



This paper is a part of the hereunder thematic dossier published in OGST Journal, Vol. 68, No. 6, pp. 951-1113 and available online [here](#)

Cet article fait partie du dossier thématique ci-dessous publié dans la revue OGST, Vol. 68, n°6, pp. 951-1113 et téléchargeable [ici](#)

DOSSIER Edited by/Sous la direction de : **C. Barrère-Tricca**

IFP Energies nouvelles International Conference / Les Rencontres Scientifiques d'IFP Energies nouvelles
MAPI 2012: Multiscale Approaches for Process Innovation
MAPI 2012 : Approches multi-échelles pour l'innovation des procédés

Oil & Gas Science and Technology – Rev. IFP Energies nouvelles, Vol. 68 (2013), No. 6, pp. 951-1113

Copyright © 2013, IFP Energies nouvelles

- 951 >Editorial
- 977 >*Molecular Simulation of Adsorption in Microporous Materials*
Modélisation moléculaire de l'adsorption dans les solides microporeux
M. Yannourakou, P. Ungerer, B. Leblanc, X. Rozanska, P. Saxe, S. Vidal-Gilbert, F. Gouth and F. Montel
- 995 >*Sulfur Deactivation of NO_x Storage Catalysts: A Multiscale Modeling Approach*
Empoisonnement des matériaux de stockage des NO_x par le soufre : approche multi-échelles
N. Rankovic, C. Chizallet, A. Nicolle, D. Berthout and P. Da Costa
- 1007 >*From Detailed Description of Chemical Reacting Carbon Particles to Subgrid Models for CFD*
De la description détaillée des particules de carbone chimiquement réactives aux modèles de sous-maille pour la CFD
S. Schulze, M. Kestel, P.A. Nikrityuk and D. Safronov
- 1027 >*Development of a General Modelling Methodology for Vacuum Residue Hydroconversion*
Développement d'une méthodologie générale de modélisation pour l'hydroconversion de résidu sous vide
L. Pereira de Oliveira, J.J. Verstraete and M. Kolb
- 1039 >*A General Approach for Kinetic Modeling of Solid-Gas Reactions at Reactor Scale: Application to Kaolinite Dehydroxylation*
Une approche générale de la modélisation cinétique des réactions solide-gaz à l'échelle du réacteur : application à la déshydroxylation de la kaolinite
L. Favergeon, J. Morandini, M. Pijolat and M. Soustelle
- 1049 >*A Multiscale Approach for Modeling Oxygen Production by Adsorption*
Modélisation de la production d'oxygène par adsorption par une approche multi-échelle
D. Pavone and J. Roesler
- 1059 >*Bubbles in Non-Newtonian Fluids: A Multiscale Modeling*
Bulles en fluide non newtonien : une approche multi-échelle
X. Frank, J.-C. Charpentier, F. Cannevière, N. Midoux and H.Z. Li
- 1073 >*Multiscale Study of Reactive Dense Fluidized Bed for FCC Regenerator*
Étude multi-échelle d'un lit fluidisé dense réactif de type régénérateur FCC
G. Moula, W. Nastoll, O. Simonin and R. Andreux
- 1093 >*CO₂ Capture Cost Reduction: Use of a Multiscale Simulations Strategy for a Multiscale Issue*
Réduction du coût du captage de CO₂ : mise en œuvre d'une stratégie de simulations multi-échelle pour un problème multi-échelles
L. Raynal, A. Gomez, B. Caillat and Y. Haroun
- 1109 >*International Conference on Multiscale Approaches for Process Innovation – MAPI – 25-27 January 2012 – Round Table Discussion*
Conférence internationale sur les approches multi-échelles pour l'innovation des procédés – MAPI – 25-27 janvier 2012 – Comptes-rendus des discussions de la table-ronde
H. Toulhoat

Éditorial

RENCONTRE SCIENTIFIQUE IFP ENERGIES NOUVELLES MAPI 2012 APPROCHES MULTI-ÉCHELLES POUR L'INNOVATION DES PROCÉDÉS

VERS LE 3^e PARADIGME DU GÉNIE DES PROCÉDÉS : LES APPROCHES MULTI-ÉCHELLES DE LONGUEUR ET DE TEMPS COMME OUTIL EFFICACE POUR UNE INNOVATION DE PROCÉDÉS DURABLES

1 TENDANCES ET DEMANDES ACTUELLES DES INDUSTRIES CHIMIQUES ET ANNEXES : UN BESOIN D'INNOVATION DES PROCÉDÉS COMBINANT L'ATTRAIT DES MARCHÉS AVEC LA DEMANDE DES CONSOMMATEURS (MARKET PULL) ET LA DEMANDE TECHNOLOGIQUE AVEC DES SOLUTIONS D'INGÉNIERIE (TECHNOLOGY PUSH)

Aujourd'hui l'industrie chimique et les industries connexes (pétrochimie, industries de santé, cosmétique, alimentaire, environnement, production d'énergie, textile, papier, verres, bitume, sidérurgie, matériaux de construction, électronique, etc.) sont en rapide évolution pour faire face à des exigences et des contraintes environnementales et de sûreté sans précédent de la part de la société civile. En parallèle, la connaissance chimique croît aussi rapidement et le taux de découverte augmente chaque jour. Le développement de la synthèse chimique combinatoire en utilisant les nano et micro technologies est un exemple patent.

Alors qu'attendons-nous d'un génie des procédés moderne pour assurer la compétitivité, l'emploi et le développement durable (durabilité) dans les industries pétrolières, chimiques et annexes ?

Il existe deux demandes :

- *connaître les produits et les procédés qui seront compétitifs dans l'actuelle économie mondialisée* : les mots-clés sont globalisation des marchés, accélération des partenariats et innovation de procédés ce qui conduit principalement à une accélération de la vitesse d'innovation des produits. Cela signifie qu'il devient de plus en plus difficile d'être le premier sur le marché avec un produit innovant et il s'en suit que l'accélération simultanée du développement du couple produit/procédé est d'importance primordiale ;
- *de plus les pays industrialisés connaissent une croissance rapide dans la demande-client* pour des produits à propriétés d'usage ciblées et en même temps des contraintes issues du public et des médias portant sur les procédés dans les domaines de la sécurité et de l'environnement, combinées avec des outils de réglementation comme l'analyse du cycle de vie du produit « du berceau à la tombe » (voire par exemple la norme européenne pour les produits chimiques *Regulation, Evaluation, Authorization of Chemicals* (REACH)).

Pour répondre à de telles demandes sociétales de produits et de procédés durables et offrir une contribution au combat contre la destruction environnementale et le comportement non durable de la production mondiale actuelle, la chimie et le génie des procédés sont désormais

confrontés à de nouveaux défis portant sur des systèmes complexes à la fois à l'échelle des molécules, à l'échelle des produits et à l'échelle des procédés :

- en effet pour les produits de commodités et pour les produits intermédiaires à forts tonnages pour lesquels les brevets ne portent pas habituellement sur les produits, les procédés ne peuvent plus être durablement sélectionnés sur les seuls critères de l'exploitation économique « comptable ». Au contraire, il faut établir une compensation avec à la fois une sélectivité accrue et des économies liées au procédé lui-même. Le défi est de produire d'énormes quantités au moindre coût avec des technologies non polluantes, une réduction des matières premières et des pertes d'énergie et le recyclage des produits et sous-produits. Pour la production de ces produits à forts tonnages qui représentent encore aujourd'hui un secteur majeur de l'économie (40 % des marchés), le client achète un procédé qui ne pollue pas (ou pollue peu), et qui est parfaitement sécurisé et automatisé, ce qui requière l'utilisation à l'échelle du procédé des outils et méthodologies du génie des procédés systémique (PSE) et du génie des procédés assisté par ordinateur (CAPE). De plus n'oublions pas que les capacités de production mondiale doivent s'accroître d'un facteur 6 d'ici à 2050, si l'on suppose un taux de croissance de l'économie mondiale de 4 % par an. Ainsi tendre vers des équipements pour une production à l'échelle mondiale pour bientôt nécessiter un changement partiel ou total de technologie, sachant que les technologies actuelles ne peuvent plus être mises en œuvre dans un esprit « *on construit toujours plus gros* », si l'on doit appréhender des capacités de production encore jamais rencontrées dans les industries chimiques et annexes. On est ainsi confronté à une demande d'innovation des procédés de production conduisant à un changement dans les technologies afin d'extrapoler fiablement de nouveaux procédés, en passant d'une échelle intermédiaire à une très grande échelle pour laquelle nous n'avons pas d'expérience antérieure ;
- Par ailleurs, la chimie fine, la chimie de spécialités et la production de principes actifs et de matériaux hautement spécialisés avec les industries correspondantes (santé, cosmétique, agro-alimentaire) mettent en jeu l'interface chimie/biologie. Ils impliquent également l'*upgrading* et la conversion des bruts lourds pétroliers et des intermédiaires, la conversion des produits dérivés du charbon ou des gaz de synthèse en fuel, hydrocarbures et produits oxygénés. Cette progression est la conséquence des demandes des marchés pour lesquels les ventes et la compétitivité sont dominées non pas par les spécifications techniques du produit mais plutôt par la valeur d'usage du produit. Pour un consommateur qui n'apprécie généralement plus (ou pas seulement) un produit pour ses spécifications techniques, mais plutôt pour ses critères de qualité comme les propriétés sensorielles et pour ses fonctions comme la performance ou la convenance, le contrôle de cette valeur d'usage à l'échelle moléculaire, l'expertise dans la conception du procédé, l'ajustement continu aux demandes changeantes du consommateur, et la rapidité de la réaction et de la réponse aux conditions du marché sont les éléments dominants économiques qui doivent être pris en compte par le génie des procédés moderne. Le facteur-clé pour la production de produits pharmaceutiques ou cosmétiques n'est pas le coût, mais le temps d'arrivée sur le marché, *i.e.*, la rapidité de la découverte et de la production de ces produits. De plus pour les produits où la valeur ajoutée est une nano structure spécifique, le consommateur paiera un surcoût pour une telle fonction, qu'elle soit dans un aliment, une poudre de lavage, un additif pour carburant, une peinture ou dans un enduit. Ainsi pour ces produits à court temps de vie et à haute valeur ajoutée, le consommateur achète un produit qui est le plus efficace et le premier sur le marché, paie un prix élevé et attend un large bénéfice. Et ces produits à grandes marges bénéficiaires, conçus « sur mesure » pour le consommateur en ce qui concerne leur formulation et leur fabrication requièrent aussi de nouveaux équipements dont la conception dépasse le seul objectif de produire un unique produit de bonne qualité et à bas coût. Au contraire le besoin exprimé aujourd'hui porte sur une demande

d'innovation de procédés avec des technologies polyvalentes et des équipements de production génériques, de petites dimensions, facilement lavables, désencrassables, désinfectables, transformables et opérationnels pour d'autres fabrications (productions flexibles, procédés continus ou en *batch*, conceptions modulaire, etc.).

Les considérations précédentes sur la demande et la conception des produits désirés et de leurs procédés de production intensifiés soulignent le besoin d'innovation de procédés qui comprend l'intégration des connaissances aux multi-échelles utilisées par le génie du produit dans celles à l'échelle de l'usine du procédé de production de ce produit parce que tout naturellement les conditions de production détermineront en fin de compte les propriétés du produit. Ainsi un besoin d'innovation de procédés qui est concerné par une approche multi-échelle des phénomènes rencontrés dans la conception du produit et dans le génie du procédé associé doit être pris en compte par l'approche du génie des procédés durable. Mais Comment ?

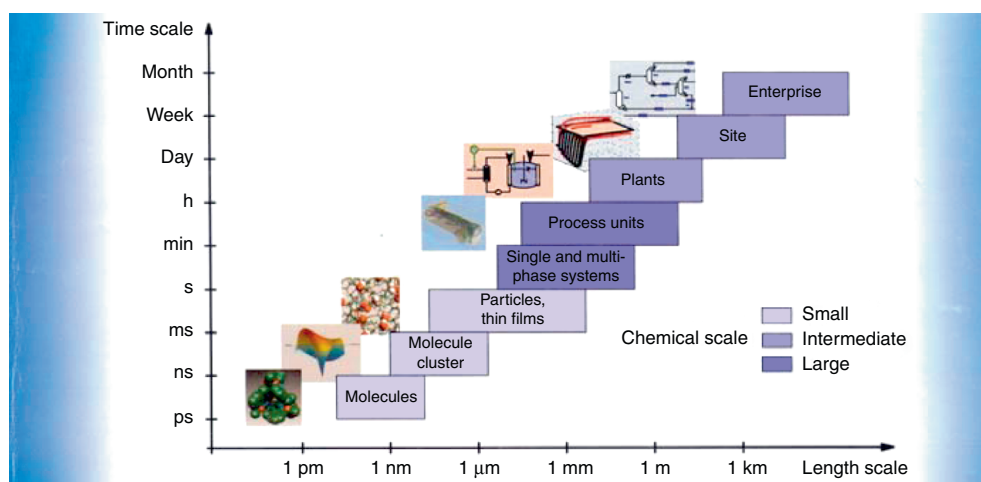
La réponse est en présentant l'approche moderne du génie des procédés qui est concerné à la fois par le génie du produit et l'ingénierie de production associée, ce qui requière l'organisation des échelles et des niveaux de complexité et ensuite l'utilisation de la modélisation et de la simulation aux situations réelles de production depuis l'échelle moléculaire jusqu'aux échelles complexes de production avant la commercialisation.

2 L'APPROCHE ACTUELLE COMPLÉMENTAIRE DU GÉNIE DES PROCÉDÉS : L'APPROCHE INTÉGRÉE MULTIDISCIPLINAIRE ET MULTI-ÉCHELLE DE TEMPS ET D'ESPACE POUR L'INNOVATION DES PROCÉDÉS : MAPI

Le but du génie des procédés est le développement de concepts, de méthodologies et de technologies pour mieux comprendre, concevoir, dessiner et faire fonctionner de façon optimale les procédés de transformations physico-chimiques et biologiques de la matière première et de l'énergie en des produits utiles au consommateur. Cela concerne la synthèse des matériaux nano et microstructurés, la conception, l'extrapolation ou l'intrapolation, le contrôle et l'automatisation des procédés industriels effectués par des séparations physico-bio-chimiques ou par des réactions chimiques, catalytiques, biochimiques, électrochimiques, photochimiques et agrochimiques.

Mais, comme nous l'avons souligné précédemment, l'accent mis aujourd'hui sur l'élaboration des propriétés d'usage de certains produits nécessite l'utilisation d'une large variété de technologies incluant notamment le nouveau rôle des micro technologies, c'est à dire l'utilisation de micro mélangeurs, de micro échangeurs de chaleur et de matière, et de réacteurs micro structurés pour l'intensification de certains procédés de production. De plus il est important de souligner que 60 % de tous les produits vendus par les industries chimiques et connexes sont des solides cristallins, amorphes ou polymériques. Ces matériaux doivent avoir une forme clairement définie pour posséder les qualités d'usage souhaitées. Il en va de même pour les produits pâteux et les émulsions. Ainsi cette production concerne globalement des matériaux hautement spécialisés, des principes actifs et des produits de chimie de spécialité qui sont en fait beaucoup plus complexes en termes de structure moléculaire et de microstructures que les produits traditionnellement fabriqués par la chimie lourde.

Voilà pourquoi le génie des procédés moderne est concerné par la compréhension et le développement de procédures systématiques (approche systémique) pour la conception et le fonctionnement optimal de tous les systèmes complexes de production chimiques et autres, depuis les systèmes nano et micro utilisés pour l'analyse, les tests et la production des produits jusqu'aux systèmes rencontrés à l'échelle du procédé industriel fonctionnant en *batch* ou en continu. Ces systèmes et processus complexes interviennent aux différentes échelles d'espace et de temps rencontrées dans ce qu'on définit comme la chaîne de production chimique « *Chemical supply chain* » (Fig. 1).



Aujourd'hui le génie chimique et des procédés est concerné par/avec la compréhension et le développement de procédures systématiques pour la conception, l'expérimentation, la modélisation et la simulation et la conduite optimale des différents processus qui interviennent aux différentes échelles de la chaîne de production chimique :

- depuis les échelles nano et micro où les composés chimiques doivent être synthétisés et caractérisés au niveau moléculaire ;
- jusqu'aux échelles industrielles des procédés continus ou en batch.

Figure 1

Les multi-échelles de la chaîne de production chimique.

Cette chaîne débute avec les produits chimiques et autres que l'industrie doit synthétiser et caractériser à l'échelle moléculaire. Les molécules sont ensuite agglomérées en clusters, particules ou films minces. Ces systèmes mono ou polyphasiques forment des mélanges microscopiques de produits solides, pâteux ou d'émulsions. La transition alors de la chimie ou biologie vers l'ingénierie comprend la conception et l'analyse des unités de production, qui sont elles-mêmes intégrées dans un procédé de production qui devient un des éléments d'un site industriel qui comprend plusieurs procédés de production. Finalement ce site est une partie de l'entreprise commerciale qui est tirée par des considérations des marchés requérant la qualité du produit.

Dans la chaîne de production chimique, il faut bien souligner une fois encore que la qualité du produit est déterminée aux échelles nano et/ou micro et qu'un produit possédant une propriété désirée doit être étudié pour à la fois sa structure et sa fonction. En effet la clé du succès est d'obtenir la valeur d'usage et ensuite de contrôler la qualité du produit en contrôlant la formation de la nano et/ou micro structure. Ainsi une parfaite compréhension de la relation structure/propriété à la fois à l'échelle moléculaire (*i.e.* physique et chimie de surface) et à l'échelle microscopique (*i.e.* couplage des mécanismes réactionnels et de la mécanique des fluides) est de première importance pour être capable de concevoir les procédés de production. Cela aide à faire le saut depuis l'échelle nano jusqu'à l'échelle macro du procédé de production qui assure la qualité désirée par le consommateur à l'échelle du produit.

De plus la plupart des processus chimiques sont non-linéaires, hors-équilibre, appartenant ainsi à ce qu'on appelle des systèmes complexes pour lesquels une structure multi-échelle est de nature commune. Cela nécessite une approche de type système intégré pour une modélisation multidisciplinaire et multi-échelle des phénomènes complexes, simultanés et

souvent couplés de transferts de matière, de chaleur et de quantité de mouvement et des processus de cinétique réactionnelle qui interviennent aux différentes échelles :

- *différentes échelles de temps* (10^{-15} à 10^8 s) depuis les femtosecondes et picosecondes pour les oscillations d'atomes d'hydrogène sur la surface des particules de nano catalyseurs ou bien pour le mouvement des atomes dans une molécule pendant la réaction chimique, les nanosecondes pour les vibrations moléculaires, les heures pour les opérations industrielles et les siècles pour la destruction des polluants dans l'environnement ;
- *différentes échelles de longueurs* (10^{-9} à 10^6 m) qui sont rencontrées dans la pratique industrielle avec des approches à l'échelle des Angstroms (pour les structures électroniques) à l'échelle nano (pour les processus moléculaires, les sites actifs), à l'échelle micro (pour les bulles, gouttes, mouillage des particules solides, les tourbillons), à l'échelle meso pour les unités de production (réacteurs, échangeurs, colonnes), à l'échelle macro pour les sites de production (usines, complexes pétrochimiques, etc.) et à la mega échelle (atmosphère, océans et sols *e.g.*, jusqu'à des milliers de kilomètres pour la dispersion des émissions dans l'atmosphère).

Ainsi il devient nécessaire d'organiser les échelles et les niveaux de complexité pour comprendre et décrire les événements aux échelles nano et micro et pour mieux convertir les molécules en produits utiles et requis à l'échelle du procédé, *i.e.* organiser les niveaux de complexité en traduisant les processus moléculaires en lois phénoménologiques macroscopiques pour créer et contrôler les propriétés d'usage requises et les fonctions du produit manufacturé par un procédé *batch* ou en continu (*i.e.*, transformer les molécules en argent !).

On définit cette approche comme « le Génie du triplet Processus-Produit-Procédé (G3P) » (*“the triplet molecular Processes-Product-Process Engineering (3PE) approach”*) : Elle intègre des phénomènes complexes multidisciplinaires, non-linéaires et hors-équilibre, se produisant aux différentes échelles de temps et de longueur intervenant pour la mise en œuvre du procédé (*Fig. 1*), afin de comprendre comment des processus physico-bio-chimiques et de transfert à une échelle donnée sont reliés à des propriétés et à un comportement à une échelle supérieure : c'est ce qu'on appelle organiser les niveaux de complexité des différentes échelles de la chaîne de production chimique (*Fig. 2*).

Plus généralement l'idée associée à la modélisation multi-échelle est la communication entre les échelles. Et il est clair que l'engouement pour les approches multi-échelles et l'intégration et les solutions de modèles mixtes construits à partir de plusieurs modèles partiels est tiré par la conception des produits pour laquelle les caractéristiques aux échelles nano et micro sont perçues comme vitales pour les « concepteurs de produits ». Et si on y ajoute et combine les approches aux échelles meso et macro qui sont considérées comme vitales pour les « concepteurs de procédés » aux échelles des unités et des sites de production, la mise en valeur de l'approche multi-échelle pour l'innovation des procédés (MAPI) continuera de prendre de plus en plus d'importance.

Ainsi, en plus des paradigmes de base et irremplaçables du génie chimique que sont:

- les opérations unitaires (distillation, absorption, séchage, cristallisation, fluidisation, etc.) et,
- les transferts couplés de chaleur, de matière et de quantité de mouvement et les fondamentaux et outils traditionnels du génie chimique (thermodynamique, catalyse, génie de la séparation, simulation, optimisation et contrôle des procédés, considérations technico-économiques, etc.),

cette approche multi-échelle G3P, qui peut être considérée comme le 3^e paradigme du génie des procédés est donc un atout supplémentaire considérable pour le développement et le succès de cette science de l'ingénieur qu'est le génie des procédés, en termes de concepts et paradigmes pour la conception et la production de produits, notamment dans le cas d'une approche tirée par les marchés « *market driven* ».

Et il faut souligner que cette approche intégrée multi-échelle G3P pour l'innovation des procédés qui combine à la fois un attrait des marchés (*market pull*) et une demande

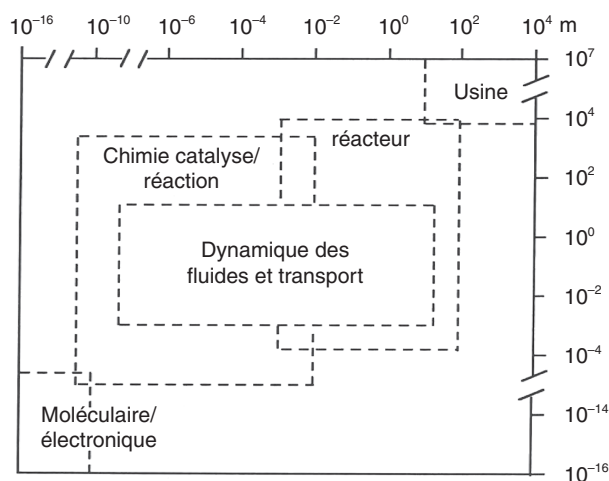


Figure 2

Organiser les niveaux de complexité dans les échelles de temps et d'espace couvertes par l'approche intégrée multi-échelle.

technologique (*technology push*) reçoit maintenant de plus en plus d'attention et de succès grâce aux développements technologiques considérables obtenus dans l'instrumentation scientifique analytique fine, dans les techniques instrumentales non invasives couplées avec le traitement du signal et de l'image, et grâce aux avancées informatiques et à la puissance des outils informatique (clusters de calcul, *super computers*, *cloud computers*, *graphic processing units*, parallélisation des codes numériques, etc.) qui permettent le développement et l'application de modèles descriptifs pour la conduite en régime transitoire ou permanent à l'échelle considérée : molécules, structure du catalyseur, sites et dynamique locale du fluide, état de surface et dynamique du fluide, particule de catalyseur, unité de production, usine, toute la chaîne de production, et même au-delà si on inclut les systèmes de contrôle et de support opérationnels.

3 L'APPLICATION DE LA MODÉLISATION ET DE LA SIMULATION INFORMATIQUES MULTI-ÉCHELLE AUX SITUATIONS RÉELLES POUR L'INNOVATION DES PROCÉDÉS : DEPUIS L'ÉCHELLE MOLÉCULAIRE JUSQU'À CELLE DU SITE DE PRODUCTION INCLUANT LE CONTRÔLE, LA SÉCURITÉ ET L'IMPACT ENVIRONNEMENTAL DU PROCÉDÉ

L'approche intégrée multidisciplinaire et multi-échelle du génie du triplet processus-produit-procédé (G3P) pour gérer la complexité des phénomènes rencontrés comprend la modélisation et la simulation utilisée pour extrapoler depuis les échelles des nano et microstructures des valeurs d'usage des produits jusqu'à la mesoéchelle de l'équipement de production de ces produits. Mais la tâche du génie des procédés est aussi de concevoir et d'implémenter le système complet de production jusqu'aux échelles macro et mega de l'ensemble des unités de production et de leur environnement. Ce système complet comporte à la fois les procédés individuels et l'ensemble des unités nécessaires à la production du produit désiré *et* l'intégration de ces procédés individuels dans le site global de production, en termes de matériaux, d'énergie et de services et logistiques qui doivent aussi prendre en compte les demandes à la fois du consommateur et plus largement de la société. Naturellement il est aujourd'hui totalement irréaliste et utopique de penser qu'avec un seul outil de simulation on pourrait simuler simultanément tous les phénomènes physico-chimiques, hydrodynamiques et de transfert intervenant à toutes les échelles de temps et d'espace rencontrées dans les unités et le site de production (*Fig. 3*),

(par exemple concevoir une raffinerie ou un complexe de production papetière à partir des équations de Schrödinger!).

Mais pour l'innovation des procédés, cela continue d'être l'objectif du génie des procédés que d'analyser et de modéliser la complexité des phénomènes à l'échelle considérée de la figure 2 pour fournir des résultats nécessaires à la compréhension et à la modélisation des phénomènes intervenant à une échelle supérieure dans l'équipement ou le réacteur utilisé pour la production du produit. Ainsi en partant de l'échelle moléculaire, il est nécessaire de trouver des méthodes et des outils de simulation pour l'intégration fonctionnelle des différentes étapes et échelles du procédé individuel, puis pour l'intégration des procédés individuels de production dans l'ensemble du site ou complexe industriel. Cette approche intégrée multi-échelle nécessite des simulations informatiques qui soient capables de concevoir des étapes individuelles, de structurer le procédé dans son ensemble, et de placer le procédé individuel de production du produit dans l'ensemble du contexte de production industrielle.

3.1 Les modèles rencontrés dans les approches multi-échelles

Les ordinateurs ont ouvert la voie à la modélisation et la simulation aux différentes échelles de la figure 3.

Les modèles peuvent être présentés avec des échelles de temps et de longueurs décroissantes et peuvent être distingués entre modèles continus, modèles à la mesoéchelle, modèles de dynamique moléculaire (MD), modèles de mécanique quantique (QM) et ils peuvent être interconnectés dans un ensemble multi-échelle.

Les modèles continus comme la mécanique des fluides négligent la nature discrète des atomes, molécules, ou des particules et sont reliés aux propriétés macroscopiques des matériaux. Ainsi ils permettent de simuler à des échelles de longueurs allant jusqu'aux dimensions des réacteurs. Ils fournissent des informations importantes sur les températures, les vitesses ou les champs de concentrations de particules et sur les temps de séjour des phases du réacteur qui peuvent être utilisés comme résultat et comme entrant pour les simulations à plus petites échelles de temps et de longueur. Les modèles continus décrivent aussi les cinétiques détaillées de réaction des précurseurs pour

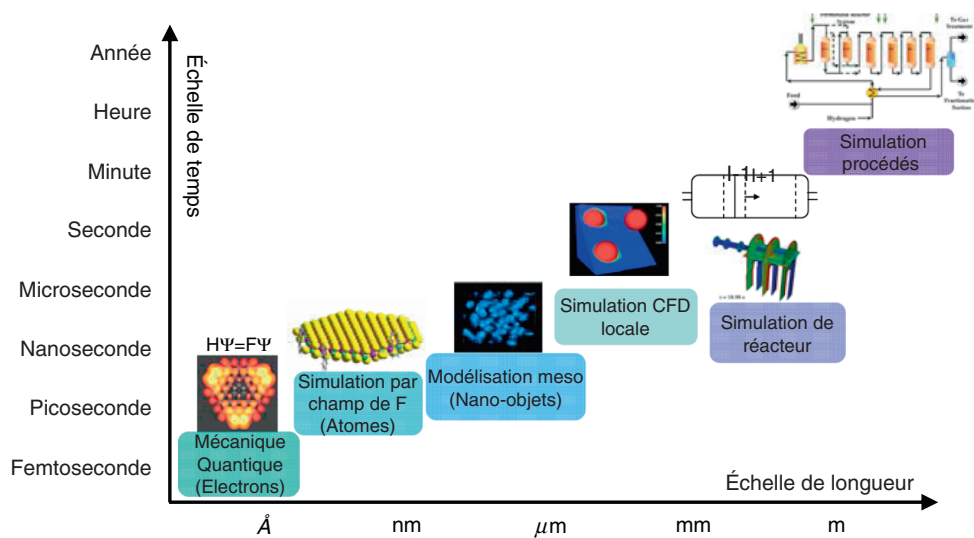


Figure 3

Les échelles de simulation et de modélisation en génie des procédés.

identifier les étapes limites de réaction et pour développer des taux plus rigoureux de formation de particules comme entrants pour les modèles de bilans de population ou bien pour identifier les dimensions de nano clusters les plus abondants (par exemple dans des opérations comme la cristallisation, l'agglomération de particules ou la synthèse de nanoparticules en phase gazeuse). Les modèles de bilans de population de particules décrivent l'évolution de la dimension des particules et de la distribution de morphologie. Ils peuvent tous être couplés avec les modèles de la mécanique des fluides numérique. Cependant ils requièrent la connaissance de taux comme les taux de coagulation, d'agglomération et de formation de particule qui peuvent être eux-mêmes être obtenus à partir des simulations aux échelles meso, de la dynamique moléculaire ou de la mécanique quantique.

Les modèles de réacteurs et d'unités de production basés sur la mécanique des fluides numérique simulent les écoulements laminaires ou turbulents, les températures, et les champs de concentration de particules en prenant en compte la géométrie du réacteur, la chimie et la dynamique des particules. Avec la demande croissante à la fois de l'amélioration de la prédiction des phénomènes physiques et d'une augmentation des besoins en puissance informatique, les écoulements turbulents requièrent l'utilisation soit de modèles additionnels comme le modèle de Reynolds-Navier-Stokes moyenné (RANS) (modèle standard $k-\epsilon$ et le modèle de tension de forces de Reynolds), la simulation de grands tourbillons (LES), ou la résolution à toutes les échelles de turbulence comme la simulation numérique directe (DNS).

Ainsi la simulation directe numérique est un outil puissant avec la prolifération des moyens informatiques très performants. Son utilisation est unique pour prédire les processus physico chimiques en rapport avec les équations de base qui décrivent les phénomènes étudiés, en proposant des solutions à toutes les échelles de temps et de longueur. Cependant les problèmes soulevés lors des opérations industrielles requièrent souvent des solutions à de trop larges gammes d'échelles. C'est pourquoi une approche qui devient de plus en plus à la mode pour diminuer les coûts de calculs informatiques est la simulation de grands tourbillons (LES) où les caractéristiques et les interactions à grande échelle sont prédites explicitement mais les fluctuations et les interactions aux petites échelles sont modélisées pour réduire les temps résolution et de calcul. Toutefois la modélisation de ces fluctuations à petites échelles tout spécialement pour les écoulements turbulents, avec réaction et polyphasiques est encore aujourd'hui un défi d'importance et les coûts de calcul informatique ont souvent limité l'application des méthodes LES et RANS aux phénomènes locaux pour faire connaître par exemple les gradients de concentration de nanoparticules dans les tourbillons au sein de réacteurs polyphasiques.

Les modèles à la mesoéchelle représentent les agglomérats de particules (gaz, liquides, solides) comme des corps géométriques, par exemple des sphères, et utilisent des modèles de taux de croissance ou d'évolution pour décrire leur mouvement, leur changement de taille, et leur chevauchement pendant des opérations comme la croissance de surface, l'agglomération, la coagulation, la cristallisation, et plus généralement pour toute fragmentation de particules. Par exemple de tels modèles fournissent des informations importantes sur l'évolution des dimensions fractales et des taux d'agglomération et de coagulation qui peuvent être utilisés comme entrant dans les modèles continus de bilans de population de particules tandis que les nombres de coordination des particules primaires sont nécessaires pour la mise en œuvre de la simulation dynamique moléculaire. De même des modèles de base qui prennent en compte les détails significatifs et pertinents des interactions fluides-particules comme les modèles de type Lattice-Boltzmann et les interactions particules-particules comme les modèles discrets de particules (DPM) ou les modèles d'écoulements de type Euler-Euler sont utilisés pour développer des lois de fermeture qui alimentent les modèles continus qui sont ensuite utilisés pour simuler numériquement les structures des écoulements à plus grande échelle. C'est le cas par

exemple pour décrire la formation et l'évolution des structures hétérogènes qui affectent fortement les performances du procédé mis en œuvre.

Les modèles de dynamique moléculaire (MD) prennent en compte la nature discrète des atomes, ce qui est négligé dans les modèles de type continu ou mesoéchelle et ce qui limite leur mise en œuvre à de plus petites échelle d'espaces et de temps. Ils sont par exemple employés pour modéliser l'évaporation, les taux et mécanismes de l'agglomération jusqu'à la coalescence ou les mécanismes d'ablation laser. Dans un procédé comme la synthèse de nano particules en phase gaz, les simulations MD fournissent des informations détaillées sur les mécanismes et les taux d'agglomération en fonction des diamètres de particules, de la composition, et de la phase cristalline, ce qui concerne la majeure partie des performances de la particule produit (la propriété d'usage). Ces simulations MD sont aussi utilisées comme entrant dans l'utilisation des modèles à la mesoéchelle ou pour décrire l'évolution des concentrations de surface dans l'utilisation des modèles de bilans de population de particules.

Les simulations de mécanique quantique (QM) sont appliquées pour développer des champs de force simples pour les modèles de dynamique moléculaire MD ou pour déterminer les propriétés thermochimiques et les mécanismes réactionnels qui sont requis ensuite pour la simulation des écoulements réactionnels qui utilise la mécanique des fluides numérique. La mécanique quantique est utilisée pour calculer la structure électronique des matériaux et les modèles de la mécanique quantique décrivent les molécules et la matière de façon très précise mais leurs utilisations sont limitées à de très petits systèmes allant de 1 à approximativement 100 atomes ce qui est du aux coûts prohibitifs de calculs informatiques. Parmi les nombreuses méthodes de la mécanique quantique, la théorie de fonction de densité (DFT) est aujourd'hui très employée depuis le développement de fonctionnalités améliorées qui ne peuvent pas être obtenues analytiquement et qui décrivent l'échange et les interactions reliées pour résoudre le problème important des nombreuses interactions électrons électrons. En effet l'utilisation de cette théorie ne nécessite pas un important besoin en moyens informatiques quand il est comparé aux autres méthodes. L'obtention de fonctionnalités par approximation et ajustement est la principale raison pour laquelle la DFT conduit à de bons résultats dans de nombreux cas. Il existe toutefois un désavantage qui est que les approximations locales ne permettent pas de prendre en compte correctement les forces de Van de Waals. Toutefois la théorie DFT donne accès aux mécanismes et vitesses de réactions, aux structures cristallines et aux structures des nano clusters et leur comportement dynamique, ou est utilisée pour rechercher les propriétés thermochimiques de molécules que l'on cherche à développer, par exemple dans le cas de systèmes réactionnels en phase gazeuse. Et finalement les calculs utilisant la mécanique quantique conduisent aux simulations de la matière les plus précises, et des méthodes comme la DFT combinées avec les nouveaux outils informatiques très performants étendent son domaine d'application au dimensionnement particule/cluster, ce qui est utile pour la science des nanomatériaux. De même pour améliorer les propriétés de certains catalyseurs par une connaissance détaillée de l'occurrence de la réaction au niveau atome/molécule sur la surface du catalyseur, l'utilisation du modèle empirique champ de force réactif ReaxFF qui s'appuie sur les calculs de la mécanique quantique de base DFT s'est avéré être une approche efficace pour extrapoler les informations depuis les échelles de temps et d'espaces microscopiques jusqu'aux échelles mesoscopiques, surmontant ainsi les limitations dans les capacités informatiques. Et comme ce modèle peut prendre en compte la formation et la rupture des liaisons atomiques à un bien moindre coût informatique que la DFT, de plus grands systèmes (10^6 atomes) peuvent être simulés avec des trajectoires à des échelles de temps de l'ordre de nanosecondes.

En résumé on peut dire qu'aux échelles nano et micro les ordinateurs ont ouvert la voie et participé à l'innovation de procédé pour les voies de synthèse réactionnelle ou pour la modélisation de propriétés moléculaires ou physiques comme par exemple l'estimation de

propriétés thermodynamiques et de transport tels les coefficients de diffusion et les viscosités. De plus il ne fait plus aucun doute que la modélisation moléculaire et l'application des principes des techniques informatiques de la mécanique moléculaire statistique (*i.e.* la dynamique moléculaire (MD) et les différentes techniques de type Monte-Carlo (MC)) ainsi que la mécanique quantique ont aujourd'hui un rôle important et croissant dans l'approche orientée problème concernée dans l'innovation des procédés. Par exemple, les relations entre la structure des matériaux et les propriétés physico-chimiques (*i.e.* structure électronique, conductivité électronique, coefficient effectif de molécules de gaz) à l'échelle nano pour une particule de catalyseur et à l'échelle d'une tranche du lit catalytique peuvent être élaborées à partir de simulations à l'échelle meso (*i.e.* de type Monte-Carlo et *Coarse Grained Molecular Dynamics*). Un autre exemple concerne la conception d'un produit pour lequel le problème de conception moléculaire est transformé en un problème conception moléculaire assistée par ordinateur (CAMD) et la solution pour obtenir la molécule ou un mélange de molécules désirées comporte des approches à différentes échelles. Ainsi pour la conception de solvants qui comportent des molécules relativement petites, la propriété d'usage ciblée est concernée à l'échelle macroscopique alors que pour la conception de médicaments qui comportent de grosses, voir même de très grosses molécules, la propriété ciblée est concernée aux échelles microscopiques et/ou mesoscopiques. Et dans ce dernier cas comme dans celui de molécules très complexes pour lequel est requis un très important niveau d'informations sur la structure moléculaire, les méthodes CAMD utilisent des modèles spécifiques basés comme dans les cas précédents sur les relations propriétés-structures moléculaires de la propriété d'usage ciblée. Mais il existe encore de nombreux défis à relever dus notamment aux nombreux degrés de liberté à satisfaire pour la description à l'échelle moléculaire des systèmes réels (*i.e.* la description des interactions moléculaires) et qui nécessitent des temps de calcul sur ordinateur devenant rapidement excessifs.

Néanmoins en confrontant la conception moléculaire avec la réalité et sa complexité il semble s'établir aujourd'hui un consensus selon lequel la simulation et les techniques assistées par ordinateur sont utiles pour le criblage (*screening*) initial en résolvant quelques problèmes rencontrés durant les premières étapes de la conception du produit et qu'elles contribuent ainsi à la conception de ce produit en raccourcissant le temps et en diminuant les efforts pour résoudre ces problèmes, mais les mesures expérimentales sont encore essentielles pour la conception finale. Et ainsi à partir des résultats combinés de la théorie moléculaire, de la simulation informatique et des mesures expérimentales, une meilleure compréhension des relations structures/propriétés se développe qui, couplée avec la science du génie des procédés aux échelles microscopiques (hydrodynamique, transferts de matière et de chaleur), forme aujourd'hui la base de la conception des nouveaux matériaux et procédés.

Toutefois le principal défi reste encore souvent d'être capable de combiner les simulations informatiques des modèles à différentes échelles, afin de bien comprendre comment les phénomènes à une échelle déterminent les propriétés et comportements à l'échelle supérieure. À ce titre un défi à long terme est souvent de combiner la thermodynamique et la physique des processus locaux de formation de structures comme ceux rencontrés dans la formation de réseaux, la séparation de phases, l'agglomération, la nucléation, la cristallisation, etc., avec la mécanique des fluides numérique (CFD) des écoulements polyphasiques.

Par ailleurs aux échelles macroscopiques, la modélisation dynamique des synthèses et des procédés est également de plus en plus développée. La raison en est que pour être compétitif dans la production de produits ciblés, livrés juste à temps sur le marché à un consommateur dont les besoins changent constamment, cela demande l'analyse et l'optimisation de la chaîne de production et le temps pris par chaque opération individuelle et/ou dans chaque équipement (échangeurs, réacteurs, pompes, cuves de stockage, etc.). Les procédés ont aussi à être simulés et évalués en termes de coût. En effet sur le site de production la

localisation à tout moment d'un composant particulier dans la chaîne de production n'est pas toujours bien définie, *i.e.* un lot de produits (un *batch*) peut se trouver dans une cuve agitée, un filtre, un séchoir, une pompe, une presse et une cuve de stockage simultanément.

Les outils de la simulation des événements en temps réels (*event-driven simulations*) aident à résoudre ces problèmes. Ils permettent de simuler les écoulements et la composition des produits dans chaque équipement individuel et de montrer quelle stratégie alternative de choix d'usine et de stockage conduit au meilleur bénéfice en termes de coût. Dans certaines occasions il a été observé que cette simulation dynamique des procédés permet de voir en quelques secondes si le goulot d'étranglement peut advenir dans le site de production pendant la durée de plusieurs jours, mois ou même années. Et ces empêchements de bon fonctionnement peuvent être éliminés par l'apport d'équipements additionnels ou par l'utilisation de ressources additionnelles en main d'œuvre ou énergétiques.

Il est à souligner que l'intégration et l'utilisation des techniques de simulation des événements en temps réels pour satisfaire les demandes quotidiennes de mise en œuvre de modèles divers et de plus en plus complexes en génie des procédés occupe aujourd'hui une place de plus en plus importante. Par exemple, on peut citer le programme européen CAPE-OPEN intitulé « *Next generation computer aided process engineering open simulation environment* » dont le but est de proposer des standards de compatibilité entre les outils de modélisation et les logiciels de simulation de procédés qui proviennent de différents opérateurs et vendeurs de pré-solveurs, solveurs, post-solveurs, de clients utilisateurs et de chercheurs académiques européens dans les domaines de l'informatique et de la simulation de procédés. Cela permet de promouvoir l'adoption d'un standard de communications entre des systèmes de simulation à tout niveau d'échelles de temps et de longueur (modèles de propriétés des produits, opérations unitaires, utilités numériques pour les simulations dynamiques, statiques et des *batches*) pour simuler les procédés et pour permettre aux clients d'intégrer les informations d'un ensemble de programmes de simulation dans un autre ensemble (voir *CAPE-OPEN Laboratories Network-CO-LaN Consortium*, www.colan.org).

Et dans le futur pour l'innovation de procédés il est clair qu'on aura besoin de davantage d'outils CAPE (génie des procédés assisté par ordinateur) afin d'assurer la compétitivité des industries chimiques, tout spécialement en développant des standards spécifiques d'interfaçage pour assurer l'interopérabilité des composants des programmes de CAPE-OPEN qui soutiendront une croissance et une compétitivité durable.

De toute façon on peut dire qu'il existe encore des défis et des opportunités pour le génie des procédés systémiques qui concerne plusieurs classes de produits chimiques, leur conception et le procédé de fabrication associé (en respectant les importantes contraintes énergétiques et environnementales et la proposition de réalisations durables), en même temps qu'un besoin d'outils appropriés. En effet dans tous les cas, le problème de conception intégrée du produit et du procédé est résolu en résolvant simultanément certains aspects de la conception individuelle à la fois du produit et du procédé.

Ainsi il apparaît clairement que pour l'innovation des procédés il existe encore un besoin d'un cadre pour l'approche intégrée multi-échelle – processus moléculaire-produit-procédé – en utilisant les méthodologies et outils assistés par ordinateur afin de développer des approches systémiques pour l'obtention des solutions basées sur des modèles qui peuvent s'appliquer à une grande variété de produits et à leur procédé de production associé, et des approches qui aident à trouver une solution, tout spécialement en termes de mise du produit sur le marché au plus vite et au moindre coût. On peut même ajouter que la grande gamme des échelles de la chaîne de production chimique et la diversité croissante des méthodes de procédés appelle pour un effort commun avec la méthodologie de l'intensification des procédés (PI) qui a pour but une meilleure utilisation des ressources physiques et une réduction simultanée du nombre et de la dimension des équipements du procédé.

4 MAPI : LA CONFÉRENCE INTERNATIONALE SUR L'APPROCHE MULTI-ÉCHELLE POUR L'INNOVATION DES PROCÉDÉS SOULIGNANT LE 3^e PARADIGME DU GÉNIE DES PROCÉDÉS CONCERNÉ PAR LE COUPLE "PRODUITS DURABLES/PROCÉDÉS DURABLES"

L'aptitude et les capacités croissantes à suivre les phénomènes intervenant aux échelles nano et moléculaire a conduit à un engouement et une fascination pour des activités de recherche à ces échelles, tout spécialement pour les voies de synthèse chimique et pour la conception de produits chimiques. Si incontestablement de nombreuses découvertes nous attendent à ces échelles, toutefois les défis urgents précédemment mentionnés de demande pressante d'innovation des procédés pour des types de produits et des segments de marché qui concernent différents types d'industries requièrent des développements complémentaires et une utilisation de méthodologies rationnelles pour le transfert des recherches et découvertes aux échelles nano et moléculaires vers les échelles de production et de la pratique commerciale.

Cela ne pourra être réalisé qu'en se focalisant simultanément sur le développement des procédés et l'extrapolation des procédés, et en développant des techniques et des outils de modélisation et de simulation pour des analyses multi-échelles qui réduiront les risques lors de l'extrapolation. Et il faut mentionner qu'un procédé conçu et construit sur la base des principes de la chimie verte pour produire le produit réclamé par le consommateur, sera réellement un procédé « vert », si et seulement si, il est extrapolé correctement. Cela conduit au développement de nouveaux procédés « verts » (durables), ce qui inclut par exemple la conception et la notion d'intensification des procédés. Écrit clairement, l'innovation de procédés requière la méthodologie d'approche du 3^e paradigme du génie des procédés, à savoir les approches intégrées multi-échelles qui conduisent à la fois à la production de produits durables et à la mise au point de procédés durables, ce qui nécessite une bonne connaissance et compréhension de l'interconnexion qui existe entre les phénomènes qui interviennent aux différentes échelles.

Et comme nous l'avons précédemment longuement décrit et expliqué, dans les années récentes des progrès significatifs ont été réalisés à différents niveaux, que ce soit expérimentalement ou au niveau des calculs, avec la description des catalyseurs, des adsorbants, des solvants, des charges complexes et des écoulements polyphasiques. Individuellement ces efforts ont déjà eu un impact sur la conception et la modélisation des procédés et sur la performance des procédés.

Pour illustrer, nous présentons sur la figure 4 une méthodologie de développement de procédé basée sur l'utilisation de différents outils de simulation numérique à différentes échelles, une simulation à une échelle donnée fournissant des informations pour une autre échelle selon une approche couplée d'échelles.

Ainsi pour réduire de façon significative le coût des procédés de traitement de gaz ou des procédés de captage de CO₂, on peut utiliser plusieurs types de simulations. Tout d'abord une rapide étude technico-économique effectuée avec des outils de simulation appropriés peut être menée à l'échelle globale du procédé pour montrer l'importance des coûts d'investissement et des coûts associés de conception de colonne. Ensuite les simulations de processus (concernant la thermodynamique et la cinétique chimique et les transferts de matière) peuvent être utilisées pour identifier les étapes limitantes les plus importantes qui contrôlent la conception des colonnes d'absorption. Enfin les simulations de mécanique des fluides numérique (CFD) peuvent être effectuées pour déterminer les caractéristiques des écoulements dans les colonnes à garnissage. La CFD est utilisée avec plusieurs approches, depuis les petites échelles jusqu'aux grandes échelles en passant par les échelles méso. Par exemple la CFD peut être utilisée à des petites échelles locales pour les écoulements gaz-liquides avec des simulations de type *Volume Of Fluid* (VOF) mais également à l'échelle de la colonne pour étudier les effets d'entrée. La combinaison de toutes ces simulations, effectuée selon une méthodologie de bi-couplage d'échelles, permet

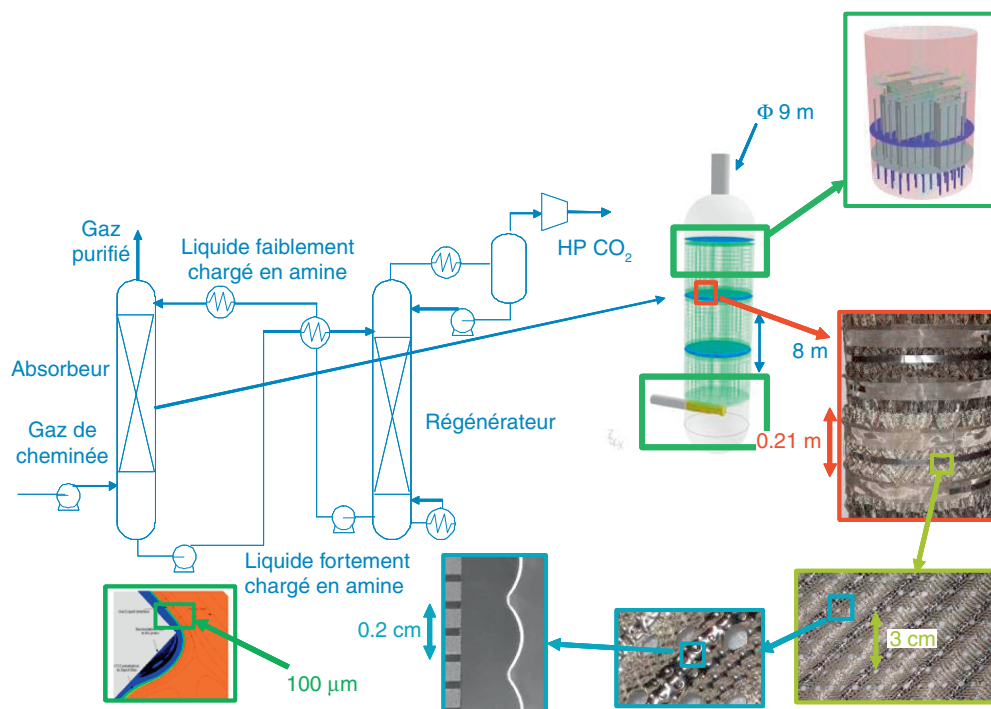


Figure 4

Les différentes échelles des différentes simulations pour un procédé de traitement de gaz ou pour un procédé captage de CO₂ en post-combustion.

de déterminer les conceptions optimales et les choix appropriés de technologies de garnissages et de distributeurs.

Ainsi il est clair que les approches multi-échelles font maintenant leur entrée en force et offrent des opportunités pour l'innovation. Mais il ne faut pas oublier que l'approche multi-échelle intégrée requiert encore des descriptions détaillées, des expériences, des modélisations et des simulations aux différentes échelles de la chaîne de production chimique, *i.e.*, molécules, espèces moléculaires dans les charges entrantes, structure des catalyseurs, sites catalytiques et dynamique des fluides, états de surface et dynamique des fluides locale, particules de catalyseur, unité de production, site industriel de production et même à de plus grandes échelles pour prendre en compte les systèmes de contrôle et les supports opérationnels. Cela requiert aussi et encore pour une première étape d'investigation la compréhension des échanges et effets combinés entre les phénomènes concernés seulement par un petit nombre d'échelles parmi toutes les échelles concernées par l'approche intégrée G3P (le génie du triplet processus moléculaires-produit-procédé), *i.e.*, les différentes échelles qui concernent les processus moléculaires, les sites catalytiques et la particule, ou bien les différentes échelles qui concernent les particules catalytiques et les fluides en contact, ou bien encore les différentes échelles rencontrées dans les interactions fluide-particule et particule-particule dans les réacteurs ou contacteurs polyphasiques, etc.

C'est ce qui était proposé dans la conférence internationale MAPI avec 3 niveaux de modélisation :

- depuis la description des charges jusqu'à la modélisation multi-échelle de la réaction,
- modélisation depuis l'échelle moléculaire jusqu'aux échelles meso- macro des catalyseurs et des matériaux poreux,
- des méthodes des éléments discrets jusqu'à la modélisation multi-échelle du réacteur.

Le but était de faire dialoguer des scientifiques qui effectuent des recherches dans les domaines de la modélisation moléculaire, de la modélisation de la reconstruction moléculaire, de la dynamique des fluides, de la conception et de la simulation de procédés.

Les 3 présentations plénières, les 23 communications orales et les 21 présentations sous forme d'affiches ont mis en exergue les approches de type modèles couplés à différentes échelles qui ont utilisé les modèles et simulations que nous avons mentionnés dans les chapitres précédents, à savoir les modèles continus, les modèles aux échelles meso, les modèles de dynamique moléculaire, et les simulations de mécanique quantique, par exemple pour prédire les voies dominantes pour des réactions fluide-solide en partant des mécanismes au niveau moléculaire, ou bien pour prédire les propriétés physiques et chimiques de charges depuis une analyse détaillée de leurs composants et une reconstruction moléculaire, ou bien encore l'exemple de modélisation multi-échelle de l'hydrodynamique de réacteurs polyphasiques.

Il faut souligner que dans la plupart des présentations les approches multi-échelles de couplage de modèles ont concerné 2 ou 3 échelles de longueur. Elles sont focalisées sur des réactions ou des opérations d'adsorption qui mettent en œuvre 2 ou 3 phases. Les industries concernées sont chimiques, pétrolières, charbonnières aussi bien que les industries concernées par la production d'énergie ou par la protection de l'environnement.

Et de fait la conférence internationale MAPI a été une bonne opportunité pour faire le point sur les recherches courantes qui portent sur ces approches multi-échelles dans ces secteurs industriels et ce, afin d'évaluer le potentiel et la possibilité d'études et de recherches plus intégrées et de discuter sur les avancées et actions futures à mener en recherche et les différents défis rencontrés pour l'innovation de procédés.

Le présent numéro d'OGST contient des contributions qui illustrent clairement les considérations précédentes sur les approches multi-échelles pour l'innovation des procédés. Elles concernent le couplage de modèles aux échelles nano, meso et micro comme par exemples pour suivre la désactivation par le soufre des catalyseurs de stockage de NO_x ou pour la simulation moléculaire de l'adsorption et de la diffusion dans des matériaux microporeux. Elles concernent également la modélisation multi-échelle jusqu'à l'échelle du réacteur comme par exemple pour suivre les processus de conversion et d'hydrotraitement de coupes lourdes pétrolières, ou pour suivre la production d'oxygène sur lit de cristallites adsorbants pour des applications dans les technologies CCS, ou encore pour décrire les écoulements fluide-particule solide et les processus de transfert de masse et de chaleur et réactionnels à la surface de ces particules dans les procédés métallurgiques ou de gazéification de charbon. Elles concernent finalement les méthodes d'approches multi-échelles depuis les méthodes d'éléments discrets jusqu'à la modélisation multi-échelle du réacteur, voir même du site de production avec comme exemples la simulation d'un écoulement de bulles dans des fluides non-Newtoniens, ou la recherche d'une grille d'échelles adéquate pour la modélisation de la vitesse globale de réaction hétérogène de combustion du coke déposé dans les régénérateurs FCC à lits fluidisés, ou encore la présentation d'une stratégie de simulations multi-échelle de réduction des dépenses d'investissements de capture de CO_2 post-combustion dans le cas d'un procédé par absorption/désorption d'amine dans des colonnes à garnissage.

Jean-Claude Charpentier
Membre du Comité Éditorial d'OGST

Cécile Barrère-Tricca
Coordinatrice de la Rencontre Scientifique MAPI

Editorial

IFP ENERGIES NOUVELLES INTERNATIONAL CONFERENCE MAPI 2012 MULTISCALE APPROACHES FOR PROCESS INNOVATION

TOWARDS THE 3rd PARADIGM OF CHEMICAL ENGINEERING: THE TIME AND LENGTH MULTISCALE APPROACHES AS AN EFFICIENT TOOL FOR SUSTAINABLE PROCESS INNOVATION

1 CURRENT TRENDS AND DEMANDS IN CHEMICAL AND RELATED INDUSTRIES: NEEDS OF PROCESS INNOVATION LINKING MARKET PULL WITH THE USER'S REQUIREMENTS TO TECHNOLOGY PUSH WITH THE ENGINEERING SOLUTIONS

The chemical and related industries including petroleum, pharmaceuticals and health, agriculture and food, environment, energy production, textile, iron and steel, bitumous, building materials, glass, surfactants, cosmetics and perfume, and electronics, etc., are today in a phase of rapid evolution. This development is due to unprecedented demands and constraints, stemming from public concern over environmental and safety issues. Chemical knowledge is also growing rapidly, and the rate of discovery increases every day. The development of combinatory chemical synthesis with the use of nano- and micro technology is a current example.

What do we expect from a modern chemical and process engineering to assure competitiveness, employment and sustainability in the oil, chemical and related industries?

There are two major demands:

- knowledge of which products and processes will be competitive in today's global economy. Here the keywords are globalization of business, partnership, and process innovation, mainly involving an acceleration of the speed of product innovation. Currently, as a result of the increased competitive pressure in the market, 1 year for the half-life of product innovation (time to market) is today often considered long. This means that it is increasingly difficult to be first on the market with an innovative product, and thus speeding up the product/process development is of paramount importance;
- moreover in industrialized countries, there is rapid growth in consumer demands for targeted end-use product properties, together with process constraints stemming from public and media concerns over environmental and safety issues, in combination with tools like stakeholders analysis, indicators and LCA (from the cradle to the grave), *e.g.* the European Registration, Evaluation, Authorization, of CHEMicals (REACH) regulations for chemical products.

To respond to such required development demands for sustainable products and processes and to offer a contribution to fight against the often non-sustainable mankind of the today world production, the following multiscale challenges are faced by chemical and process industries, involving complex systems at the process scale, at the product scale, and at the molecular scale:

- for the production of commodity and intermediate products where patents usually do not concern the process, the processes can no longer be selected on a basis of economical exploitation alone. Rather, the compensation resulting from increased selectivity and savings linked to the process itself must be considered, and the issue is who can produce large quantities at the lowest possible price with non-polluting technologies, reduction of raw materials and energy losses and product/by-product recyclability. For such high-volume bulk chemicals that still remain a major sector of the economy (40% of the market), the client will buy a process that is not polluting and perfectly controlled and safe, which requires the use of Process System Engineering (PSE) and Computer-Aided Process Engineering (CAPE) methodologies and tools *at the process-scale*. Furthermore it has to be added that the trend towards global-scale facilities may soon require a total or more probably a partial change of technology, with the current technologies no longer capable of being built “*just a bit bigger*”, if one has to handle throughputs never seen before in chemical and related industries. Indeed worldwide plant capacity must increase by a six-fold by 2050 if a growth rate of 4% is assumed. So we are faced with a demand on process innovation with the need for a change in technologies to scale-up the reliability of new processes from the current semi-work scale to a vast scale where there is no previous experience;
- new specialties, active material chemistry and related industries involve the chemistry/biology interface of the agriculture, food and health industries. Similarly, they involve upgrading and conversion of petroleum feedstock and intermediates, conversion of coal-derived chemicals or synthesis gas into fuels, hydrocarbons or oxygenates. This progression is driven by today’s market objectives, where sales and competitiveness are dominated not only by the technical specification of a product but rather by the end-use property of this product as well as its quality features, such as sensory properties, and functions, such as performance and convenience. This control of the end-use property *at the molecular-scale*, expertise in the design of the process, continual adjustments to meet the changing demands, and speed in reacting to market conditions are the dominant elements. The key to the production of pharmaceuticals or cosmetics is not their cost, but their time to market, *i.e.*, the speed of their discovery and production. Moreover for products where the value is added by a specific nanostructure, the customer will pay a premium for such a function, be it in a food, in a cleaner, in an oil additive, in paint or in a coating. More generally for the short-lifetime and high-margin products, the client buys the product that is the most efficient and the first on the market, but pays high prices and expects a large benefit. Moreover these high-margin products require new plants, which are no longer optimized to produce one product at good quality and low cost. The need in process innovation is for multipurpose technologies and generic equipments, which will not be optimized but that can be easily cleaned and easily switched over to other recipes (flexible production, small-scale batches modular set-ups and so on).

The aforementioned considerations emphasize the requirement of process innovation that involves the integration of product systems engineering with the process plant scale because naturally the processing conditions will ultimately determine the product properties. So a need of process innovation which is concerned by the multiscale phenomena encountered in the product design and associated sustainable process engineering must be taken into account by the modern sustainable chemical engineering. But how?

The answer is in presenting, successively, the current approach of the chemical engineering for product design and associated engineering, which involves the organization of scales and complexity levels and the application of multiscale and multidisciplinary computational modeling and simulation to real-life situations, from the molecular scale to the overall complex production scale for commercialization.

2 THE TODAY'S COMPLEMENTARY APPROACH IN CHEMICAL ENGINEERING: THE INTEGRATED MULTIDISCIPLINARY AND TIME AND LENGTH MULTISCALE APPROACH FOR PROCESS INNOVATION

The purpose of basic research in chemical engineering is still the development of concepts, methods and techniques to better understand conceive and design processes to transform raw material and energy into useful products. This involves the synthesis of nano- and microstructures materials, design, scale-up or scale-down operation, control and optimization of industrial processes through physical-bio-chemical separations as well as through chemical, catalytic, biochemical, electrochemical, photochemical and agrochemical reactions.

But the today emphasis on end-use properties requires also a wide variety of technologies including the new role of micro technology, *i.e.*, the use of micro structured mixers and catalytic reactors for process innovation. Moreover it is important to note that today 60% of all products sold by chemical and related companies are crystalline, polymeric, or amorphous solids. These materials must have a clearly defined shape at the product scale in order to meet the designed and desired quality standards. This also applies to paste-like and emulsified products. We have mentioned that actual developments require also increasingly specialized materials, active compound and special effects chemicals which are in fact much more complex in terms of molecular structure than traditional high-volume bulk industrial chemicals.

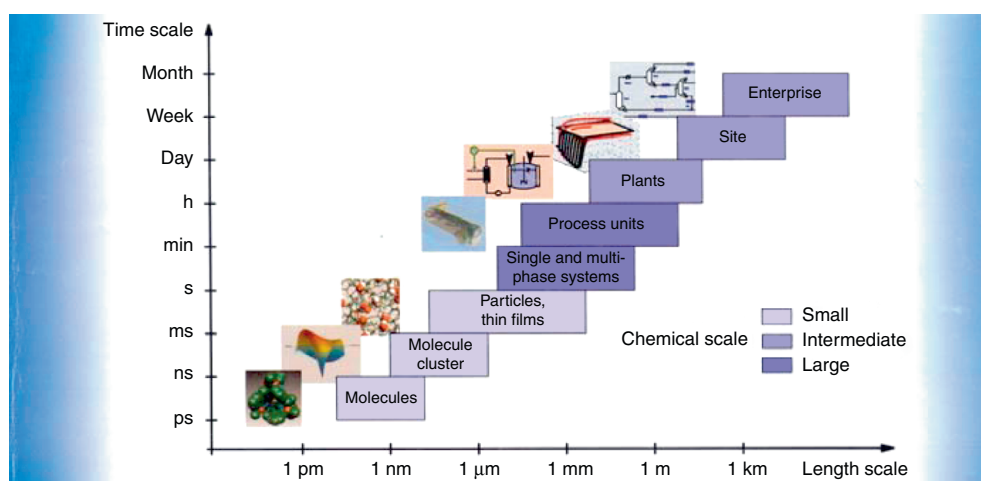
Thus the modern chemical engineering is also concerned with understanding and developing systematic procedures for the design and optimal operation of chemical and related process systems, ranging from the nano- and micro systems used for product analysis, tests or production to industrial-scale continuous and batch processes, all within the concept of the chemical supply chain (*Fig. 1*).

This chain begins with chemical or other products that industry must synthesize and characterize at the molecular level. The molecules are then aggregated into clusters, particles, or thin films. These single or multiphase systems form microscopic mixtures of solid, paste-like, or emulsion products. The transition from chemistry and biology to engineering involves the design and analysis of production units, which are integrated into a process, which becomes part of a multi-process industrial site. Finally this site is part of the commercial enterprise driven by market considerations and demands for inclusion of the product quality.

In the supply chain, it should be emphasized again that product quality is determined at the molecular nano- and/or micro scales and that a product with a desired property must be investigated for both structure and function. Indeed the key to success is to obtain the desired end-use properties, and then to control product quality, by controlling the nano- and/or microstructure formation. So a thorough understanding of the structure/property relationship at both the molecular scale (*e.g.*, surface physics and chemistry) and the microscopic scale (*e.g.*, coupling reaction mechanisms and fluid mechanics) is of primary importance to be able to design production processes. This helps to make the leap from the nanoscale to the production process macroscale that ensures the customer quality requirements at the product scale.

Moreover most of chemical processes are non-linear and non-equilibrium, belonging to the so-called complex systems for which multiscale structure is the common nature. This requires an integrated system approach for a multidisciplinary and multiscale modeling of complex, simultaneous and often coupled momentum, heat and mass transfer phenomena and kinetic processes taking place on different scales:

- different time scales (10^{-15} to 10^8 s) from femtoseconds and picoseconds for the oscillation of a hydrogen atom on the surface of catalyst nano particle or for the motion of atoms in a molecule during a chemical reaction, nanoseconds for molecular vibrations, hours for operating industrial processes, and centuries for the destruction of pollutants in the environment;



Chemical and process engineering is now concerned by/with the understanding and development of systematic procedures for the design, experimentation, modeling and simulation and optimal operation of chemical processes occurring at the different scales of the chemical supply chain:

FROM nano and microsystems-scales where chemicals have to be synthesized and characterized at the molecular-level

TO industrial-scale continuous and batch processes

Figure 1

The time and length multi scales of the chemical supply chain.

- different length scales (10^{-9} to 10^6 m) are encountered in industrial practice with approaches on the Angstroms (for the electronic structure), on the nanoscale (for molecular processes, active sites), on the microscale (for bubbles, droplets, particle wetting, and eddies), on the mesoscale for unit operation (reactors, exchangers, columns); on the macroscale for production units (plants, petrochemical complexes, etc.) and on the megascale (atmosphere, oceans and soils *e.g.*, up to thousands of kilometres for dispersion of emissions into the atmosphere).

So organizing scales and complexity levels in process engineering is necessary to understand and describe the events at the nano and micro scales and to better convert molecules into useful and required products at the process scales *i.e.*, organizing levels of complexity, by translating molecular processes into phenomenological macroscopic laws to create and control the required end-use properties and functionality of products manufactured by continuous or batch processes (transforming molecules into money).

This approach is defined as “*le Génie du triplet Processus-Produit-Procédé (G3P)*” or “the molecular Processes-Product-Process Engineering (3PE) approach”: an integrated system approach of complex multidisciplinary non-linear and non-equilibrium phenomena occurring on different length and time scales of the chemical supply chain, in order to understand how physical-bio-chemical phenomena at a smaller length-scale relate to properties and behaviour at a longer length-scale, *e.g.*, organizing levels of complexity (*Fig. 2*).

More generally, the associated idea of multiscale modeling is the computation of some desired information on a fine scale to pass a coarser scale or *vice versa*, *i.e.* emphasizing the communication of information between scales.

And it is clear that the rise in interest in multiscale modeling approaches and the integration and solution of composite models built from several partial models is driven primarily by product design where the nano and micro scales characteristics are seen as vital to “designer” products. Combined with the meso and macroscale which are typical issues seen

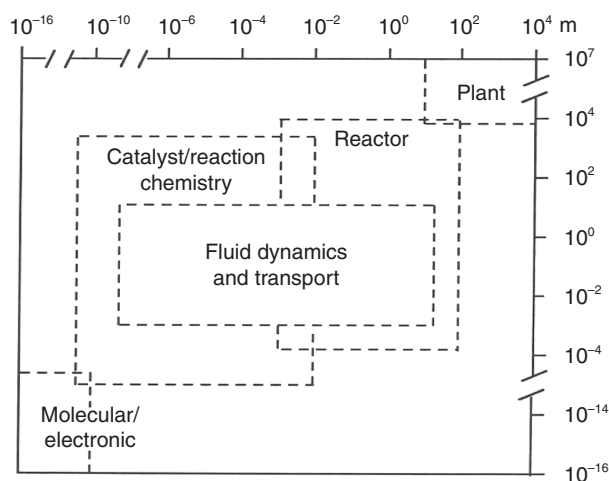


Figure 2

Organizing the complexity levels in the time and length scales covered by the integrated multiscale approach.

as vital to “designer” process at the equipment and plant levels, the emphasis on multiscale approach and representation will continue to grow for process innovation (MAPI).

So, in addition to the basic and irreplaceable notions of unit operations and to the coupled heat, mass and momentum transfers, the traditional tools of chemical engineering, as well as the fundamentals of chemical and process engineering (separation engineering, catalysis, thermodynamics, process control, economic considerations, etc.), this integrated multidisciplinary and multiscale approach, that may be considered as the 3rd paradigm of chemical engineering, is beneficial and has considerable advantages for the development and success of this engineering science in terms of concept and paradigms for product design and engineering, especially in case of market driven approach.

And it should be underlined that the multiscale 3PE integrated approach for a process innovation that combines a market pull and a technology push is now receiving more and more attention and successes thanks to the considerable developments in the analytical scientific instrumentation and non-invasive instrumentation techniques coupled with image processing, in the powerful computational tools and capabilities (clusters, supercomputers, cloud computers, graphic processing units, numerical codes parallelization, etc.), and in the development and application of descriptive models of steady state and dynamic behaviour of the objects at the scale of interest: molecules, structure of the catalyst, sites and local fluid dynamics, surface state and local fluid dynamics, catalyst particle, process unit, process plant, supply chain, and beyond including all control and operational support systems.

3 THE APPLICATION OF THE MULTISCALE AND MULTIDISCIPLINARY COMPUTATIONAL MODELING AND SIMULATION TO REAL-LIFE SITUATIONS FOR PROCESS INNOVATION: FROM THE MOLECULAR SCALE TO THE OVERALL COMPLEX PRODUCTION SCALE INTO THE ENTIRE PRODUCTION SITE, INCLUDING OPTIMAL PROCESS CONTROL, SAFETY ANALYSIS AND ENVIRONMENTAL IMPACT

The 3PE molecular Processes-Product-Process integrated approach of complexity concerns the modeling to scale from the nanostructures and microstructures of the product end-use properties to the scale of the equipment manufacturing the product. However the task of chemical engineering has been and always will be to design and implement the complete

manufacturing systems up to the macro- and mega scales of the production units and environment. Complete systems involve both individual processes and plants for producing required products, as well as the integration of the individual processes into an overall production site, in terms of materials, energy, and logistics also taking into account the requirements of both customers and the larger society. Of course it would be unrealistic to expect that, in the near future, one single simulation tool will be able to address all subsystem levels simultaneously, *e.g.*, to simulate simultaneously the many physical-bio-chemical, hydrodynamics, and momentum, mass and heat transfer phenomena occurring at the different time and length scales encountered in the units and the production site (*Fig. 3*), (*i.e.*, to design a refinery or paper overall production complex from the Schrödinger equations!).

But for process innovation, it continues to be the task of the chemical engineering to analyze subsystems at the scale level in Figure 2 that is adequate to represent the individual problem's complexity. Then the models, based on this knowledge must reduce the complexity of the lower-level findings in such a way that the results can be integrated efficiently into the description of the problem solving at the higher levels presented in Figure 2. So starting from the molecular scale, methods and simulation tools are required for the functional integration of the individual process steps and the integration of the individual production processes into the overall production complex or site. This integrated multi levels approach necessitates computer simulations that enable to design individual step, structure the entire process, and place the individual process in the overall context of production.

3.1 Models used in the Multiscale Approaches

Computers have opened the way for modeling and simulation at the different scales or levels of Figure 3.

Models can be presented with decreasing time and length scales and can be distinguished into continuum, mesoscale, molecular dynamics, and quantum mechanics models and they can be interconnected in a multiscale frame.

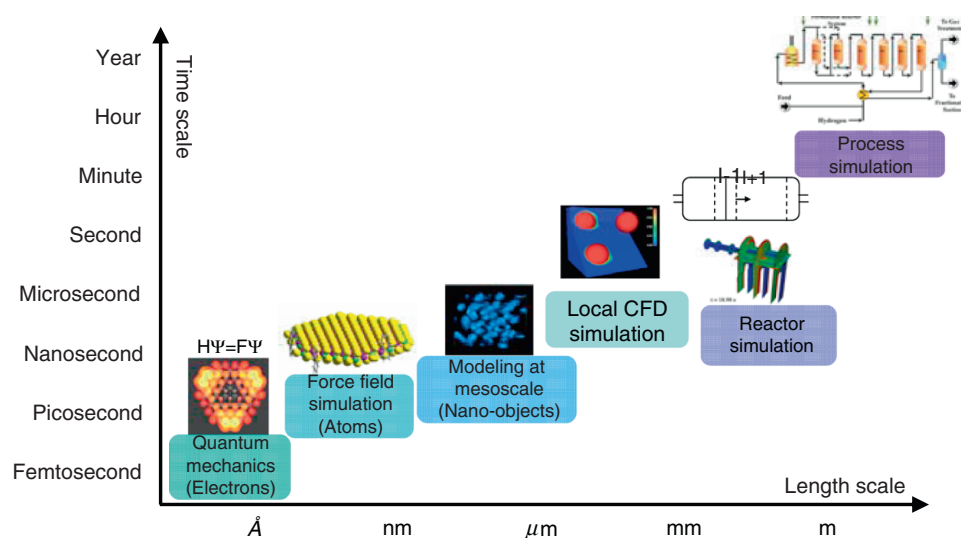


Figure 3

The scales of modeling and simulation in chemical engineering.

Continuum models like fluid mechanics neglect the discrete nature of atoms, molecules, or particle and rely on macroscopic material properties. That way it is possible to simulate length scales up to the size of reactors and provide important information on temperature, velocity, or particle concentration fields and residence times of a reactor as a result and as input at the smaller time and length scales. Continuum models also describe detailed reaction kinetics of precursors to identify rate-limiting reaction steps and develop more rigorous particle formation rates as input for population balance models or to identify the most abundant nanocluster sizes (*i.e.* in operations such as crystallization, sintering or gas-phase nanoparticle synthesis). The particle population models describe the evolution of the particle size and morphology distribution. Though they require rates such as those describing coagulation, sintering and particle formation from mesoscale, molecular dynamics, or quantum mechanics simulations, they are ready to be coupled with fluid dynamics models.

Reactors and units models based on Computational Fluid Dynamics (CFD) simulate laminar or turbulent flow, temperature, and particle concentration fields by accounting for the reactor geometry, particle dynamics and chemistry. Turbulent flows require, with increasing accuracy and computational demand, either additional models like the Reynolds-averaged Navier-Stokes (RANS) model (standard and realizable k - ϵ and the Reynolds stress model), the Large Eddy Simulation (LES), or resolution of all turbulence scales as in Direct Numerical Simulations (DNS). Direct numerical simulation is a powerful tool which has become more useful with the proliferation of high-performance computing. It is unique in predicting physicochemical process consistent with the basic equations describing the phenomena of interest by resolving all length and time scales. However, industrially relevant problems often require too big range of scales to be resolved. Thus, an increasing popular approach to reduce the computational costs is LES where large-scale features and interactions are resolved explicitly but the small-scale fluctuations and interactions are modeled to reduce the required resolution and compute-time. However, modeling these small-scale fluctuations, especially in turbulent, reacting, multiphase flows, is still a significant challenge and the high computational costs have often limited the application of LES and DNS to local phenomena revealing, *i.e.* the nanoparticle concentration gradients inside of turbulence eddies in multiphase reactors.

Mesoscale models represent (gas, liquid, solid) agglomerate particles as geometric bodies (*e.g.*, spheres) and use rate models to describe their motion, size change, and overlap during surface growth, sintering, coagulation, crystallization or more generally any particle fragmentation. For example, such models provide important information about the evolution of the fractal dimensions and the agglomerate sintering and coagulation rates which can be used as input for continuum particle population balance simulations while the primary particle coordination numbers define the setup of molecular dynamics simulation. Also fundamental models taking into account the relevant details of fluid-particle interactions such as Lattice-Boltzmann model and the particle-particle interactions such as the Discrete Particle Model (DPM) or Euler-Euler based models are used to develop closure laws to feed continuum models which can be used to compute the flow structures on a much larger industrial scale, *i.e.*, the formation and evolution of heterogeneous structures that strongly affect the performance of the process.

Molecular Dynamics (MD) models account for the discrete nature of atoms, which is neglected in continuum and mesoscale models, limiting MD to shorter length and time scales. They have been used to investigate evaporation, sintering rates and mechanisms to full coalescence or mechanisms of laser ablation. For example in operation such as gas-phase nanoparticle synthesis, the MD simulations provide detailed insights into sintering rates and mechanisms as function of particle size, composition, and crystal phase and with this the major part of the product particle performance (end-use property). They are also used to drive the mesoscale models or describe the evolution of the surface area concentration in particle population balance models.

Quantum Mechanics (QM) simulations are applied to develop simple force fields for molecular dynamics models or to determine thermochemical properties and reaction mechanisms which are required for the simulation of reacting flows using continuum fluid mechanics. Quantum mechanics is used to calculate the electronic structure of materials and quantum mechanics models describe molecules and matter very accurately but are often limited to very small systems of 1 to ca 100 atoms due to the high computational costs. Density Functional Theory (DFT) has become very popular among the various QM methods since the development of improved functionals, which cannot be derived analytically, describing the exchange and correlation interactions to solve the electron-electron many body problem as it requires a relatively low computational effort compared with other methods. The derivation of the functionals by fitting is the main reason why DFT leads to good results in many cases. A disadvantage is that local approximations do not allow accounting for van der Waals forces properly. However, DFT elucidates reaction rates and mechanisms, crystal structures or nanocluster structures and their dynamic behavior, or investigate thermochemical properties of molecules to develop, *e.g.*, gas-phase reaction system. And finally QM calculations are the most accurate simulations of matter, and methods like DFT in combination with new high-performance computing tools extends its range of application to particle/cluster sizes relevant for nanomaterials science. Also to improve certain catalysts with a knowledge of details on how the chemical reaction occurs at the atomic/molecular level on the catalyst surface, the empirical reactive force field ReaxFF, trained on the basis full quantum mechanical DFT calculations has been proven as an effective approach to transfer information from the microscopic to mesoscopic space and time scales, hence overcoming limitations in computational capacities. And as ReaxFF can manage the description of bond formation and breaking, but at much lower computational costs than DFT, larger systems (ca 10^6 atoms) can be simulated with trajectories at the nanosecond timescale.

Summarizing it can be said that at the nano-and microscopic scales computers have opened the way for process innovation in the reaction pathway synthesis or in the modeling of molecular and physical properties, *e.g.* estimation of bulk phase thermodynamic and transport properties such as diffusion coefficients and viscosities. And there is no doubt that molecular modeling and the application of the principles of statistical molecular mechanics computational techniques (*e.g.*, molecular dynamics and various Monte-Carlo (MC) techniques such as kinetic MC or lattice MC) and quantum mechanics have today an increasingly important role in for the problem-oriented approach concerned in process innovation. To illustrate, relationships between materials structural and physicochemical properties (*i.e.*, electronic structure, electronic conductivity, effective molecule gas diffusion coefficient) at the nanoscale for a catalyst particle and mesoscale for a catalyst packing cell can be built on the basis of mesoscale simulations (*i.e.*, Monte-Carlo and Coarse Grained Molecular Dynamics). To illustrate also, if we take the case of chemical product design where the molecular design problem is transformed into a Computer-Aided Molecular Design (CAMD) problem, the solution of the molecular and mixture/blend design involves various multiscale approaches. For solvent design involving relatively small molecules, target properties relate to the macroscopic scale while for drug design involving relatively large and very large molecules, target properties relate to microscopic and/or mesoscopic scales. And in this last case, as well as in the case of very complex molecules where a high level of molecular structural information need to be considered, the CAMD methods employ problem specific models based on property-molecular structural relationships of the end-use property. However there are still many challenges to be met, stemming from the very large numbers of degrees of freedom that needs to be satisfied for the molecular-level description of real-life systems (that is, from the interatomic interactions). As a result, the computational requirements may become excessive. Anyway, in regard to connecting design with reality and its complexity, the consensus seems to be that computer-aided methods and tools for chemical product design are useful with regard to initial screening by solving some of the

problems during the early stages of chemical product design and thereby contribute to chemical product design by reducing the time and effort to solve them. And through the interplay of molecular theory, simulation, and experimental measurements a better quantitative understanding of structure-property relations then evolves, which, when coupled with macroscopic chemical engineering science, can form the basis for materials and process design. The principle challenge, however, is still often to be able to combine computer models of these different scales, in order to understand how phenomena at a smaller length scale relate to properties and/or behaviour at a larger length scale. In this respect, a long-term challenge is often to combine the thermodynamics and physics of local structure-forming processes like network formation, phase separation, agglomeration, nucleation, crystallization, sintering, etc., with multiphase Computer Fluid Dynamics (CFD).

Turning to the macroscopic scale, dynamic process modeling and process syntheses are increasingly being developed. To be competitive in the production of targeted products, just in time for delivery to the consumer whose needs are constantly evolving, this requires analysis and optimization of the supply chains and the times taken by individual process stages and/or individual equipment (exchangers, reactors, pumps, storage tanks, etc.). These also have to be simulated and evaluated in terms of costs. Indeed in the production site of the chemical and related process industries, the location of a particular component in the supply chain at a given time is not always well defined, *i.e.* a batch can be found in a stirred tank, a filter, a dryer, a pump, a mill and a storage container simultaneously.

Event-driven simulation tools help to solve these problems by simulating both material flows and states within the individual pieces of equipment, and by showing which alternative plant and storage strategies provide the greatest cost benefit. In certain occasions it has been shown that this dynamic process simulation may enable to see in a matter of seconds whether bottle-necks may occur in the plant over the course of days, months or years. These can be eliminated by using additional pieces of equipment or by making additional resources available such as energy or manpower.

In general, the integration and opening of modeling and event-driven simulation environments, in response to the current demand for diverse and more complex models in process engineering, is currently occupying a more important place. The Computer Aided Process Engineering European program CAPE-OPEN “Next generation computer aided process engineering open simulation environment”, should be mentioned at this point. CAPE-OPEN is a set of standards that defines interfaces to allow the compatibility and the integration of process modeling software components from diverse pre-processor, solver and post-solver environments simulator sellers, European clients and academic researchers in computing and simulation. It aims to promote the adoption of a standard of communication between simulation systems at any time and length-scale level (property models, unit operations, numerical utilities for dynamic, static, batch simulations) to simulate processes and allow the customers to integrate the information from any simulation package into another (see CAPE-OPEN Laboratories Network-CO-LaN Consortium, www.colan.org).

And in the future, for process innovation it is clear that more effective CAPE is required to be competitive in the process industry, especially in expanding and developing interface specification standards to ensure interoperability of CAPE OPEN software components that will sustain growth and competitiveness.

Anyway challenges and opportunities still exist for the process system engineering concerning several classes of chemical products, their design and their corresponding processes, (with respect to the important energy, environmental constraints and sustainable issues), together with the need for appropriate tools. Indeed in all cases, integration of the product and process design problem is achieved by solving simultaneously some aspects of the individual product and process design.

And for process innovation there still exist a need for a framework for this integrated multiscale approach – molecular processes-product-process – for design by employing computer-aid methods and tools to develop systematic model-based solution approaches that

can be applied to a wide range of products and their corresponding processes, and that can help to find a solution, especially in terms of getting the product faster and cheaper to the market. It can be added that the widening span of the scales of the supply chain and the increasing diversity of processing methods call for a joint effort with the Process Intensification (PI) methodology, which aims at better utilization of physical resources and an associated reduction in numbers and sizes of process equipment.

4 MAPI: THE INTERNATIONAL CONFERENCE ON MULTISCALE APPROACHES FOR PROCESS INNOVATION EMPHASIZING THE 3rd PARADIGM OF CHEMICAL ENGINEERING CONCERNED BY THE COUPLE “SUSTAINABLE PRODUCT/SUSTAINABLE PROCESS”

The increased ability to monitor phenomena on the molecular and nanoscale levels has brought a fascination with molecular and nanoscale research, especially applied for reaction pathway synthesis or chemical product design. While undoubtedly many important discoveries await us at these scales, the previously mentioned pressing challenges requiring process innovation for product type and market segments relative to different types of industries require further development and implementation of rational methodologies for the transfer of molecular and nanoscale research and discoveries to production scale and commercial practice.

This is done by focusing simultaneously on process development and scale-up, and on developing techniques, and simulation and modeling tools for multiscale analysis that will reduce scale-up risks. And a process designed and engineered based on green chemistry principles for the customized product design, will commercially be “green” only if scaled up correctly, which will lead to the development of cleaner new green (sustainable) processes, including process intensification for example. Clearly, process innovation requires the methodology of the 3rd paradigm of chemical engineering, *i.e.*, the integrated multiscale approaches leading to both sustainable products and processes which necessitate a good understanding and comprehension of the interplay between the phenomena concerned on different scales.

As previously described and explained, in recent years significant progress has been made on a variety of levels, both experimentally and computationally, with the description of catalysts, adsorbents, solvents, complex feedstocks and multiphase flows. Individually, these efforts have already had an impact on process design and modeling, and process performance.

To illustrate with Figure 4, let’s speak about an efficient process development approach based on different simulations tools used at different length scales, one simulation at a given scale giving insights for the other in a two-way coupling approach.

To reduce significantly the costs of a gas treatment process or a CO₂ capture process, several types of simulations can be used. First of all, a quick techno-economical study performed with appropriate simulation tool can be used at process global scale to show how Capex and associated column designs are important. Second, process simulations (based on thermodynamics, kinetics and mass transfer) can be used to identify the most important drivers that control the design of the absorption columns. Last Computational Fluid Dynamics (CFD) simulations can be performed to determine flow characteristics in the packed columns. CFD is used with several approaches, from small scale to large scale through meso scale. For example CFD can be used at small scale for Gas/Liquid Volume of Fluid (VOF) simulations; and at column scale for studying entrance effects. The combination of all these simulations, performed in a two-way coupling methodology, allows for determining optimum designs and appropriate choices of packing and distribution technologies.

Thus it is clear that multiscale approaches are now emerging in force offering significant opportunities for process innovation. But the integrated multiscale approach still requires

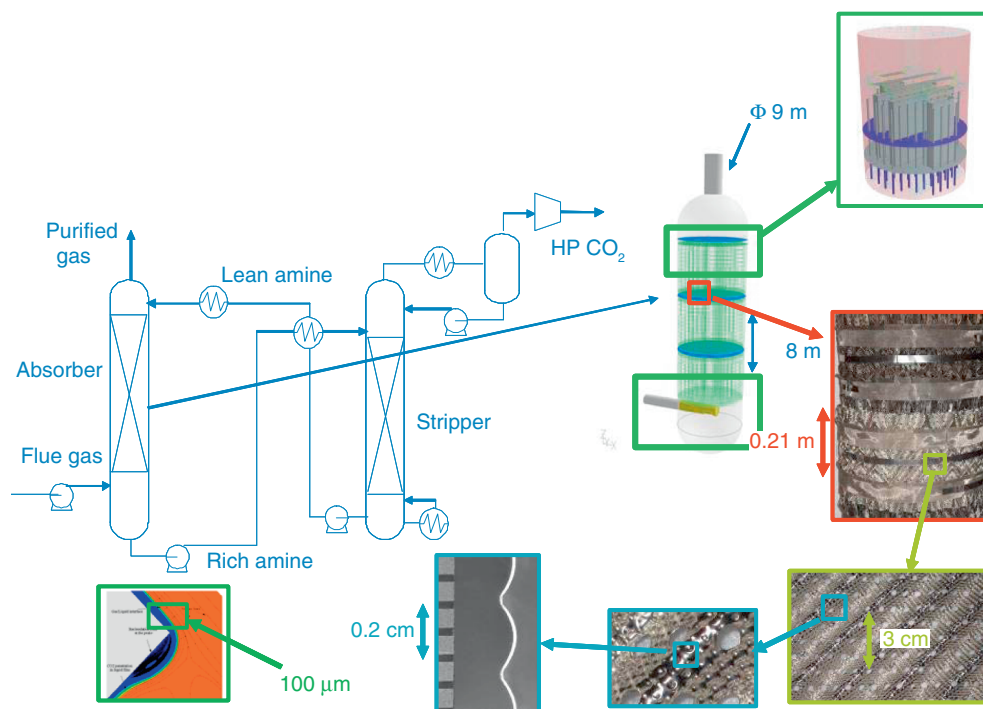


Figure 4

The different scales of the different simulations of a gas treatment process or a post-combustion CO₂ capture process.

detailed knowledge, description, experiments, modeling and simulation at the different scales of the chemical supply chain, molecules, feed molecular species, structure of the catalyst, sites and local fluid dynamics, surface state and local fluid dynamics, catalyst particle, process unit, process plant, and beyond including all control and operational support systems.

It also still requires as a first step of investigations the comprehension of the interplay between the phenomena concerned only for a small number of scales among all the scales concerned by the integrated 3PE approach, *i.e.* the scales between molecular species and catalyst sites and particle, or the scales between catalyst pellets and contacting fluids, or the different scales encountered for fluid-particle and particle-particle interactions in multiphase reactors or contactors, and so on.

This was proposed in the MAPI International Conference with the 3 topics:

- from detailed feedstock description to multiscale reaction modeling,
- from molecular-scale to meso- and macroscale modeling of catalysts and microporous materials,
- from discrete element methods to multiscale reactor modeling.

The aim was to bring together scientists investigating in the fields of molecular modeling, molecular reconstruction and reaction modeling, fluid dynamics, process design and simulation.

The 3 keynote addresses, the 23 oral and 21 poster different presentations have emphasized the multiscale couple-model approaches involving the use of the previously mentioned models and simulations such as continuum models, mesoscale models, molecular dynamics models, and quantum mechanics simulations, *e.g.* starting from molecular-level mechanisms

to predict the dominant fluid-solid reaction pathways, or from detailed feedstock analysis and molecular reconstruction predicting their physical and quality properties, up to the multiscale modeling of the multiphase reactor hydrodynamics.

It has to be mentioned that the multiscale approaches in most of the presentations have concerned 2 or 3 scales length scales model-coupling. They are chiefly focused on reaction and adsorption operations involving in 2 or 3 phase processes encountered in oil, coal and chemical industries as well as in energy production and environment protection industries.

The international MAPI conference has been a good opportunity to examine current researches using multiscale approaches in these industry segments, to evaluate the potential of more integrated studies and investigations and to discuss future research advances and the various challenges to be met for process innovation.

The present issue of OGST includes contributions which clearly illustrate the previous considerations on multiscale approaches for process innovation. They apply on the nano, meso and micro scales model-coupling for the sulphur deactivation of NO_x storage catalysts or for the molecular simulation of adsorption and diffusivity in microporous materials. They also apply on the multiscale modeling up to the reactor scale for the conversion and the hydrotreating of heavy oil vacuum residues, or for the oxygen production processes using adsorbent for application to CCS technologies, or for fluid-solid particle flows, heat and mass transfer and reactions in coal gasifiers or in metallurgy processes. And they finally apply on the multiscale approach from discrete elements methods up to multiscale reactor modeling for the simulation of bubble rising in non-Newtonian fluids, or for finding a sub-gridscale modeling of the global reaction rate in the heterogeneous combustion of the coke deposition in FCC regenerators, and for a multiscale simulation strategy focused on the reduction of the CO₂ capture capital cost in the case of post-combustion capture *via* amine-based absorption/desorption processes in packed columns.

Jean-Claude Charpentier

Member of the Editorial Board of OGST

Cécile Barrère-Tricca

Coordinator of the MAPI International Conference