

Editorial

DID YOU SAY: “METHODODOLOGY FOR PROCESS DEVELOPMENT AT IFP ENERGIES NOUVELLES: A PLEA FOR PROCESS INTENSIFICATION”?

Jean-Claude Charpentier

*Member of the Editorial Board of OGST
Laboratoire Réactions et Génie des Procédés, CNRS/ENSIC,
Université de Lorraine, 1 rue Grandville, 54000 Nancy - France*

In the framework of globalization of markets, sustainability, environmental protection, and the race to produce “first on the market” green products with a range of desired properties, there exists today a challenging demand for innovative new sustainable processes and technologies. This requires new and original methodologies for the development of such sustainable processes.

This special issue of *Oil & Gas Science and Technology – Revue IFP Energies nouvelles* presents 6 papers that illustrates major results and successes obtained with the methodology for process development led by research teams at *IFP Energies nouvelles*.

The first article, entitled “*COSWEETTM: A New Process to Reach Very High COS Specification on Natural Gas Treatment Combined with Selective H₂S Removal*” by **J. Magné-Drisch, J. Gazarian, S. Gonnard, J.M. Schweitzer, D. Chiche, G. Laborie and G. Perdu** [1], concerns an innovative process, developed for the treatment of natural gases containing Carbonyl Sulfide (COS), with the elimination of this compound by hydrolysis through heterogeneous catalysis on a metal-oxide-based catalyst which transforms COS into acid gases CO₂ and H₂S. Nearly 100% conversion is reached at moderate temperature.

The philosophy of the process development is to keep the high selectivity performance of MDEA amine solvent obtained with a conventional acid gas absorption and achieve a significant COS removal through a dedicated catalytic reactor coupled with the sweetening unit in which an adapted alkanolamine solvent is used in order to optimize the removal of acid gases, as well as the CO₂/H₂S selectivity. Both catalytic and processes schemes were investigated to find the suitable configuration.

The article details successively the complete development process approach and the results obtained on COS conversion, and the models and simulation tools as well as a case study showing the advantages of coupling COSWEETTM to amine base solvent. It is shown that COSWEETTM offers an attractive solution for deep COS removal when selective H₂S removal would be desired. CAPEX and OPEX savings of the process compared to the usual formulated MDEA amine unit sized to reach the same COS specification are quite substantial (more than 7% for the CAPEX and more than 65% for the OPEX).

The second article, entitled “*Catalytic Reforming: Methodology and Process Development for a Constant Optimisation and Performance Enhancement*” by **P. Avenier, D. Bazer-Bachi, F. Bazer-Bachi, C. Chizallet, F. Deleau, F. Diehl, J. Gornay, E. Lemaire, V. Moizan-Basle, C. Plais, P. Raybaud, F. Richard** and **S. Lacombe** [2], proposes and reports constant and recent improvements by *IFP Energies nouvelles* R&D teams to a 70-year-old process that is well-established and thought to be unimprovable. This is not the case and the article clearly shows that with a global R&D approach constant improvements can be afforded on each part of the process, either at the level of the reactor technology, efficiency and safety of mechanical design for the reactor or at the level of the catalyst formulation and the validation of their performances with an efficient, reliable and adapted pilot’s panel.

A patented new radial catalytic bed reactor increasing capacity has been proposed and thanks to a dedicated cold mock-up (9 m height) and solid-phase CFD modeling, design criteria have been proposed at the pilot scale and checked at the industrial scale. Then the global behaviour of a reforming reactor has been determined using modelization of the catalyst frictions and experimental mechanical characterization of the different reactor structures to ensure efficiency and safety of the mechanical design for the reactor. Such mechanical modeling associated with mechanical tests has led to improvements in the reactor design.

Also, new catalysts have been developed to notably increase process performance due to a deep insight and comprehension of catalytic mechanisms by using experimental and innovative analytical approaches such as ^{119}Sn Mössbauer and X-ray absorption spectroscopies (XANES) to explore the nuclear and atomic structures of materials and also by using quantum modeling and DFT calculations to get a deeper insight in the structure and behaviour of active sites in catalytic reforming. A detailed development of catalysts has resulted in the formation of today’s PtSnIn/Al₂O₃-Cl tri-metallic alloys catalysts.

Finally concerning the validation of new reforming catalysts at different stages of their development by pilot plant testing with real feeds in operating conditions representative of industrial operating conditions, a complete pilot’s panel for catalyst testing requiring control of heat and mass transfer and analytical tools specifically developed to control real-time reactions and performance catalysts, is presented. It involves a catalyst’s high throughput experimentation pilot allowing testing of a few hundred milligrams of catalysts prepared at a laboratory scale, a micro pilot containing 6 tubular reactors in parallel with an online gas chromatography system and software to calculate the Research Octane Number (RON). The pilot’s panel involves also a relative simple laboratory-scale pilot plant for tests using molecular models with a few grams of catalysts. The final validation of new processes and new catalysts is led in a pilot plant for loading of one hundred grams of catalyst in an isotherm tubular reactor whose temperature, heat and mass transfer are perfectly controlled. All these pilot plant tests provide information such as activity, selectivity and stability of reforming catalysts.

The third article, entitled “*CFD Applied to Process Development in the Oil and Gas Industry - A Review*” by **L. Raynal, F. Augier, F. Bazer-Bachi, Y. Haroun** and **C. Pereira da Fonte** [3], is a remarkable synthesis and a vibrant plea in favour of the use of computational fluid dynamics in all steps of the development of a new process, with a focus on refining in the oil and gas industries. Those different steps consist first of setting up tools that will be used during the development step (a pre-processing step defining the geometry and choosing the adequate boundary conditions and the appropriate mesh), second, of obtaining data in complement with experiments required for the process development (choosing appropriate models in terms of physical modeling and mathematical solvers), and finally, of troubleshooting actions or technology development that will make the process even more efficient (a post-processing or post-treatment step consisting of making the most of the calculations that can be used to show flow with colourful illustrations or provide quantitative information that would increase the value of simulations). The main objective of this third step of the process development is a better design and optimized technologies, making the flow as ideal as possible for achieving the desired yields or performances.

It should be mentioned that there are many different challenges encountered in simulations of refining chemical reactors with the range of scales encountered, for example in the case of catalytic reactors from the reactor main dimensions to the thickness of the liquid diffusion layer on the catalyst being about 10^6 orders of magnitude and to add the complex, unstable multi-phase flows with strong gas/liquid/solid interactions and simultaneous mass and heat transfer and reactions inside the reactor.

A large number of applications corresponding to various flow configurations, single phase or gas-liquid, gas-solid or gas-liquid-solid, characterized by significantly different scales and requiring adapted simulation approaches are discussed. They are based on original results concerning methodologies for process development developed by the R&D teams at *IFP Energies nouvelles* or encountered in a review of the literature. They concern multi-scale simulations in trickle-bed reactors, plate columns, bubble columns for Fischer-Tropsch process development, FCC riser, etc., and also the design of reactor internals involving the development of the intellectual property which is of key importance for process licensors or technology vendors and which bring innovations to the market and make the chemical reactors more and more efficient.

Concerning the methodologies for the development of future processes, it is emphasized in the article that they will support the possibility of addressing more and more complex flows, but still require experiments. Indeed, both experimental and numerical CFD approaches complement each other, experiments providing for example information for closure law development, which can be used for extrapolation purposes. Also, with model developments, time and length multi-scale approaches and parallelisation will support the possibility of addressing more and more complex flows coupled with heat and mass transfer and reaction with less and less assumptions to make.

The next article is a nice illustration of this complementary approach CFD coupled with experiments used for the design of innovative technologies, emphasizing how CFD can be used as an effective analysis and design tool for the development and design of packed gas-liquid absorption columns.

Indeed the fourth article, entitled “*Use of Computational Fluid Dynamics for Absorption Packed Column Design*” by **Y. Haroun** and **L. Raynal** [4], aims to show how Computational Fluid Dynamics (CFD) is today commonly used in a variety of process industries for the development of innovative technologies. More specifically it concerns a nice example of the use of CFD as an effective analysis and design tool for the development and design of gas-liquid absorption packed columns, with commercial structured packings, *Sulzer Mellapak* type or equivalent, such as *Flexipac* from *Koch-Glitsch* or *B1* series from *Montz*.

It is first shown how CFD can be used for the characterization of packings. The different hydrodynamic and mass transfer design parameters are investigated and adapted using CFD methods, involving critical aspects of CFD simulations, which are suggested to predict dry gas flow pressure drop, physical and reactive liquid-side mass transfer coefficients, gas-side mass transfer coefficient, effective interfacial area and liquid hold-up. It is clear that parametric CFD effective area calculations combined with pressure drop and mass transfer analysis appears to be a powerful tool for first structured packing characterization, as well as for the optimization of new packing geometry. These parameters could be further used in process simulation on a larger scale for the development and design of efficient reactive absorption columns.

It is also shown that numerical simulations with commercial CFD softwares can be used as a design tool to improve column distribution internal devices, such as liquid and gas tray distributors, both in static or offshore conditions. An example of the development of new distribution technologies for floating installations of a reactive packed absorption column is presented.

Globally, this article, which concerns methodologies for process development at *IFP Energies nouvelles* aiming for packed absorption column optimal design, shows that CFD simulation tools can complete experiments either by providing supplementary information that experiments can provide too, at least partially, such as mass transfer determination, or by providing supplementary information that experiments cannot address, or with limiting inputs, in particular linked to

scale-up issues, such as internal design. It is important to emphasize that both tools really complete each other.

The fifth article, entitled “*Development of the Fischer-Tropsch Process: From the Reaction Concept to the Process Book*” by **C. Boyer, J. Gazarian, V. Lecocq, S. Maury, A. Forret, J.M. Schweitzer** and **V. Souchon** [5], describes the process development strategy of the low temperature Fischer-Tropsch process implemented by *IFP Energies nouvelles*, *ENI* and *Axens*, ranging from the reaction concept and preliminary process investigations to evaluate the best technology and provide the first process scheme up to the strategy to scale up the technology and catalyst before establishing the process guide for industrial proposal and unit design. Thus the process development strategy is based on upstream process studies to choose the process scheme, reactor technology and operating conditions, and downstream to summarize all the development work in a process guide.

The upstream process studies have required a large amount of investigations devoted to the selection and optimization of Co-based on alumina carrier catalysts performances on one hand, and the scale-up of the slurry bubble reactor with dedicated complementary tools by studying the hydrodynamics of a slurry bubble column on different scales on the other hand. An original approach was implemented to validate both the process and catalyst on an industrial scale. *ENI* and *IFPEN* have shown the pertinence of combining (i) a 20 bpd pilot plant unit in *ENI*'s Sannazzaro refinery in Italy to validate catalyst performances in real slurry bubble conditions and a long-term basis, and to validate the different liquid/solid separation technologies and slurry catalyst handling, and (ii) a special Large Validation Tool (LVT) continuous stirred tank reactor to quantify fine formation on the catalyst on a industrial scale (up to 15.000 bpd) and to reproduce the combined effect of chemical reaction condition stress and mechanical stress the catalyst will undergo in real large size industrial unit, with (iii) cold mock-ups equivalent to 20 and 1000 bpd situated on *IFPEN* site at Lyon, France to investigate the flow hydrodynamics (liquid mixing and internal effects).

Accompanying this work, dedicated sophisticated analytical techniques (including the combination of Gas Chromatography (GC) methods from low-resolution GC to extremely powerful 2D Gas Chromatography (GC×GC)) have been developed to properly quantify the feed and product composition to accurately demonstrate product specification achieved. Also a dedicated complex model, integrating a high level of complexity and phenomena coupling, has been developed to simulate the whole process (reactor and separation train) to predict and optimize process performances on an industrial scale, *i.e.*, to scale-up the process in a robust and reliable base on an industrial case.

It is important to note that this article shows that these tools have proven to be efficient for developing an industrial-scale Fischer-Tropsch catalyst and that they predict in a representative manner fine formation, activity and selectivity of improved catalysts and/or optimization of operation conditions to increase the capacity per train.

The last article, entitled “*A Review of Kinetic Modeling Methodologies for Complex Processes*” by **L. Pereira de Oliveira, D. Hudebine, D. Guillaume** and **J.J. Verstraete** [6], presents an overview of the chemical kinetic modeling techniques for complex processes involving several hundred or several thousand components and reaction intermediates.

After a brief but exhaustive historical presentation of chemical kinetics, an overview is given of the theoretical background on kinetic modeling of elementary steps and multi-step reactions involving two mean modeling strategies, *i.e.* a detailed modeling strategy and a lumping strategy. In the detailed modeling strategy, the chemical detail is generally retained at the molecular level, or even at the level of the reaction intermediates. In the lumping strategy the chemical complexity is reduced by grouping chemical compounds by similar properties or by carbon number into families or “lumps” and grouping individual reactions into lumped reactions between these families. In this case, a mean-field approach together with a rate-determining step approximation is generally used. To illustrate, two examples of lumped kinetic models for atmospheric gasoil hydrotreating and

fixed-bed residue hydrotreating developed at *IFP Energies nouvelles* between 1995 and 2005 are presented.

Then a large part of the article describes detailed kinetic modeling approaches in which the reactions are represented between molecules or even subdivided into elementary steps. To be able to retain this molecular level throughout the kinetic model and the reactor simulation, three hurdles had to be cleared, (i) the feedstock needed to be described in terms of molecules, (ii) large reaction networks needed to be automatically generated, and (iii) a large number of rate equations with their rate parameters needed to be derived. To deal with these three obstacles, molecular reconstruction algorithms have been applied when advanced analytical techniques are not able to provide a detailed characterization of the feedstock; also, deterministic or stochastic large-size reaction networks have been generated, and single-event micro-kinetics and/or linear free energy relationships have been applied at *IFP Energies nouvelles*, as illustrated by several examples of kinetic models for industrial refining processes *i.e.* oligomerization of light olefins or hydrotreating and hydroconversion of oil fractions, such as hydrotreating of light oil fraction and hydroconversion of vacuum residues.

All the methodologies for complex process development and examples presented in this article clearly show that a fine and more fundamental description and understanding of very complex processes can be acquired by applying advanced techniques for composition, kinetic and reactor modeling.

This special issue of the OGST journal provides the reader with a unique, circumstantial and comprehensive set of valuable and complementary contributions which illustrate the different aspects of the methodologies for process development encountered at *IFP Energies nouvelles* aiming at innovative new sustainable processes and technologies. It has to be underlined that the approaches reported in the articles illustrate the current philosophy encountered in the development of process engineering which emphasizes the concept of “process intensification”, involving an intensification of processes at the multi scales of the development, from the molecular scale up to the reactor scales.

It is my pleasure to conclude this editorial in addressing many congratulations to the eminent Dr Jean-François Joly, who has carefully coordinated the gathering of the scientific and technological contributions published in a special OGST journal issue, which certainly will remain a reference for the general topic concerning the methodology of process development, and more generally for process intensification in the domain of gas and oil refining.

REFERENCES

- 1 Magné-Drisch J., Gazarian J., Gonnard S., Schweitzer J.-M., Chiche D., Laborie G., Perdu G. (2016) COSWEET™: A New Process to Reach Very High COS Specification on Natural Gas Treatment Combined with Selective H₂S Removal, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 40.
- 2 Avenier P., Bazer-Bachi D., Bazer-Bachi F., Chizallet C., Deleau F., Diehl F., Gornay J., Lemaire É., Moizan-Basle V., Plais C., Raybaud P., Richard F., Lacombe S. (2016) Catalytic Reforming: Methodology and Process Development for a Constant Optimisation and Performance Enhancement, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 41.
- 3 Raynal L., Augier F., Bazer-Bachi F., Haroun Y., Pereira da Fonte C. (2015) CFD Applied to Process Development in the Oil and Gas Industry – A Review, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 42.
- 4 Haroun Y., Raynal L. (2015) Use of Computational Fluid Dynamics for Absorption Packed Column Design, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 43.
- 5 Boyer C., Gazarian J., Lecocq V., Maury S., Forret A., Schweitzer J.M., Souchon V. (2016) Development of the Fischer-Tropsch Process: From the Reaction Concept to the Process Book, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 44.
- 6 Pereira de Oliveira L., Hudebine D., Guillaume D., Verstraete J.J. (2016) A Review of Kinetic Modeling Methodologies for Complex Processes, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 45.

Éditorial

VOUS AVEZ DIT : « LES MÉTHODOLOGIES POUR LE DÉVELOPPEMENT DE PROCÉDÉS À L'IFP ENERGIES NOUVELLES : UN PLAIDOYER EN FAVEUR DE L'INTENSIFICATION DES PROCÉDÉS » ?

Jean-Claude Charpentier

Membre du Comité Éditorial de l'OGST
Laboratoire Réactions et Génie des Procédés, CNRS/ENSIC,
Université de Lorraine, 1 rue Grandville, 54000 Nancy - France

Dans le cadre de la mondialisation des marchés, du développement durable, de la protection de l'environnement, de la production de produits verts « premiers sur le marché » avec la propriété d'usage désirée, il existe aujourd'hui une demande pressante pour la mise au point de procédés et technologies innovants et durables. Cela requiert de nouvelles et originales méthodologies pour le développement de tels procédés et technologies durables.

Ce numéro spécial de la revue *Oil & Gas Science and Technology – Revue IFP Energies nouvelles* présente 6 articles pour illustrer des résultats et succès majeurs obtenus avec des méthodologies pour le développement de procédés développées par des équipes de recherche et développement de *l'IFP Energies nouvelles*.

Le premier article « *COSWEETTM : procédé innovant de traitement du gaz naturel combinant une élimination sélective de l'H₂S et une spécification poussée sur le COS* » par **J. Magné-Drish, J. Gazarian, S. Gonnard, J.M. Schweitzer, D. Chiche, G. Laborie et G. Perdu** [1], porte sur un procédé innovant de traitement de gaz naturel comportant du Sulfite de Carbonyle (COS), avec l'élimination de ce composé par hydrolyse complète, à l'aide d'un catalyseur à base d'oxyde métallique, qui transforme le COS en gaz acides CO₂ et H₂S. Ce procédé permet d'atteindre des conversions du COS proches de 100 %.

La philosophie du développement de procédé est de conserver les fortes performances sélectives du solvant amine MDEA obtenues pour l'absorption conventionnelle des gaz acides et de réaliser simultanément l'extraction du COS dans un réacteur catalytique, ce réacteur étant couplé avec l'unité d'absorption dans laquelle il est utilisé un solvant à base d'une alcanolamine adaptée pour optimiser l'élimination des gaz acides et la sélectivité H₂S/CO₂. Les schémas catalytiques et de procédés ont été étudiés pour trouver la meilleure configuration afin d'obtenir une importante élimination du COS.

Ainsi l'article détaille successivement la méthodologie de développement du procédé et les performances obtenues sur la conversion du COS, les modèles et outils de simulation et il propose un cas d'étude montrant les avantages du procédé de couplage COSWEETTM comparé avec une colonne d'absorption aux amines. Ainsi les évaluations économiques portant sur les coûts d'investissement et de fonctionnement ont montré des gains notables de plus de 7 % pour les CAPEX et de plus de 65 % pour les OPEX, à comparer avec les unités d'absorption avec amine MDEA dimensionnées pour atteindre les mêmes spécifications en COS.

Le deuxième article « *Le reformage catalytique : méthodologie et développement procédé pour une optimisation et une amélioration constante des performances* » par **P. Avenier**,

D. Bazer-Bachi, F. Bazer-Bachi, C. Chizallet, F. Deleau, F. Diehl, J. Gornay, E. Lemaire, V. Moizan-Basle, C. Plais, P. Raybaud, F. Richard et S. Lacombe [2], propose et rapporte des améliorations permanentes et d'actualité apportées par les équipes de R&D de l'*IFP Energies nouvelles* à un « vieux » procédé de 70 ans qui peut paraître mature et pour lequel on pourrait croire qu'aucune innovation ne serait possible ou envisageable. Il n'en est rien et l'article démontre clairement qu'à l'aide d'une stratégie globale de R&D des améliorations permanentes peuvent être apportées sur chaque partie du procédé que ce soit au niveau de la technologie du réacteur, de l'efficacité et de fiabilité des conceptions mécaniques des réacteurs, ou bien que ce soit au niveau de la formulation des catalyseurs et de leur développement fiable et optimisé sur une gamme d'unités pilotes adaptée.

Ainsi il a été proposé un nouveau concept de réacteur radial breveté augmentant la capacité et à l'aide d'une maquette froide de hauteur 9 m et d'une modélisation numérique MFN de la phase solide, des critères de conception ont été proposés à l'échelle pilote et testés à l'échelle industrielle. Ensuite le comportement global d'un réacteur de reformage a été déterminé par des modélisations fines des frottements des particules et par des caractérisations expérimentales des déformations des structures du réacteur pour assurer l'efficacité et la sécurité des différentes pièces mécaniques et améliorer ainsi la conception du réacteur.

Par ailleurs de nouveaux catalyseurs ont été récemment développés qui augmentent considérablement les performances du procédé de reformage grâce à une compréhension fine des mécanismes catalytiques, et ce, à la fois par le couplage d'expérimentations et de techniques analytiques innovantes comme les spectroscopies ^{119}Sn Mössbauer et d'absorption de rayon X (XANES) pour explorer les structures nucléaires et atomiques des matériaux et aussi par modélisation quantique et calculs DFT pour caractériser la structure et le comportement des sites actifs dans le reformage catalytique. Un développement très détaillé et circonstancié de catalyseurs a été présenté dans l'article qui concerne le développement de catalyseurs de type alliages tri-métalliques PtSnIn/Al₂O₃-Cl.

Enfin pour la validation de nouveaux catalyseurs de reformage par tests sur unités pilotes dans des conditions opératoires représentatives des conditions industrielles, il est présenté une gamme d'outils et d'unités pilotes adaptée avec contrôle de transfert de matière et de chaleur et avec outils analytiques spécifiques pour contrôler les réactions et les performances des catalyseurs en temps réel. Il s'agit d'expérimentation à hauts débits de catalyseurs (criblage) avec quelques centaines de grammes de catalyseurs préparés à l'échelle laboratoire, de micro pilotes en parallèles avec analyse chromatographique en ligne et codes de calculs pour obtenir l'indice d'octane recherche (RON). Il s'agit également de tests de modélisation moléculaire effectués sur une seule unité pilote avec quelques grammes de catalyseur et enfin de la validation des nouveaux catalyseurs et procédés avec une charge d'une centaine de grammes de catalyseurs placée dans un réacteur pilote tubulaire isotherme dont la température et les transferts d'extensité sont parfaitement contrôlés. L'article montre que cet ensemble de pilotes fournit des informations précieuses sur l'activité, la sélectivité et la stabilité des catalyseurs de reformage.

Le troisième article « *La simulation numérique des écoulements appliquée au développement de procédés dans le monde de l'industrie du pétrole et du gaz – une revue* » par **L. Raynal, F. Augier, F. Bazer-Bachi, Y. Haroun et C. Pereira da Fonte [3]**, est une remarquable synthèse et un vibrant plaidoyer pour l'emploi de la mécanique des fluides numérique CFD (*Computational Fluid Dynamics*) dans les différentes phases de développement d'un nouveau procédé, en particulier dans le secteur du raffinage pétrolier et gazier. Ces différentes phases correspondent tout d'abord à la mise au point des équipements qui seront conçus et utilisés pour le développement (phase de pré-développement avec définition des géométries et choix des conditions aux limites adéquates représentatives des phénomènes physiques et des tailles de maille appropriées), puis au complément des essais effectués lors de la phase de développement elle-même avec le choix de modèles appropriés (en termes de modélisations des phénomènes physiques et de solveurs mathématiques), et enfin à des actions support pour la résolution de problèmes opératoires ou bien pour l'amélioration de technologies qui permettront d'optimiser le problème (phase post-procédé

ou post-traitement avec la plus grande quantité de calculs effectués pour obtenir des illustrations des écoulements en couleur ou bien des informations quantitatives capables d'améliorer la qualité des simulations). Il faut mentionner lors de ces différentes phases de développement du procédé les nombreux défis de la simulation numérique qui portent sur des ordres de grandeur de 10^6 pour les échelles de longueur (par exemple depuis l'épaisseur du film de diffusion sur le catalyseur jusqu'à la dimension du réacteur catalytique) sans compter les différents défis rencontrés avec la simulation numérique CFD de phénomènes couplés dans des écoulements complexes et instables polyphasiques avec réactions chimiques et transfert de matière et de chaleur simultanés.

L'article est illustré par de nombreuses applications correspondant à différents types d'écoulement, monophasique ou gaz-liquide, gaz-solide et gaz-liquide-solide, caractérisées par des échelles de résolution différentes et nécessitant des approches de simulation numérique CFD adaptées, applications qui présentent des méthodologies de développement de procédés sur la base de résultats originaux des équipes de l'*IFP Energies nouvelles* ou de résultats de la littérature. Ces applications portent notamment sur les réacteurs catalytiques à lit fixe, sur les colonnes à plateaux et les colonnes à bulles pour le procédé Fischer-Tropsch, sur les réacteurs gaz-solide de craquage catalytique FCC, etc. et aussi sur la conception de nombreux équipements internes, avec pour ces équipements le développement de propriété intellectuelle, ce qui est d'une importance-clé pour les vendeurs de licence ou de technologie de procédés et ce qui apporte aussi et surtout de l'innovation technologique sur le marché.

Et en ce qui concerne les méthodologies pour le développement futur de procédés, il est clairement montré dans l'article qu'elles devront porter sur des simulations numériques d'écoulements de plus en plus complexes qui nécessiteront quand même des expérimentations fines complémentaires. En effet les approches expérimentales et numériques se complètent, les expériences procurant des informations concernant par exemple le développement de lois de fermeture pour la description de ces écoulements, informations qui pourront être utilisées ensuite dans les simulations pour extrapolation. Aussi, grâce au développement de modèles, les approches multi-échelles et la parallélisation vont offrir la possibilité de décrire, des écoulements de plus en plus complexes avec couplage de phénomènes réels de transfert de matière et de chaleur et réactionnels et ce, avec de moins en moins d'hypothèses à faire.

Et il faut préciser que l'article suivant offre une belle illustration de cette approche complémentaire CFD et expérimentation pour la conception de technologies innovantes, en montrant l'apport important de la CFD comme outil d'analyse et de dimensionnement pour le développement des colonnes d'absorption gaz-liquide à garnissages.

En effet le quatrième article « *Utilisation de la dynamique des fluides numérique pour le design des colonnes d'absorption à garnissages* » par **Y. Haroun** et **L. Raynal** [4], a pour objectif d'illustrer l'utilisation d'aujourd'hui de la dynamique des fluides numérique (CFD) pour le développement de technologies innovantes dans de nombreux domaines et procédés industriels. Il s'agit plus spécifiquement de montrer un bel exemple d'utilisation de cette simulation numérique comme outil d'analyse et de dimensionnement pour le développement des colonnes d'absorption gaz-liquide à garnissages, avec des garnissages structurés de type *Sulzer Mellapak* ou semblables comme *Koch-Glitsch Flexipac* ou *Montz B1-series*.

Il est d'abord montré comment la CFD peut être utilisée pour caractériser les différents paramètres de dimensionnement d'un garnissage (hydrodynamique et transfert de matière). Des simulations CFD appropriées sont suggérées et discutées de façon critique pour prédire la perte de charge de l'écoulement du gaz en voie sèche, les coefficients de matière physiques et chimiques côté liquide, le coefficient de matière côté gaz, les aires interfaciales et le taux de rétention de liquide. Il est ainsi clairement montré que la combinaison des simulations paramétriques CFD d'aires interfaciales effectives avec des analyses portant sur la perte de charge et les transferts de matière sont des outils puissants pour une première caractérisation de garnissages structurés, tout comme pour l'optimisation de nouvelles géométries de garnissage. Ces paramètres peuvent être ensuite utilisés pour une simulation à plus grande échelle pour le développement et la conception de colonnes d'absorption réactives efficaces.

Il est ensuite montré comment les simulations numériques avec des codes commerciaux peuvent être utilisées pour le développement et l'optimisation des internes de distribution gaz-liquide des colonnes opérant sur sites statiques ou en conditions offshore. Un exemple original de développement par CFD d'une nouvelle technologie de distribution pour une colonne d'absorption réactive sur une installation flottante offshore est présenté.

En résumé, cet article, qui concerne des méthodologies de développement de technologies innovantes mises en œuvre à l'*IFP Energies nouvelles* dans le but d'optimiser la conception d'une colonne d'absorption à garnissage, montre que les simulations de la dynamique des fluides numérique CFD peuvent compléter les résultats d'expérience, soit en fournissant des informations supplémentaires à celles apportées partiellement par les expérimentations (comme pour la détermination du transfert de matière), soit en fournissant des informations supplémentaires que les expérimentations ne peuvent pas apporter ou bien apporter avec peu de données, en particulier comme les informations reliées aux conditions d'extrapolation (cas de la conception des internes de distribution des phases en écoulement). Il est ainsi important de souligner que les approches expérimentales et numériques sont complémentaires.

Le cinquième article « *Développement du procédé Fischer-Tropsch : du concept de réaction au dossier de procédé* » par **C. Boyer, J. Gazarian, V. Lecocq, S. Maury, A. Forret, J.M. Schweitzer et V. Souchon** [5], décrit la stratégie de développement du procédé Fischer-Tropsch basse température menée en collaboration par l'*IFP Energies nouvelles*, *ENI* et *Axens*. Elle va des concepts de réaction et des études préliminaires de procédé pour évaluer la meilleure technologie et fournir le premier schéma de procédé jusqu'à la méthodologie d'extrapolation de la technologie et du catalyseur, avant d'établir le guide de procédé pour la demande industrielle et la conception de l'unité. Ainsi la stratégie de développement de procédé est fondée sur des études procédés en amont pour choisir le schéma de procédé, la technologie de réacteur, les conditions opératoires, et en aval pour capitaliser tout le travail de développement dans un guide de procédé.

Les études procédés en amont ont requis une grande quantité d'investigations portant, d'une part sur le développement de catalyseur (sélection et optimisation des performances de catalyseur de type Cobalt sur support alumine), et d'autre part sur l'extrapolation de réacteur de type colonnes à bulles avec catalyseur en suspension (*slurry bubble column*) en utilisant une combinaison d'outils expérimentaux complémentaires (de type colonnes à bulles de différentes dimensions pour étudier l'hydrodynamique des écoulements). Une approche originale a été mise en place par *ENI* et *IFPEN* pour valider le procédé et le catalyseur à l'échelle industrielle, en combinant (i) les résultats obtenus d'une part avec un pilote de capacité 20 barils/jour sis sur le site de la raffinerie *ENI* de Sannazzaro en Italie pour valider les performances du catalyseur dans des conditions réelles d'écoulement avec catalyseur en suspension et à long terme, et pour valider les différentes technologies de séparation liquide/solide et de manipulation du catalyseur en suspension, (ii) les résultats obtenus d'autre part avec un réacteur autoclave de grande dimension (LVT, *Large Validation Tool*) de type réacteur continu parfaitement agité pour quantifier la formation de fines sur le catalyseur à l'échelle industrielle (capacités jusqu'à 15000 barils/jour) et pour reproduire l'effet combiné des réactions chimiques et des contraintes de cisaillement exercées sur le catalyseur dans des conditions industrielles de fonctionnement dans des réacteurs de grande dimension, avec (iii) les résultats obtenus dans des maquettes froides de type colonnes à bulles de capacité 20 à 1000 barils/jour sis sur le site de l'*IFPEN* Lyon pour étudier l'hydrodynamique des écoulements (phénomènes de mélange et effets des internes).

L'article présente les techniques analytiques sophistiquées dédiées qui ont été développées (allant de la Chromatographie Gazeuse (GC) basse résolution jusqu'à la très puissante Chromatographie Gazeuse 2D (GC×GC)) pour quantifier avec précision la composition des charges introduites et des produits et pour démontrer les spécifications de produits qui peuvent être obtenues. L'article présente également le modèle complexe dédié, intégrant l'ensemble des phénomènes couplés, qui a été développé pour simuler l'ensemble du procédé (section réactionnelle et section de séparation) afin de prédire et d'optimiser les performances à l'échelle industrielle, *i.e.*, pour garantir l'extrapolation du procédé de façon robuste et fiable.

Il est important de préciser que l'ensemble de ces outils s'est avéré efficace pour développer à l'échelle industrielle le catalyseur d'un procédé Fischer-Tropsch et aussi pour prédire de façon représentative la formation des fines, l'activité et la sélectivité de catalyseur améliorés et pour l'optimisation des conditions opératoires pour augmenter les capacités dans la section de séparation.

Le dernier article « *Une revue de méthodes de modélisation cinétique pour des procédés complexes* » par **L. Pereira de Oliveira, D. Hudebine, D. Guillaume et J.J. Verstraete** [6], présente une vue d'ensemble des techniques de modélisation de cinétique chimique pour des procédés complexes mettant en œuvre des centaines ou des milliers de composants et de réactions intermédiaires.

Après un bref, mais exhaustif, état de l'art historique sur le développement des connaissances portant sur la cinétique chimique, un aperçu des bases théoriques de la modélisation cinétique d'étapes élémentaires et de réaction globale est présenté. Il comporte deux approches de modélisation : une modélisation de la cinétique chimique détaillée dans laquelle le détail moléculaire est retenu à l'échelle des molécules ou des réactions intermédiaires et une modélisation de la cinétique chimique dans laquelle la complexité chimique est réduite par regroupement des composants chimiques de propriétés semblables ou de nombres de carbone identiques en familles (*lumps*) et par regroupement des réactions individuelles entre ces familles. Dans ce dernier cas une approche de type champ-moyen couplée avec une approximation de l'étape limitante des réactions est utilisée. Pour illustrer cette approche deux exemples de modèles de cinétiques regroupées sont présentés qui concernent des développements de procédés par l'*IFP Energies nouvelles* entre 1995 et 2005 : il s'agit de l'hydrotraitement de gazole atmosphérique et l'hydrotraitement de résidus.

Ensuite une grande partie de l'article décrit les approches de modélisations cinétiques avancées dans lesquelles le détail moléculaire est retenu i.e. les relations entre les molécules sont représentées ou même subdivisées en étapes élémentaires. Pour être en mesure de conserver ce niveau d'étude à l'échelle de la molécule à la fois dans le modèle cinétique et dans les simulations de réacteur, trois obstacles doivent être éliminés: (i) la charge doit être décrite en termes de molécules, (ii) les grands réseaux réactionnels doivent être générés automatiquement et (iii) un grand nombre de vitesses de réaction et leurs paramètres cinétiques associés doivent être dérivés. Pour faire face à ces trois obstacles, (i) des techniques de reconstruction moléculaire ont été utilisées quand les techniques analytiques plus avancées ne permettaient pas une description détaillée des charges, (ii) des réseaux déterministes ou stochastiques de grande dimension ont été générés, et (iii) des modèles microcinétiques basés sur des événements consécutifs (*single events*) et/ou des relations linéaires d'énergie libre ont été utilisés par les équipes de recherche de l'*IFP Energies nouvelles*. Elles sont illustrées par la présentation de plusieurs exemples de modélisation cinétique réussie pour des procédés de raffinage industriels qui concernent l'oligomérisation d'oléfines légères ou bien l'hydrotraitement et l'hydroconversion de coupes pétrolières, comme l'hydrotraitement des coupes légères ou l'hydroconversion des résidus sous vide.

Avec les méthodologies de développement de procédés complexes et les exemples proposés dans cet article de synthèse, il apparaît clairement qu'il semble aujourd'hui possible d'acquérir une description fine et de plus en plus fondamentale des processus complexes à l'aide de techniques avancées pour accéder à la composition des charges et aux modélisations des cinétiques chimiques et du réacteur.

Ce numéro spécial d'OGST fournit au lecteur un ensemble unique et détaillé de contributions circonstanciées, précieuses et complémentaires qui illustrent les différents aspects de méthodologies de développement de procédés envisagées à l'*IFP Energies nouvelles* pour la mise au point de procédés et technologies innovants et durables. Et il faut souligner que les approches présentées dans les articles caractérisent la philosophie actuelle pour le développement du génie des procédés qui portent sur le concept « d'intensification des procédés » et ce, par une intensification des processus à toutes les échelles du développement, depuis celles des processus moléculaires jusqu'à celles à l'échelle du réacteur et de ses internes.

J'ai le plaisir de conclure cet éditorial en adressant à l'éminent Dr Jean-François Joly un grand merci pour avoir minutieusement coordonné la collecte de ces contributions scientifiques et technologiques dans un ouvrage qui restera certainement un ouvrage de référence sur la problématique générale concernant les méthodologies de développement de procédés et même plus généralement concernant l'intensification des procédés dans le domaine du raffinage pétrolier et gazier.

RÉFÉRENCES

- 1 Magné-Drisch J., Gazarian J., Gonnard S., Schweitzer J.-M., Chiche D., Laborie G., Perdu G. (2016) COSWEETTM: A New Process to Reach Very High COS Specification on Natural Gas Treatment Combined with Selective H₂S Removal, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 40.
- 2 Avenier P., Bazer-Bachi D., Bazer-Bachi F., Chizallet C., Deleau F., Diehl F., Gornay J., Lemaire É., Moizan-Basle V., Plais C., Raybaud P., Richard F., Lacombe S. (2016) Catalytic Reforming: Methodology and Process Development for a Constant Optimisation and Performance Enhancement, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 41.
- 3 Raynal L., Augier F., Bazer-Bachi F., Haroun Y., Pereira da Fonte C. (2015) CFD Applied to Process Development in the Oil and Gas Industry – A Review, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 42.
- 4 Haroun Y., Raynal L. (2015) Use of Computational Fluid Dynamics for Absorption Packed Column Design, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 43.
- 5 Boyer C., Gazarian J., Lecocq V., Maury S., Forret A., Schweitzer J.M., Souchon V. (2016) Development of the Fischer-Tropsch Process: From the Reaction Concept to the Process Book, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 44.
- 6 Pereira de Oliveira L., Hudebine D., Guillaume D., Verstraete J.J. (2016) A Review of Kinetic Modeling Methodologies for Complex Processes, *Oil Gas Sci. Technol.* **71**, 45.