la température, de la pression, du rapport hydrogène sur hydrocarbures et de la vitesse spatiale sur la performance de l'unité.

Une analyse de sensibilité de la qualité du produit (aromatiques) et de la consommation spécifique d'énergie est effectuée grâce à deux méthodes :

La première, en faisant varier les conditions de fonctionnement un par un et l'autre en variant tous les paramètres simultanément par le logiciel MODDE. Ces deux méthodes ont montré que la vitesse spatiale et la température ont un impact plus grand sur la production des aromatiques et la consommation d'énergie.

L'optimisation du processus réalisé, a montré qu'il est possible d'avoir une production d'aromatiques supérieure à 7400kg/h à des températures et des vitesses spatiales supérieures à 525°C et 4.5 1/h respectivement. Ce qui implique une augmentation d'environ 18% d'aromatiques avec une consommation spécifique presque identique du design.

Enfin comme perspectives et poursuite de ce travail, nous préconisons les considérations ci-après :

Premièrement, pour une bonne fiabilité et validité du modèle, et devant la complexité des réactions chimiques, la cinétique réactionnelle, doit être approchée de manière plus représentative.

Deuxièmement, la vitesse de dépôt de carbone sur le catalyseur, favorable à basse pression et à faible rapport hydrogène/ hydrocarbures, n'a pas été prise en considération lors de la modélisation. Pour remédier à cette insuffisance, l'étude doit prendre en considération ce paramètre opératoire, tout en se basant et se référant aux travaux antérieurs dans ce domaine.

Troisièmement, il est souhaitable d'utiliser les dernières versions d'Aspen HYSYS, qui offrent des modèles de simulation orientés au raffinage, en particulier au reformage catalytique.

Bibliographie

- [1] Wauquier, J. P., Leprince, P., Trambouze, P., & Favennec, J. P. Le raffinage du pétrole Vol. (3), Editions Technip, Paris, France (1998). (Wauquier, 1998)
- [2] Economides, M. J., Hill, D. A., & Ehlig-Economides, C. Petroleum Production Systems, Prentice Hall (1^{re} éd.), New Jersey, USA (1993).
- [3] Wauquier, J. P. Petroleum Refining: Crude oil, Petroleum Products, Process flowsheets, (Vol. 1), Éditions Technip, Paris, France (1995).
- [4] Wuithier, P. Le Pétrole Raffinage et Génie Chimique (Vol. 1), Editions Technip. Paris, France (1965).
- [5] Travers, C., & Clause, O. (sous presse). Le raffinage du pétrole brut : Produire de l'essence grâce au reformage catalytique. L'actualité chimique.
- [6] Blon. le pétrole (Exposé de chimie). Consulté à l'adresse <https://fr-static.z-dn.net/files/df6/b08f2492eda58626288851b86b42e85e.pdf> (2011).
- [7] Antos, G. J. Catalytic Naphtha Reforming (Chemical Industries) (1^{re} éd., Vol. 61). CRC Press New York, USA (1994).
- [8] Oyekan, S. O. (2019). Catalytic Naphtha Reforming Process (CRC Press éd.) Taylor & Francis, Florida, USA :
- [9] Manuel opératoire de l'unité CRU, Raffinerie d'Adrar (R1AD) (2006)
- [10] Etude de danger de la raffinerie d'Adrar, Bureau d'Etudes Top Engineering Consulting, Juin (2007).
- [11] Rapport d'analyse détaillée des hydrocarbures, Raffinerie d'Adrar (R1AD), Juin 2009
- [12] Haydary, J. (2019). Chemical Process Design and Simulation : Aspen Plus and Aspen Hysys Applications (1^{re} éd.). USA : Wiley-AIChE.
- [13] Aspen HYSYS (Version 9) [logiciel de simulation]. (2020). Canada : Aspen Tech.
- [14] Ancheyta, J. (2011). Modeling and Simulation of Catalytic Reactors for Petroleum Refining (1^{re} éd.). New Jersey, USA : Wiley.

- [15] Marin, G. B., & Froment, G. F. (1982). Reforming of C6 hydrocarbons on a Pt/Al₂O₃ catalyst. *Chemical Engineering Science*, 37(5), 759-773.
- [16] Van Trimont, P. A., Marin, G. B., & Froment, G. F. (1986). Kinetics of the reforming of C7 hydrocarbons on a commercial PtRe/Al₂O₃ catalyst. *Applied Catalysis*, 24(1-2), 53-68.
- [17] Manuel opératoire de l'unité CRU, Raffinerie d'Adrar (R1AD) (2006)
- [18] Eriksson, L. (2000). *Design of Experiments*. Umeå, suède : UMETRICS.
- [19] Umetrics AB. (12juin2017). MODDE 12.0.1 user guide. Umeå, suède : Sartorius Stedim Data Analytics.

Annexe A

Composition de la charge « Naphta »

Detailed Hydrocarbon Analysis Detail Report -		Report Date: 2009-6-17 14:07:20
RawFile: D:\DHA NASHUN\room-6171.CDF		Acquired: 06/17/09 08:32:35
Sample:		Analyzed: 2009-6-17 14:07:20
Processed 186 Peaks		
Reference File: D:\DHA NASHUN\DHA DATABASE 35\isolachin SHI-NAO-YOU.DHA		Normalized to 100.0000%
Comments:		

Oxygenates			
Compound	Mass%	Mass% Oxygen	Vol%
methyl-t-butylether : X5	0.310	0.056	0.303
t-amylmethylether : X6	0.714	0.112	0.687

Molecular Weight and Relative Density Data		
Group	Avg Mw.	Avg Rel. Density
C1	0.000	0.000
C2	0.000	0.000
C3	0.000	0.000
C4	0.000	0.000
C5	68.862	0.736
C6	85.392	0.692
C7	99.280	0.714
C8	113.018	0.730
C9	126.998	0.743
C10	141.734	0.741
C11	150.037	0.889
C12	0.000	0.000
C13	184.370	0.756
Total Sample:	107.00	0.72

Detailed Hydrocarbon Analysis Detail Report -		Report Date: 2009-6-17 14:07:20
RawFile: D:\DHA NASHUN\room-6171.CDF		Acquired: 06/17/09 08:32:35
Sample:		Analyzed: 2009-6-17 14:07:20
Processed 186 Peaks		
Reference File: D:\DHA NASHUN\DHA DATABASE 35\isolachin SHI-NAO-YOU.DHA		Normalized to 100.0000%
Comments:		

Totals by Group Type & Carbon Number (in Mass Percent)						
	Paraffins	I-Paraffins	Olefins	Naphthenes	Aromatics	Total
C1	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000
C2	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000
C3	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000
C4	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000
C5	0.03219	0.00667	0.17605	0.00000	0.00000	0.21491
C6	6.27944	3.79129	0.02832	5.24333	0.15824	15.50061
C7	8.26865	7.14175	0.25444	8.69944	0.64578	25.01006
C8	7.35141	10.85419	0.29367	7.33600	2.15393	27.98919
C9	5.72828	8.27905	0.88374	5.89146	1.71750	22.50003
C10	0.67922	4.72457	0.23812	0.88225	0.13985	6.66400
C11	0.00688	0.00748	0.00000	0.01595	0.03359	0.06390
C12	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000	0.00000
C13	0.00000	0.02024	0.00000	0.00000	0.00000	0.02024
Total:	28.34606	34.82523	1.87434	28.06842	4.84888	97.96293
	Oxygenates	1.02338		Total C14+:	0.15487	
	Total Unknowns:	0.85882		Grand Total:	100.00000	

Worksheet	Mass Fractions	Liquid Phase
n-Butane	0.0000	0.0000
i-Butane	0.0000	0.0000
n-Pentane	0.0003	0.0003
i-Pentane	0.0001	0.0001
n-Hexane	0.0641	0.0641
2-Mpentane	0.0387	0.0387
n-Heptane	0.0844	0.0844
2-Mhexane	0.0729	0.0729
n-Octane	0.0751	0.0751
224-Mpentane	0.1109	0.1109
n-Nonane	0.0585	0.0585
2-Moctane	0.0846	0.0846
n-Decane	0.0069	0.0069
22M-3Hexane	0.0483	0.0483
1-Undecene	0.0000	0.0000
1-Decene	0.0024	0.0024
1-Nonene	0.0090	0.0090
1-Octene	0.0030	0.0030
1-Heptene	0.0026	0.0026
1-Hexene	0.0003	0.0003
1-Pentene	0.0018	0.0018
n-C11	0.0000	0.0000
H2S	0.0000	0.0000
H2O	0.0000	0.0000
CO2	0.0000	0.0000
Nitrogen	0.0000	0.0000
Hydrogen	0.0000	0.0000
1-E-2-i-P-BZ	0.0003	0.0003
14-EBenzene	0.0014	0.0014
124-MBenzene	0.0175	0.0175
p-Xylene	0.0220	0.0220
Toluene	0.0066	0.0066
Benzene	0.0016	0.0016
Cyclododecane	0.0090	0.0090
Cyclononane	0.0602	0.0602
Cyclooctane	0.0749	0.0749
Cycloheptane	0.0888	0.0888
Cyclohexane	0.0536	0.0536
Ethylene	0.0000	0.0000
Propene	0.0000	0.0000
1-Butene	0.0000	0.0000
Cyclobutane	0.0000	0.0000
Oxygen	0.0000	0.0000
CO	0.0000	0.0000

Total 1.00000

Edit...

View Properties...

Basis...

Composition du reformat

Detailed Hydrocarbon Analysis Detail Report -		Report Date: 2010-1-7 9:10:57
RawFile: D:\DHA NASHUN\6001.CDF	Sample:	Acquired: 01/06/10 15:10:09
Processed 247 Peaks	Reference File: D:\DHA NASHUN\DHA DATABASE 35\isolachin reformline.DHA	Analyzed: 2010-1-7 9:09:14
Comments:		Normalized to 100.0000%

Oxygenates

Compound	Mass%	Mass% Oxygen	Vol%
methyl-t-butylether : X5	1.185	0.215	1.226
ethyl-t-butylether : X6	0.035	0.006	0.036

Molecular Weight and Relative Density Data

Group	Avg Mw.	Avg Rel. Density
C1	0.000	0.000
C2	30.070	0.340
C3	44.097	0.501
C4	58.114	0.571
C5	72.130	0.623
C6	83.618	0.712
C7	95.603	0.776
C8	107.805	0.827
C9	120.922	0.854
C10	132.647	0.876
C11	151.745	0.817
C12	162.402	0.888
C13	184.370	0.756
Total Sample:	94.10	0.76

Octane Number

Research Octane Number: 94.10
(Calculated from Individual Component Values)

Contribution to Total by:

Paraffins:	5.42
Iso-Paraffins:	20.20
Aromatics:	65.50
Napthenes:	1.09
Olefins:	0.67
Oxygenates:	1.29

Detailed Hydrocarbon Analysis Detail Report -		Report Date: 2010-1-7 9:10:57
RawFile: D:\DHA NASHUN\6001.CDF	Sample:	Acquired: 01/06/10 15:10:09
Processed 247 Peaks	Reference File: D:\DHA NASHUN\DHA DATABASE 35\isolachin reformline.DHA	Analyzed: 2010-1-7 9:09:14
Comments:		Normalized to 100.0000%

Totals by Group Type & Carbon Number (in Mass Percent)

	Paraffins	I-Paraffins	Olefins	Napthenes	Aromatics	Total
C1	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000
C2	0.00137	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.00137
C3	1.02998	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	1.02998
C4	1.93746	1.12960	0.01479	0.0000	0.0000	3.08185
C5	1.94738	2.77801	0.04697	0.00101	0.0000	4.77337
C6	3.88941	7.58354	0.14779	0.45032	4.87609	16.94715
C7	2.74597	9.58339	0.54361	0.14277	16.09727	29.11301
C8	0.94191	3.86020	0.07163	0.54710	19.10168	24.52252
C9	0.22778	1.20951	0.02980	0.05707	14.20011	15.72427
C10	0.01614	0.12750	0.00411	0.03718	1.64184	1.82677
C11	0.00027	0.35302	0.0000	0.0000	0.38765	0.74093
C12	0.0000	0.00095	0.0000	0.00194	0.13995	0.14285
C13	0.0000	0.00317	0.0000	0.0000	0.0000	0.00317
Total:	12.73767	26.62890	0.85870	1.23738	56.44459	97.90724
Oxygenates	1.22065			Total C14+:	0.06806	
Total Unknowns:	0.80404			Grand Total:	100.00000	

Material Stream: Reformat vers stock

Worksheet Attachments Dynamics

Worksheet

- Conditions
- Properties
- Composition
- Oil & Gas Feed
- Petroleum Assay
- K Value
- User Variables
- Notes
- Cost Parameters
- Normalized Yields

	Mass Fractions	Liquid Phase
n-Butane	0.0147	0.0147
i-Butane	0.0000	0.0000
n-Pentane	0.0283	0.0283
i-Pentane	0.0253	0.0253
n-Hexane	0.0370	0.0370
2-Mpentane	0.0661	0.0661
n-Heptane	0.0197	0.0197
2-Mhexane	0.0865	0.0865
n-Octane	0.0242	0.0242
224-Mpentane	0.0647	0.0647
n-Nonane	0.0232	0.0232
2-Moctane	0.0148	0.0148
n-Decane	0.0022	0.0022
22M-3Ehexane	0.0195	0.0195
1-Undecene	0.0000	0.0000
1-Decene	0.0027	0.0027
1-Nonene	0.0098	0.0098
1-Octene	0.0032	0.0032
1-Heptene	0.0027	0.0027
1-Hexene	0.0003	0.0003
1-Pentene	0.0015	0.0015
n-C11	0.0000	0.0000
H2S	0.0000	0.0000
H2O	0.0000	0.0000
CO2	0.0000	0.0000
Nitrogen	0.0000	0.0000
Hydrogen	0.0000	0.0000
1-E-2-i-P-BZ	0.0004	0.0004
14-EBenzene	0.0156	0.0156
124-MBenzene	0.1332	0.1332
p-Xylene	0.1953	0.1953
Toluene	0.1489	0.1489
Benzene	0.0468	0.0468
Cyclodecane	0.0005	0.0005
Cyclononane	0.0001	0.0001
Cyclooctane	0.0055	0.0055
Cycloheptane	0.0016	0.0016
Cyclohexane	0.0055	0.0055
Ethylene	0.0000	0.0000
Propene	0.0000	0.0000
1-Butene	0.0000	0.0000
Cyclobutane	0.0000	0.0000
Oxygen	0.0000	0.0000
CO	0.0000	0.0000

Total 1,00000

Edit... View Properties... Basis...

OK

Delete Define from Stream... View Assay

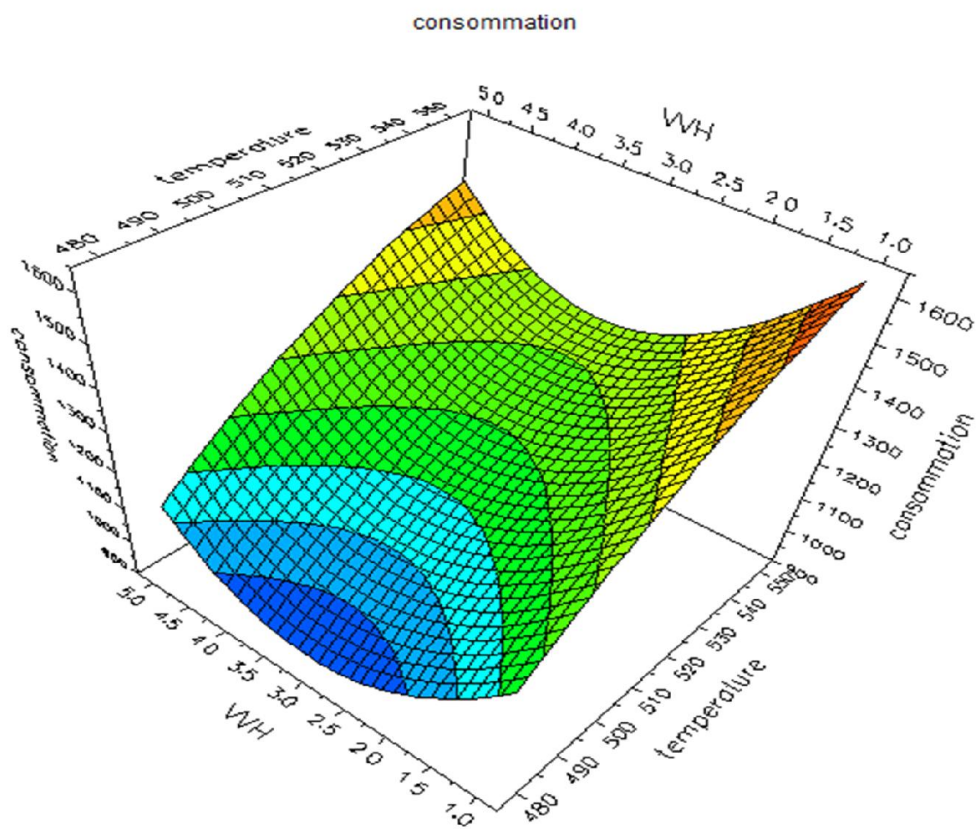
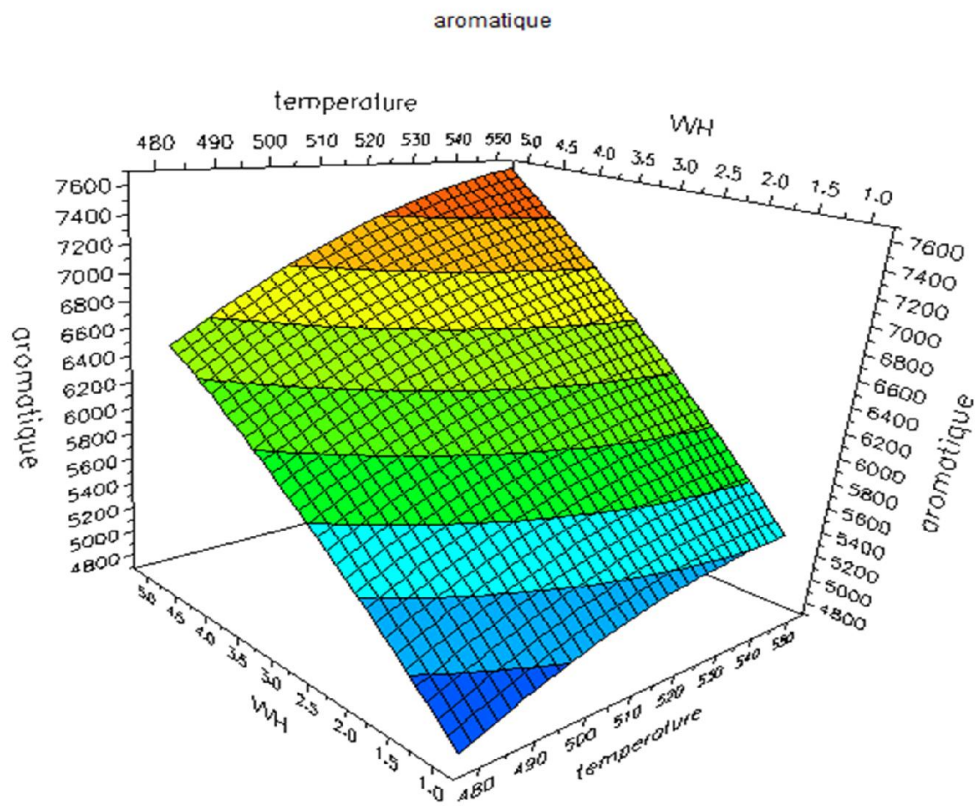
Annexe B

Une autre méthode d'analyse de validité par le tableau d'ANOVA

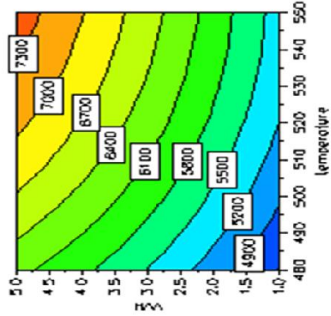
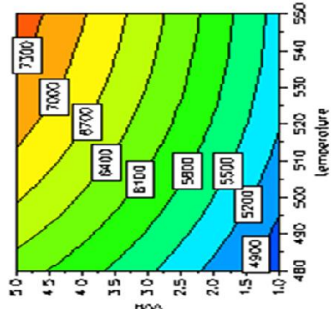
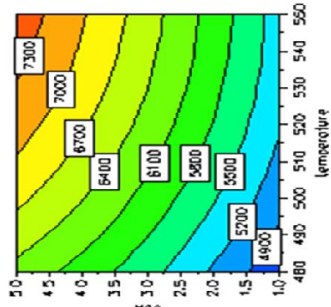
	1	2	3	4	5	6	7
1	aromatique	DF	SS	MS	F	p	SD
2				(variance)			
3	Total	22	8.08471e+008	3.67487e+007			
4	Constant	1	7.8983e+008	7.8983e+008			
5							
6	Total Corrected	21	1.8641e+007	887665			942.16
7	Regression	14	1.86403e+007	1.33145e+006	14570.7	0.000	1153.89
8	Residual	7	639.652	91.3789			9.55923
9							
10	Lack of Fit	6	638.846	106.474	132.083	0.067	10.3186
11	(Model Error)						
12	Pure Error	1	0.806119	0.806119			0.897841
13	(Replicate Error)						
14							
15	N = 22	Q2 = 1.000		Cond. no. = 9.7868			
16	DF = 7	R2 = 1.000		Y-miss = 0			
17		R2 Adj. = 1.000		RSD = 9.5592			

	1	2	3	4	5	6	7
1	consommation	DF	SS	MS	F	p	SD
2				(variance)			
3	Total	22	3.51921e+007	1.59964e+006			
4	Constant	1	3.42202e+007	3.42202e+007			
5							
6	Total Corrected	21	971836	46277.9			215.123
7	Regression	14	942252	67303.7	15.9251	0.001	259.43
8	Residual	7	29583.9	4226.28			65.0098
9							
10	Lack of Fit	6	29534.8	4922.47	100.245	0.076	70.1603
11	(Model Error)						
12	Pure Error	1	49.1042	49.1042			7.00744
13	(Replicate Error)						
14							
15	N = 22	Q2 = 0.701		Cond. no. = 9.7868			
16	DF = 7	R2 = 0.970		Y-miss = 0			
17		R2 Adj. = 0.909		RSD = 65.0098			

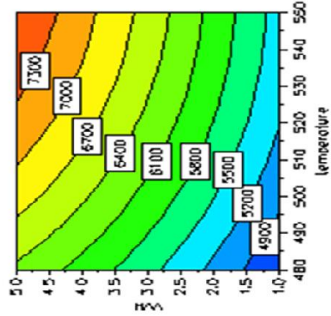
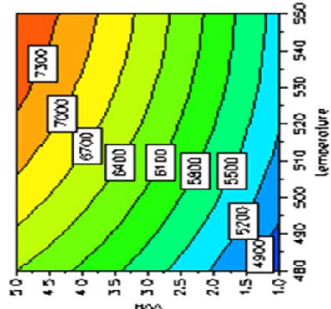
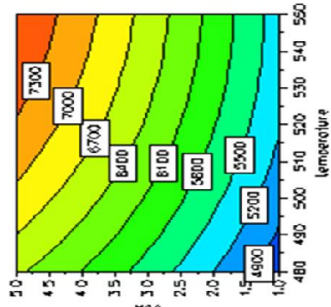
Le mode offre une méthode d'analyse par un graphe en 3 dimensions qui nous permet de visualiser la variation des aromatiques et la consommation d'énergie.



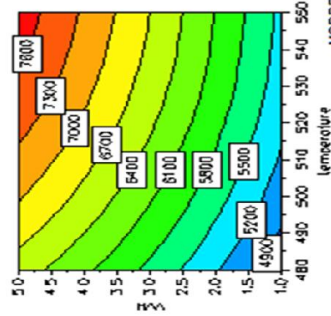
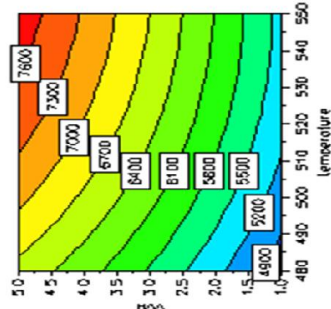
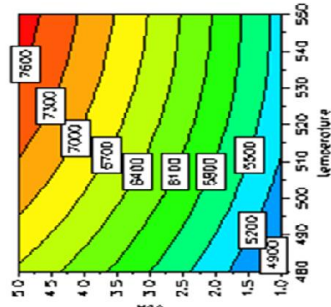
4D Contour of aromatique



H2/HC = 8



H2/HC = 5



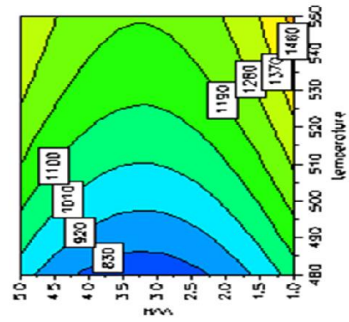
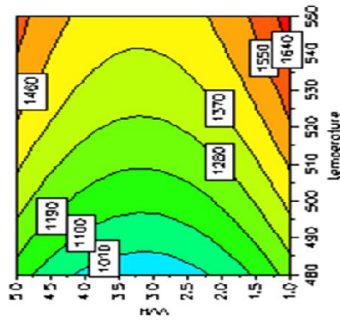
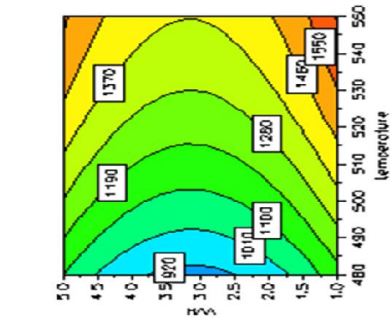
H2/HC = 2

pression = 1.3

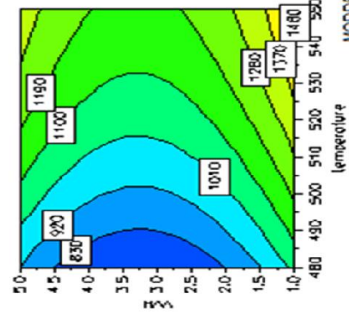
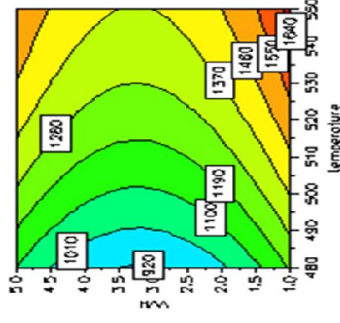
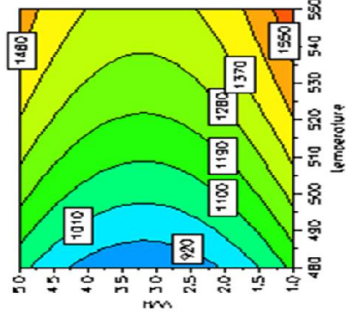
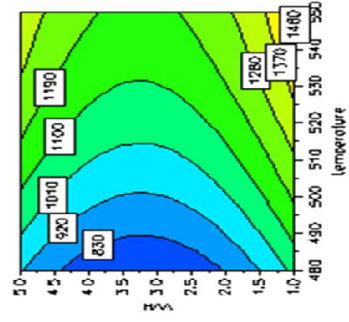
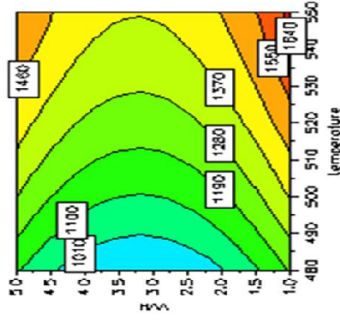
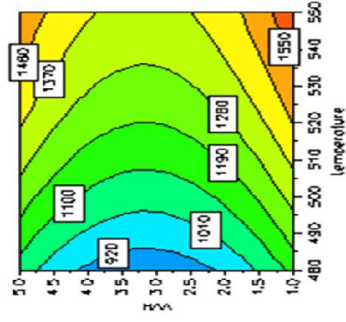
pression = 1.6

pression = 1.9

H2/Hc = 8



4D Contour of consumption



pression = 1.3

pression = 1.6

pression = 1.9

Annexe C

Abstract

Crude oil refining is a complex sequence of chemical and physical changes that result in the production of a variety of products. In fact, crude oil refining might be considered as a collection of individual, yet related, processes that are each capable of producing effluent streams. Moreover, refining crude oil, as it is currently known, will continue at least for the next several decades. Crude oil refining consists of, initially unless properties dictate otherwise, dividing the petroleum into fractions of different boiling ranges by distillation. Other forms of treatment are utilized during the refining process to remove undesirable components of the crude oil. The fractions themselves are often further distilled to produce the desired commercial product. A variety of additives may be incorporated into some of the refined products to adjust the octane ratings or improve engine performance characteristics.

Naphtha reforming process is one of the key processes in petroleum refining for providing high value-added reformate for the gasoline pool. It is also used for producing BTX (benzene, toluene, and xylene) by conversion of paraffins and naphthenes to aromatics-rich products which are the basic substances of the petrochemical processes. Hydrogen is also considered as a main by-product and in the most refineries is used in hydrotreating, and other hydrogen consuming reactions. Full-range naphtha is the fraction of the crude oil with a boiling temperature between 30 and 200°C, and constitutes typically 15–30 wt% of the crude oil. Based on the mode of catalyst regeneration, the reforming process is generally classified into three types : semi regenerative, cyclic and continuous regenerative (moving bed)

The development of this process began when the refineries were forced to produce more high-octane gasoline. The conventional catalytic naphtha reforming unit consists of three or four adiabatic reactors in series. These reactors operate at the temperature range of 480 to 550 °C, the total pressure of 1.3 to 1.9 MPa, hydrogen to hydrocarbon (H₂/HC) molar ratios of 2 to 8. Catalytic naphtha reforming reactions are generally endothermic; therefore the temperature decreases along the reactor while the aromatics and hydrogen are produced. Consequently, the intermediate heaters are embedded between reactors to provide the desired inlet feed temperatures. The distribution of catalysts in reactors is variable which is lower in the first reactor but higher in the last one, because the reaction rates decrease through the reactors and become less endothermic. In the reactors, paraffins are isomerized to iso-paraffins and naphthenes. The naphthenes are dehydrogenated to produce aromatics compounds

This study was conducted to presents the methodology for developing a predictive model for the rating and optimization of semi-regenerative catalyst unit using Aspen HYSYS software.

We use a lumped kinetic network with 20 species over a broad C_5 – C_{11} – range. This network can represent the key dehydrogenation, dehydrocyclization, isomerization, and hydrocracking reactions that typically occur with petroleum feedstock, in the unit We validate this model using plant data from a commercial CRU reforming process of Adrar. The validated model predicts key process yields and aromatic yields. We also present several industrially useful case studies that display common interactions among process variables such, reaction temperature, space velocity, presssur and hydrogen-to-hydrocarbon ratio (H_2/HC). These case studies accurately quantify the effects of key process variables on process performance and demonstrate the model applications for improving energy efficiency and for optimizing the reformer performance for chemical feedstock production.

In this work, modelling of these performances is made using design of experiments methods. These methods can be define as reasoned organisation of array and considered as one of the most powerful statistical tool developed during the 20th century. Design of experiments allows to obtain empirical models using a minimal number of experiments.

So this new approach based on Experimental of design methodology (DoE) is used to estimate the optimal operation parameters of the catalytic reforming unit of ADRAR. this proposed approach combines the central composite face-centered (CCF) in our experimental design software « MODDE 6.0 ». These quadratic model take into account all the influent factors on the observed performances previously identify and increase the knowledge of the dynamical behaviour of catalytic reforming parameters. Simulation results obtained using Aspen HYSYS help to predict the temperature inlet of reactors and their pressures, the hydrogen / hydrocarbunes ratio, and space velocity. The value of the previous model and (CCF) design methodology is used for parametric analysis in our study. Thus it is possible to evaluate the relative importance of each parameter to the simulation accuracy. However this methodology is able to define the exact values of the parameters from the manufacture data.

The use of experiments in an effective way to analyze and optimize a given process in a problem statement which should be paid more attention to in the engineering community.

The obtained results show that optimized DoE can successfully predict some combinations of optimal parameters to produce reformaté rich with aromatics which means a high octane number.

Key words : Catalytic Reforming, Refining, Optimization, Gasoline.