



HAL
open science

Conception, analyse exergetique et optimisation des cycles à mélange de réfrigérants : Application à la liquéfaction du bio-méthane

Imane Oudghiri Yousfi

► **To cite this version:**

Imane Oudghiri Yousfi. Conception, analyse exergetique et optimisation des cycles à mélange de réfrigérants : Application à la liquéfaction du bio-méthane. Génie des procédés. Université Paris sciences et lettres, 2018. Français. NNT : 2018PSLEM037 . tel-02950825

HAL Id: tel-02950825

<https://pastel.hal.science/tel-02950825>

Submitted on 28 Sep 2020

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

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

THÈSE DE DOCTORAT

de l'Université de recherche Paris Sciences et Lettres
PSL Research University

Préparée à MINES ParisTech

Conception, analyse exergétique et optimisation des cycles à
mélange de réfrigérants : Application à la liquéfaction du bio-méthane

Ecole doctorale n°432

Sciences des Métiers de l'ingénieur

Spécialité Energétique et Procédés

COMPOSITION DU JURY :

M. LEMORT Vincent
Université de Liège, Président

M. LATIFI Abderrazak
Université de Lorraine ENSIC, Rapporteur

M. PASSARELLO Jean-Philippe
Université Paris 13, Rapporteur

Mme. MABILLE Isabelle
Sorbonne Université, Examineur

M. BOUALLOU Chakib
MINES ParisTech, Examineur

M. RIVERA-TINOCO Rodrigo
MINES ParisTech, Examineur

**Soutenue par Imane OUDGHIRI YOUSFI
le 10 Octobre 2018**

**Dirigée par Chakib BOUALLOU
Co-encadrée par Rodrigo RIVERA
TINOCO**

Remerciements

Faire une thèse est pour moi une grande responsabilité et j'avais peur de l'assumer. Mon entourage m'a aidé à franchir le pas et à réussir chaque étape de ce long parcours rempli d'obstacles et d'émotions. Si j'avais la possibilité de consacrer à chaque personne m'ayant aidé de près ou de loin une page de mon manuscrit, je l'aurais fait à cœur ouvert. Je m'astreins à ces quelques mots, exprimant mes remerciements sincères et ma reconnaissance profonde.

Tout d'abord, je souhaite remercier le directeur du CES **Maroun Nemer** de m'avoir fait confiance et proposer le sujet de cette thèse. Je remercie **Chakib Bouallou** de l'avoir dirigée et les **membres de jury** d'avoir accepté à l'évaluer sans hésitation.

Je remercie **mes collègues au CES** pour l'ambiance conviviale qui règne au sein du centre et qui m'a permis de passer quatre années agréables et enrichissantes.

Je remercie profondément l'équipe administrative (les mamans du CES), **Isabelle, Rocio et Marie-Astrid** pour leur disponibilité, serviabilité et amabilité. Merci de m'avoir aidé autant que doctorante et surtout autant que jeune maman.

À mes chères amies, **Gisèle, Rachelle et Christelle**. Merci d'avoir embelli mon quotidien et de m'avoir donné l'espoir pour aller de l'avant.

À **Rodrigo**, mon maître de thèse. Mes mots ne pourront te remercier assez pour tout ce que tu m'as apporté professionnellement et personnellement durant ces années. Merci pour ton soutien, ta bienveillance et pour ta confiance. Merci pour ton dévouement et ton professionnalisme. Merci de m'avoir facilité la tâche autant que doctorante et maman. Je te suis sincèrement très reconnaissante.

À **mes parents**, pour tous les sacrifices consentis pour veiller sur mon bien. Que ce travail soit pour vous le témoignage de ma reconnaissance infinie, de mon attachement et de mon respect.

À mes chers frères **Youssef, Soufiane et Meriame**. Merci pour votre confiance qui accentue ma volonté à donner toujours le meilleur de moi-même.

À mon petit garçon, **Ilyes**, pour l'instant de bonheur qu'il m'offre à chaque fois que je suis avec lui.

À **mon bébé**, qui n'a pas encore vu le jour, désolée pour le stress que tu as dû encaisser durant toute cette période.

Très tendre pensée à **mon Mari Younes**, pour son apport quotidien, sa présence rassurante, ses encouragements et sa bienveillance.

There are only two ways to live your life. One is a though nothing is a miracle. The other is a though everything is a miracle.

Albert Einstein

Sommaire

Liste des figures	9
Liste des tableaux	12
Nomenclature.....	14
Introduction générale.....	17
Chapitre 1 - Etat de l'art : Production du biogaz, procédés de liquéfaction de méthane et leurs méthodes d'optimisation	21
1. Contexte général	23
1.1. Énergies fossiles : un choix inévitable ?	23
1.2. Le gaz naturel, un premier pas vers la transition énergétique	24
1.3. Le biogaz, comme substituant du gaz naturel	25
A. Production du biogaz	25
B. Composition du biogaz	26
C. Valorisation du biogaz	26
D. Du biogaz au biométhane	27
E. Contexte et enjeux du biométhane liquéfié.....	30
2. Procédés de liquéfaction	32
2.1. Classification des procédés de liquéfaction du gaz naturel.....	32
A. Les cycles en cascade à réfrigérants purs	33
B. Les cycles à mélange de réfrigérants	34
C. Cascade à mélange de réfrigérants	38
D. Procédés à cycle d'expansion de gaz.....	39
2.2. Description des procédés de liquéfaction du biométhane et du gaz naturel.....	40
3. Méthodes d'analyse des procédés de liquéfaction et méthodes numériques d'optimisation	42
3.1. Méthodes d'analyse des performances des procédés	42
A. Méthode de pincement	43
B. Analyse exergétique	43
3.2. Méthodes d'optimisation numérique des procédés de liquéfaction du gaz naturel.....	46
Conclusion.....	52
Chapitre 2 - Simulation, analyse exergétique et optimisation de cycles à mélange de réfrigérants adaptés à la micro-liquéfaction	55
1. Simulation et optimisation de différentes architectures de cycle à mélange de réfrigérant inflammables.....	57
2. Cycle à mélange de réfrigérants inflammable	58
2.1. Description du procédé.....	58

2.2. Base thermodynamique et modèle thermodynamique	59
2.3. Analyse exergetique	59
2.3.1. Calcul de la destruction d'exergie	59
2.3.2. Calcul du COP et du rendement exergetique	62
2.4. Optimisation de la première architecture	62
2.4.1. Définition de la fonction objectif	62
2.4.2. Contraintes et variables de décision	63
2.4.3. Choix des variables de décision	64
2.4.4. Processus d'optimisation.....	64
2.4.5. Résultats de l'optimisation	66
2.5. Description et optimisation de la deuxième architecture	68
2.5.1. Description et évaluation des performances de la deuxième architecture.....	68
2.5.2. Calcul du COP et de destruction d'exergie	68
A. Calcul du COP.....	68
B. Calcul de la destruction d'exergie	69
2.5.3. Optimisation de la deuxième architecture	71
2.6. Description et optimisation de la troisième architecture	72
2.7. Evaluation des performances des liquéfacteurs hybrides Cascade-Stirling	74
2.8. Etude d'impact de la pression du biométhane sur les différentes architectures	75
2.9. Etude de l'impact de la compression du biométhane	79
3. Cycle à mélange de réfrigérants non inflammable.....	80
3.1. Critères de sélection des corps purs	81
3.1.1. Critères d'usage.....	82
3.1.2. Critères de sécurité	82
3.1.3. Critères environnementaux.....	84
3.1.4 Conclusion.....	85
3.2. Résultats de la simulation de l'architecture 1 et 3 avec le mélange de réfrigérant non-inflammables	85
3.2.1. Performances énergétiques de l'architecture 1.....	85
3.2.2. Comparaison des deux architectures avec mélange inflammable et non inflammable.....	86
Conclusion.....	86
Chapitre 3 - Simulation des régimes à charge partielle et transitoires du cycle à mélange de réfrigérants non inflammables	89

Introduction	91
1. Simulation en charge partielle du cycle à mélange de réfrigérants non inflammables	91
2. Simulation dynamique du cycle à mélange de réfrigérant non inflammable	93
2.1. Revue bibliographique	93
2.2. Simulation à l'aide de Aspen HYSYS Dynamics	96
2.2.1. Simulation des composants	96
2.2.1. Dimensionnement et définition des frontières du système.....	100
Conclusion.....	109
Chapitre 4 - Conception, réalisation du banc d'essai et étude technico-économique	111
Introduction	113
1. Caractéristiques des composants du cycle à mélange de réfrigérant.....	113
1.1. Le bloc compresseur.....	113
1.2. Le bloc cycle à mélange de réfrigérant	116
1.3. Dimensionnement SWEP des échangeurs.....	117
1.3.1. Principe des échangeurs à plaque.....	117
1.4. Le bloc échangeurs de liquéfaction biométhane	120
1.4.1. Dimensionnement SWEP des deux échangeurs LNG-103 et LNG-104.....	121
1.5. Stockage du biométhane (centrale de transfert)	123
2. Instrumentation et acquisition des données	123
2.1. Capteurs de température.....	123
2.2. Transmetteurs de pression	124
2.3. Débitmètres	124
2.4. Mesures de sécurité	125
2.5. Assemblage	125
2.6. Contrôle de l'étanchéité du circuit	125
2.7. Zonage ATEX	125
2.7.1. Calcul du débit de ventilation.....	126
2.7.2. Quadrillage de la zone de ventilation	127
3. Etude technico-économique du cycle	128
3.1. Le coût des utilités.....	128
3.2. Matière première et matière obtenue.....	129
3.3. Taux d'actualisation	129
3.4. Comparaison avec l'architecture hybride.....	131
3.5. Analyse de sensibilité paramétrique.....	133

3.5.1. Influence du prix de l'électricité et de la durée de vie	133
3.5.2. Influence du taux d'actualisation	135
3.4. Conclusion.....	136
Conclusion et perspectives	137
Références	141
ANNEXES	149
ANNEXE 1	149
1.1. Modèles thermodynamiques	149
1.2. Propriétés thermodynamiques des fluides	150
ANNEXE 2	152
2.1. Résultats de la simulation des différentes architectures à différentes pressions	152
ANNEXE 3	154
3.1. Impression d'écran : Excel PIKAIA.....	154
ANNEXE 4	155
4.1. PID bloc compresseur	155
4.2. PID échangeurs cascade.....	156

Liste des figures

- Figure 1 : Emission mondiale de CO₂ par source d'énergie fossile (à droite) et consommation mondiale d'énergie (à gauche).
- Figure 2 : Consommation des énergies primaires mondiales par source d'énergie fossile (Slim, 2016).
- Figure 3 : Emissions annuelles de CO₂ d'origine fossile en millions de tonnes (CDIAC, 2017).
- Figure 4 : Représentation schématique du processus biochimique de la méthanisation (Escudie et Cresson, 2017).
- Figure 5 : Chaîne de valorisation du biogaz (Verdesis, 2012).
- Figure 6 : Procédés de traitement du biogaz spécifique à chaque opération (Angelidaki et al., 2018).
- Figure 7 : Diagramme de phase du mélange binaire CH₄-CO₂ (Lin et al., 2015).
- Figure 8 : Puissance thermique vs. Température d'un cycle en cascade à réfrigérants purs pour la liquéfaction du gaz naturel (Kanoglu, 2002).
- Figure 9 : Schéma représentatif du cycle Technip/Air liquide de liquéfaction du gaz naturel (Wood et Mokhatab, 2009).
- Figure 10 : Schéma représentatif du cycle Conoco Phillips de liquéfaction du gaz naturel (ConocoPhillips, 2018).
- Figure 11 : Puissance thermique vs. Température d'un cycle à mélange de réfrigérants.
- Figure 12 : Schéma représentatif du cycle PRICO de liquéfaction du gaz naturel (Lim et al., 2014).
- Figure 13: Puissance thermique vs. Température du procédé C3/MR et la liquéfaction du gaz naturel.
- Figure 14 : Schéma représentatif du procédé IFP/Axens de liquéfaction du gaz naturel (Lim et Choi, 2012).
- Figure 15 : Schéma représentatif de la cascade Linde/Statoil de liquéfaction du gaz naturel (Vatani et al., 2014).
- Figure 16 : Schéma représentatif d'un cycle à simple étage de détente de liquéfaction du gaz naturel (à droite) et à double étage de détente (à gauche) (Brèthes et Blanchard, 2014).
- Figure 17 : Volume de contrôle général.
- Figure 18 : Codage binaire d'un individu.
- Figure 19 : Croisement du génotype de deux individus (Collette et Siarry, 2002).
- Figure 20 : Différentes étapes de l'algorithme génétique.
- Figure 21 : Capacité de liquéfaction en tonne par jour en fonction de l'échelle de l'unité (Brèthes et Blanchard, 2012).
- Figure 22 : Comparaison qualitative de l'efficacité et la capacité des cycles à expansion de gaz et des cycles à mélange de réfrigérant (Mokhatab et al., 2014).
- Figure 23 : Diagramme T-H du méthane.
- Figure 24 : Schéma représentatif de la première architecture de liquéfaction du biométhane (ASPEN HYSYS).
- Figure 25 : Répartitions de la destruction d'exergie de la première architecture.
- Figure 26 : Courbes composites relatives aux échangeurs LNG-101 et LNG-102.
- Figure 27 : Processus de connexion entre Excel, PIKAIA et VBA.

Figure 28 : Comparaison de la distribution de la destruction d'exergie entre le cycle de base et le cycle optimisé.

Figure 29 : Courbe composite de l'échangeur LNG-101 avant optimisation (à gauche), et après optimisation (à droite).

Figure 30 : Courbe composite de l'échangeur LNG-102 avant optimisation (à gauche), et après optimisation (à droite).

Figure 31 : Répartitions de la destruction d'exergie pour la deuxième architecture proposée pour la liquéfaction du biométhane.

Figure 33 : Courbe composite de l'échangeur LNG-101.

Figure 32 : Schéma représentatif de la deuxième architecture de liquéfaction du biométhane (Aspen HYSYS).

Figure 34 : Comparaison de la courbe composite avant optimisation (à droite), et après optimisation (à gauche) de l'échangeur LNG-101.

Figure 35 : Variables nécessaires pour le calcul de la puissance électrique.

Figure 36 : Les étapes de calcul de la puissance électrique utile pour la liquéfaction du flux de biométhane pré-refroidi.

Figure 37 : Schéma représentatif de l'architecture 1 combinée au groupe froid (Machine de Stirling).

Figure 38 : Cartographie de la destruction d'exergie des deux cycles.

Figure 39 : Diagramme TH du méthane.

Figure 40 : Courbes composites méthane/mélange de réfrigérant de l'échangeur LNG-104 de l'architecture 1 et 2 à 17, 10 et 5 bar.

Figure 41 : Consommation des différentes architectures en kWh/kg de biométhane liquéfié à gauche, et variation du COP à droite, en fonction de la pression.

Figure 42 : Modification apportée à l'architecture 1 optimisée.

Figure 43 : Classification des réfrigérants selon les critères de sécurité.

Figure 44 : Variation de la pression de décharge (a), la puissance requise au niveau du compresseur (b) et l'énergie spécifique de consommation (c) à charge réduite.

Figure 45 : Bloc diagramme illustrant la méthode de décomposition de Lee et al.,(2016).

Figure 46 : Recommandations d'HYSYS pour la simulation dynamique.

Figure 47 : La méthodologie adoptée pour la simulation dynamique du cycle à mélange de réfrigérants non inflammable.

Figure 48 : Agencement des flux dans un échangeur de chaleur à plaques.

Figure 49 : Configuration des échangeurs de chaleur sur Aspen HYSYS DYNAMICS.

Figure 50 : Configuration de la vanne sur Aspen HYSYS DYNAMICS.

Figure 51 : Schématisation de la méthodologie adoptée pour la simulation dynamique du cycle.

Figure 52 : Schéma de procédé du cycle avec l'implémentation des composants de contrôle.

Figure 53 : Profil de la température T1 en fonction du temps et comparaison avec la consigne du régime statique.

Figure 54 : Profil de la température T2 en fonction du temps et comparaison avec la consigne du régime statique.

Figure 55 : Profil de la température T₃ en fonction du temps et comparaison avec la consigne du régime statique.

Figure 56 : Variation de la fraction liquide/vapeur du flux trois en fonction du temps.

Figure 57 : Variation du débit molaire du flux CUMR alimentant le bloc biométhane.

Figure 58 : Variation débit CUMR et BM à injecter en fonction du temps.

Figure 59 : Variation de la puissance fournie au compresseur en fonction du temps.

Figure 60 : Variation de l'énergie spécifique en fonction du temps.

Figure 61 : Vue d'ensemble du block compresseur.

Figure 62 : Schéma en 3D des différents blocs du cycle à mélange de réfrigérant pour la liquéfaction du biométhane.

Figure 63 : Bouteille anti-coup liquide (a) et séparateur d'huile (b).

Figure 64 : Schéma 3D du bloc cycle à mélange de réfrigérant.

Figure 65 : Configuration des échangeurs

Figure 66 : Echangeur à plaques SWEP.

Figure 67 : Vue d'ensemble du bloc cycle à mélange de réfrigérant et noms des échangeurs.

Figure 68 : Vue d'ensemble du bloc de liquéfaction du biométhane.

Figure 69 : Vue d'ensemble du bloc assurant le stockage de biométhane.

Figure 70 : Sonde de température (a), compresseur ATEX (b), débitmètre côté cascade (c), débitmètre côté méthane (d).

Figure 71 : Schéma 3D du banc d'essai, affichant les zones ATEX.

Figure 72 : Implantation des entrées d'air neuf par plancher de la cascade.

Figure 73 : CAPEX et OPEX (non actualisés) en milliers d'euros au fil de la durée de vie de l'unité de liquéfaction du biométhane.

Figure 74 : CAPEX des équipements de l'unité de liquéfaction.

Figure 75 : Comparaison entre le CAPEX et OPEX en milliers d'euros des deux configurations.

Figure 76 : Ventilation des coûts de l'unité de liquéfaction entre CAPEX, OPEX et le CAPEX de remplacement des équipements de l'architecture 1 (à gauche) et l'architecture hybride (à droite).

Figure 77 : Ventilation de l'APEX, OPEX et CAPEX de remplacement en fonction de la variation du prix du kWh électrique.

Figure 78 : Variation du CAPEX et OPEX de l'architecture 1 en fonction de l'exploitation annuelle (h).

Figure 79 : Variation du CTA des deux unités en fonction du temps d'opérabilité annuel de l'unité.

Figure 80 : Variation du CTA des deux unités en fonction du taux d'actualisation.

Figure A.81 : Choix du modèle thermodynamique

Figure 82 : PID du bloc compresseur

Figure 83 : PID du bloc échangeurs cascade

Liste des tableaux

- Tableau 1 : Composition du biogaz selon le type du substrat (Rivera-Tinoco, 2012).
- Tableau 2 : Qualité du biométhane conforme aux spécifications du réseau (ATEE, 2013).
- Tableau 3 : Calcul des destructions d'exergie par équipement.
- Tableau 4 : Méthodes d'optimisation déterministes (Austbo et al, 2014).
- Tableau 5 : Travaux sur l'optimisation déterministe des procédés de liquéfaction du gaz naturel.
- Tableau 6 : Synthèse des travaux d'optimisation stochastique des procédés de liquéfaction du gaz naturel (Austbo, et al., 2014).
- Tableau 7 : Fonction objectif utilisée dans les procédés de liquéfaction.
- Tableau 8 : Variables à optimiser et intervalles considérés.
- Tableau 9 : Comparaison des conditions opératoires et consommations d'énergie avant et après optimisation.
- Tableau 10 : Conditions opératoires considérées dans l'évaluation de l'architecture 2.
- Tableau 11 : Calcul du COP.
- Tableau 12 : Comparaison entre les valeurs de base et les valeurs optimisées des conditions opératoires.
- Tableau 13 : Comparaison des performances du procédé par l'« architecture 2 ».
- Tableau 14 : Performances du cycle Stirling.
- Tableau 15 : Performances des cycles hybrides.
- Tableau 16 : Résultats du calcul de la destruction d'exergie par composant et pour l'«architecture 1 + Stirling» (Cycle 1) » et l'«architecture 2 + Stirling» (Cycle 2) ».
- Tableau 17 : Comparaison des performances des architectures.
- Tableau 18 : Impact de la variation de la pression du biométhane sur les performances de l'architecture 1 optimisée.
- Tableau 19 : Impact de la variation de la pression du biométhane sur le 1^{er} cycle combiné.
- Tableau 20 : Impact de la variation de la pression du biométhane sur le 1^{er} cycle hybride à débit de biométhane forcé.
- Tableau 21 : Etude de l'impact d'une étape de compression du biométhane sur les performances de l'architecture 1 optimisée.
- Tableau 22 : Réfrigérants alternatifs possibles du méthane.
- Tableau 23 : Réfrigérants alternatifs possibles de l'éthylène et du propylène.
- Tableau 24 : Réfrigérants alternatifs possibles de l'isobutane.
- Tableau 25 : Sélection des réfrigérants alternatifs par le critère d'usage.
- Tableau 26 : Sélection des réfrigérants alternatifs par leur GWP.
- Tableau 27 : Point triple des réfrigérants sélectionnés.
- Tableau 28 : Performances de l'architecture 1 avec mélange de réfrigérant non inflammable.
- Tableau 29 : Performances de l'architecture 3 avec mélange de réfrigérant non inflammable.
- Tableau 30 : Comparaison de l'architecture 1 avec mélange inflammable et non inflammable.
- Tableau 31 : Résultats de la simulation en charge partielle du cycle à mélange de réfrigérant non inflammable.
- Tableau 32 : Dimensions des échangeurs
- Tableau 33 : Dimensions des vannes

Tableau 34 : Dimensions des Séparateurs Flash

Tableau 35 : Paramètres de réglage des différents contrôles.

Tableau 36 : Comparaison entre les résultats de la simulation statique et ceux de la dynamique.

Tableau 37 : Composition des réfrigérants.

Tableau 38 : Spécifications opératoires.

Tableau 39 : Dimensions de l'échangeur Réfrigérants/eau.

Tableau 40 : Propriétés physiques de la phase vapeur du flux chaud dans l'échangeur Réfrigérants/eau.

Tableau 41 : Résultats de simulation SWEP de l'échangeur réfrigérant /eau.

Tableau 42 : Propriétés physiques de la phase vapeur du côté froid de l'échangeur LNG-100.

Tableau 43 : Résultats de simulation SWEP de l'échangeur LNG-100.

Tableau 44 : Propriétés physiques de la phase vapeur du côté froid de l'échangeur LNG-101.

Tableau 45 : Résultats de simulation SWEP de l'échangeur LNG-101.

Tableau 46 : Propriétés physiques de la phase vapeur du côté froid l'échangeur LNG-102.

Tableau 47 : Résultats de simulation de l'échangeur LNG-102 établis par SWEP.

Tableau 48 : Propriétés physiques de la phase vapeur du côté froid du fluide de l'échangeur LNG-103.

Tableau 49 : Résultats de simulation de l'échangeur LNG-103 fournis par SWEP.

Tableau 50 : Propriétés physiques du côté froid du fluide de l'échangeur LNG-104.

Tableau 51 : Résultats de simulation de l'échangeur LNG-104 fournis par SWEP.

Tableau 52 : Calcul du taux de renouvellement d'air et du débit de ventilation minimal.

Tableau 53 : Valeurs du CAPEX, OPEX, durée de vie et puissance requises des différents composants de l'unité de liquéfaction du biométhane.

Tableau 54 : Valeurs du CAPEX, OPEX à intégrer dans le calcul du CTA.

Tableau 55 : Impact de la variation de la pression du bio-méthane sur les performances de l'architecture 1 optimisée

Tableau 56 : Impact de la variation de la pression du bio-méthane sur les performances de l'architecture 2 optimisée

Nomenclature

Lettres latines

A_i	Fraction molaire	% molaire
C	Taux de renouvellement	%
C_{capex}	Coût d'investissement	€
C_{opex}	Coût opératoire	€
CTA	Coût total actualisé	€/kg méthane liquide
COP	Coefficient de performance	-
Ex	Exergie	kW
F	Débit massique	kg/h
F_i	Débit molaire	kmol/h
HP	Haute pression	Bar
BP	Basse pression	Bar
k	Coefficient de résistance	$(\text{kg/h})/(\text{kg.KPa/m}^3)^{1/2}$
kc	Gain proportionnel	
L	Longueur	Mm
M_i	Masse molaire	g.mol^{-1}
LFL	Limite inférieure d'inflammabilité	% mol
Q	Quantité de chaleur échangée entre deux flux	kW
U	Coefficient d'échange	$\text{kJ.m}^{-2}.\text{°C}^{-1}.\text{h}^{-1}$
W	Travail	kW
h	Enthalpie spécifique	kJ.kg^{-1}
S	Entropie spécifique	$\text{kJ.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$
T	Température	K
T_b	Température d'ébullition	K
T_K	Température de condensation	K
T_{SF}	Température source froide	K
T_{SC}	Température source chaude	K
T_{SFM}	Température entropique moyenne	K
T_r	Température réduite	K
T_c	Température critique	K
ΔH	Différence d'enthalpie	kJ.kg^{-1}
ΔS	Différence entropique	$\text{kJ.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$
ΔP	Pertes de charge	kPa
W	Épaisseur	mm

Lettres grecques

ρ	Densité	kg/m^3
η_{ex}	Rendement exergetique	%
τ	Taux d'actualisation	%
τ_i	Constante intégrale de temps	Min
τ_d	Constante dérivative de temps	Min

Acronymes

BM	Biométhane
eia	Energy information administration
CDIAC	Carbon Dioxide information Analysis Center
C3MR	Propane pre-cooled mixed refrigerant
CMR	Compressed mixed refrigerant
CUMR	Cold utility mixed refrigerant
DMR	Dual Mixed Refrigerant
GIEC	Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution de climat
KBO	knowledge based optimization
LNG	Liquified natural gaz
LBG	Liquified biogas
MR	Mixed refrigerant
MINLP	Programmation non linéaire mixte
NLP	Programmation non linéaire
PDO	Potentiel de Déplétion Ozonique
PRG	Potentiel de réchauffement global
PMR	Pre-cooled mixed refrigerant
PBM	Pre-cooled biomethane
RMR	Recycled mixed refrigerant
SDES	Service de la donnée et des études statistiques
SMR	Single mixed refrigerant
SQP	Programmation séquentielle quadratique
STEP	Station d'épuration d'eaux

Indices

0	Référence
e	entrée
s	sortie
min	minimal
act	actuel

Introduction générale

Le mode et le rythme intensif de consommation des énergies fossiles, l'épuisement des réserves existantes et les émissions de gaz à effets de serre résultantes de la combustion de ces énergies (Figure 1) engendrent un dérèglement climatique du globe. Pour faire face et limiter ce dérèglement, l'utilisation des sources alternatives et durables d'énergie est nécessaire, par exemple, la solaire, l'éolien, l'hydraulique et le biogaz. Un intérêt particulier existe pour l'utilisation du biogaz, car son épuration conduit à du méthane qui peut par la suite être transporté dans les infrastructures existantes de gaz naturel.

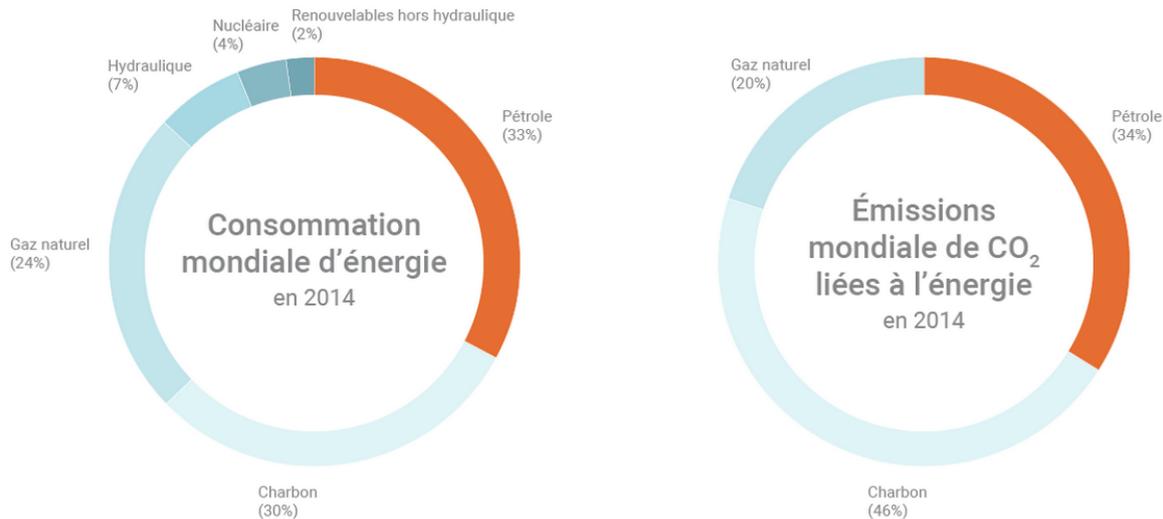


Figure 1 : Emission mondiale de CO₂ par source d'énergie fossile (à droite) et consommation mondiale d'énergie (à gauche).

L'exploitation du biogaz a l'avantage de favoriser les circuits énergétiques courts (e.g. fermes – villes), à moindres émissions par rapport à l'utilisation des hydrocarbures lourds et de charbon, et valorisable dans des unités de puissances très variées (cogénération, moteurs-générateur, chaudières, centrales). Parmi les voies de valorisation, celle la plus simple est son utilisation comme combustible dans une chaudière pour la production de la chaleur ou dans une unité de cogénération pour la production de l'électricité, car hormis l'élimination de l'eau et des composés nocifs (COV et soufrés), aucun prétraitement contraignant n'est requis. Une autre possibilité est de l'utiliser comme substituant du gaz naturel et de l'injecter dans le réseau du gaz naturel. Dans ce cas le méthane est la seule fraction aujourd'hui valorisable, et on parle de biométhane. Le CO₂ et les autres impuretés contenues dans le biogaz doivent être éliminés.

La production du biogaz continue de progresser dans l'Union Européenne. Durant l'année 2016, 16 millions de tonnes équivalent pétrole (Mtep) d'énergie primaire biogaz ont été produites (soit une croissance de 31% par rapport à l'année 2012) (Eurobserv'ER, 2017). D'après EurObserv'ER, le nombre d'unités de biométhane raccordé au réseau du gaz naturel est d'au moins 240 unités en 2016 (9,4TWh). L'Allemagne est le pays le plus impliqué dans la production du biométhane avec 201 unités. En France, la filière biométhane se développe rapidement. Fin septembre 2016, 29 unités ont été mises en service (215 GWh), et 227 projets

étaient en cours de développement (Eurobserv'ER, 2017). Selon les dernières statistiques, ce chiffre devrait être amené à augmenter. Selon le tableau de bord du SDES, la France comptait 35 installations injectant du biométhane, fin juin 2017 avec une capacité s'élevant à 533 GWh/an, (soit 30% de progression par rapport à 2016). Les objectifs fixés en 2018 pour l'injection du biométhane sont actuellement de 1,7 TWh).

Pour les producteurs de biométhane de grande de taille (>500 Nm³/h de biogaz) et à proximité de l'infrastructure gazière, l'injection ne représente aucun obstacle ni difficulté autre que les démarches nécessaires à la mise en place de la station d'injection auprès de GrDF (CEGIBAT, 2017). Pour les autres sites à distance des gazoducs, la logistique pour injecter le gaz devient une contrainte. Outre la compression du biométhane et son transport sous pression, une autre solution potentielle est de liquéfier le biométhane. En effet en liquéfiant le biométhane ou bioGNL, son volume est divisé par 600 par rapport à son état gazeux. Il devient ainsi facilement transportable et stockable : les sites de production auraient la possibilité d'envoyer leur biométhane pour son injection au réseau ou de le stocker en cas de baisse saisonnière de consommation. Autres avantages décisifs, la liquéfaction permettrait de pallier l'absence du réseau du gaz naturel à proximité du site et accorderait au projet non raccordable au réseau la possibilité de voir le jour. Le biométhane liquéfié ou bioGNL est également un carburant renouvelable, substituant du diesel pour alimenter les poids lourds et les bateaux (ATEE, 2013). La liquéfaction peut se faire dans des unités à petite échelle (débit inférieur à 500 tonnes par jour ou 107 Nm³/h de biométhane). Les procédés à utiliser doivent par conséquent être assez simples, compacts et à un coût d'investissement faible.

La thèse s'inscrit dans cette logique de liquéfaction de biométhane mais à partir d'une échelle encore plus petite (micro-échelle, le débit est inférieur à 15 Nm³/h de biométhane) le but étant de permettre aux petites exploitations agricoles de produire leur propre GNL et de le transporter vers les stations d'injection. L'objectif principal est de développer un cycle thermodynamique de réfrigération peu énergivore et éventuellement non-inflammable pour la liquéfaction du biométhane. Dans le cadre de cette thèse, on considère que le biogaz est déjà traité (élimination de CO₂ et mise en spécifications réseau) et qu'on récupère à la sortie du procédé 100% du biométhane.

La thèse est structurée en quatre chapitres. Le premier expose l'état de l'art sur les procédés de liquéfaction du biométhane à micro-échelle et met l'accent sur l'évaluation des performances de ces procédés en se basant sur l'analyse exergétique détaillée des systèmes. Cette analyse permet d'identifier les verrous existants qui permettraient d'améliorer les performances de la liquéfaction de biométhane. Le deuxième permet de faire un tour d'horizon sur les méthodes numériques d'optimisation et les méthodes d'analyse des procédés de liquéfaction existantes dans la littérature. En se référant à l'état de l'art, une méthode d'optimisation basée sur le couplage de l'analyse exergétique et la méthode d'algorithme génétique sera développée. Ensuite, différentes architectures de liquéfaction du biométhane seront proposées et modélisées sous Aspen HYSYS en prenant en considération deux critères : Le besoin de refroidissement en vue de la liquéfaction du biométhane et l'inflammabilité de mélange. Chaque simulation sera accompagnée d'une analyse exergétique et une optimisation énergétique du système. Ces analyses permettront de définir les

architectures les plus adaptées et peu consommatrices d'énergie pour la liquéfaction de biométhane.

Le troisième chapitre concerne la simulation en régime dynamique de l'architecture énergétiquement optimale. Cette partie aborde d'abord une étude de sensibilité paramétrique pour évaluer la flexibilité de l'unité de liquéfaction à charge réduite de biométhane. Ensuite un modèle dynamique sera développé pour valider les résultats de la simulation en régime stationnaire et évaluer le temps nécessaire pour atteindre les températures opératoires. Le dernier chapitre comprend l'élaboration du cahier de charge en vue d'une validation expérimentale des résultats simulations, prévue en dehors du cadre de la thèse, et une étude technico-économique préliminaire pour l'évaluation du coût total actualisé du cycle thermodynamique choisi pour la micro-liquéfaction du biométhane.

Chapitre 1 - Etat de l'art : Production du biogaz, procédés de liquéfaction de méthane et leurs méthodes d'optimisation

1. Contexte général

1.1. Énergies fossiles : un choix inévitable ?

Depuis la révolution industrielle, l'histoire de l'humanité a connu un tournant sans précédent. Avec la naissance du couple charbon-vapeur à la fin du 18^{ème} siècle et l'utilisation du gaz et du pétrole au début du 20^{ème}, le mode de vie de l'être humain a évolué vers un quotidien dépendant de l'énergie fossile. Les inventions qui ont révolutionné cette époque, notamment dans le domaine médical, ont permis une amélioration de la qualité de vie et par conséquent un allongement de l'espérance de vie humaine. Ces modifications ont entraîné une croissance démographique exponentielle, la population mondiale a été multipliée par 6 en 167 ans en passant de 1260 millions d'habitants à 7 milliards au début du 21^{ème} siècle. Ce qui a mené mécaniquement à une augmentation sans précédent de la consommation des énergies fossiles, comme on peut le voir sur la Figure 2.

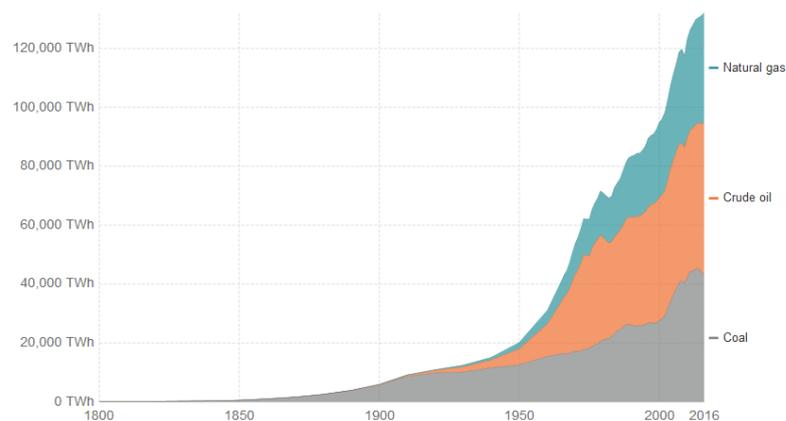


Figure 2 : Consommation des énergies primaires mondiales par source d'énergie fossile (Slim, 2016).

Les hommes ont privilégié ces énergies aux vues de leur abondance, leur commodité et leur rapport qualité/prix. Ces ressources couvrent aujourd'hui 81% des besoins mondiaux en énergie primaire, répartis entre le pétrole (33%), le charbon (27%) et le gaz naturel (21%) (FTV, 2016).

Au rythme de cette consommation massive, le globe a connu une augmentation croissante des émissions du dioxyde de carbone (CO₂), qui est l'un des principaux gaz à effet de serre. D'après les observations des scientifiques, la concentration du CO₂ dans l'atmosphère culminait autour de (403 ppm) en 2016, contre (280 ppm) à l'ère préindustrielle (ce qui correspond à une augmentation de 40% avec une croissance moyenne de 2 ppm/an durant les 10 dernières années) (IEA, 2017a). Cette accumulation considérable du CO₂ dans l'atmosphère est à l'origine du réchauffement planétaire de 2°C. Ainsi, d'après le Groupe d'experts intergouvernemental sur l'Evolution de Climat (GIEC), pour maintenir la hausse de température à la fin du siècle inférieure à 2°C, une réduction radicale des émissions de CO₂ serait nécessaire (IPCC, 2014).

1.2. Le gaz naturel, un premier pas vers la transition énergétique

Les deux tiers des émissions du CO₂ constatées en 2015 proviennent de deux secteurs : la production de l'électricité et la génération de la chaleur. Cette production repose lourdement sur le charbon, responsable de 45% des émissions globales de CO₂, soit le double des émissions émises par le gaz naturel (IEA, 2017b). La Figure 3 représente la répartition des émissions du CO₂ selon la source d'énergie fossile.

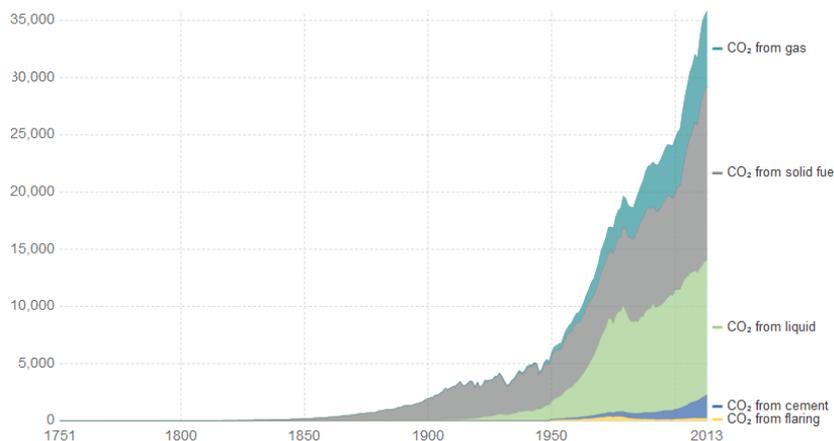


Figure 3 : Emissions annuelles de CO₂ d'origine fossile en millions de tonnes (CDIAC, 2017).

Un premier pas vers l'objectif de 2°C est d'augmenter la part du gaz naturel dans le mix énergétique par ce que l'on appelle le « Switch » du charbon vers le gaz dans la génération électrique (Planète-énergie, 2016). Dans le scénario « développement durable » élaboré par l'Agence Internationale de l'Energie (AIE), la consommation du gaz naturel augmentera de près de 20% jusqu'en 2030. Cette croissance affectera surtout les pays avec des systèmes énergétiques dépendant fortement du charbon, comme la Chine et l'Inde. Le gouvernement chinois prévoit une évolution de la part du gaz naturel dans le mix énergétique de 5,9% en 2015 à 15% en 2030 (EIA, 2017). En France, la demande mensuelle de gaz naturel a atteint son maximum en janvier 2017, avec une augmentation de 30% par rapport à l'année précédente. En effet le pays a dû faire face à la décision de l'autorité française, concernant des études de sûreté menées dans toutes les centrales nucléaires en 2016, en augmentant son approvisionnement en gaz afin de satisfaire la demande (IEA, 2017b). Le développement du marché du GNL a joué un rôle important en faveur de la compétitivité du gaz naturel aux autres énergies fossiles. En effet le marché mondial du GNL connaît une croissance de 4% à 6% par an, contre 1% à 2% pour la consommation globale de gaz (Clemente, 2017). Le développement des unités flottantes de regazéification et de stockage, les prix en baisse du gaz et la flexibilité des contrats du GNL, ont encouragé le recours au gaz naturel liquéfié. Les pays importateurs du GNL estimés à 35 en 2016 vont presque doubler d'ici 2030 (Clemente, 2017). Au niveau européen, le projet « LNG Blue corridors », lancé en Mai 2013, et qui consiste à l'avitaillement de véhicules lourds en gaz naturel (150 camions attendus en 2018), contribue à l'essor du GNL carburant en Europe (120 camions en 2016) et place le gaz naturel comme vecteur clé vers une énergie basse en émissions de carbone (Schwoerer, 2017). Malgré ce type de projets, le recours au gaz naturel reste une solution nécessaire à court terme

pour réduire les émissions du CO₂, mais non suffisante pour maintenir le réchauffement climatique à 2°C. Pour parvenir à cet objectif, l'augmentation de la part des énergies renouvelables dans le mix énergétique est indispensable. Un intérêt particulier est donc porté à l'utilisation du biogaz, car son épuration conduit à du biométhane, considéré comme la version renouvelable du gaz naturel.

1.3. Le biogaz, comme substituant du gaz naturel

A. Production du biogaz

Le biogaz est produit par digestion anaérobie de matière organique (méthanisation) dans des systèmes contrôlés, appelés digesteurs, ou bien de façon spontanée dans les zones d'enfouissement de déchets. Il se compose principalement du méthane (CH₄) et du dioxyde de carbone (CO₂). Cependant le terme « biogaz » regroupe une grande variété de gaz avec des teneurs variées de CH₄ et de CO₂, ainsi que des impuretés (H₂S, N₂, O₂,...), issus des différentes sources de matière organique et d'infrastructure de méthanisation (stations d'épurations d'eau (STEP), déchets organiques diverses, industriels, agricoles, d'origine animale et ménagère). Le processus de méthanisation comporte trois étapes principales comme le montre la Figure 4.

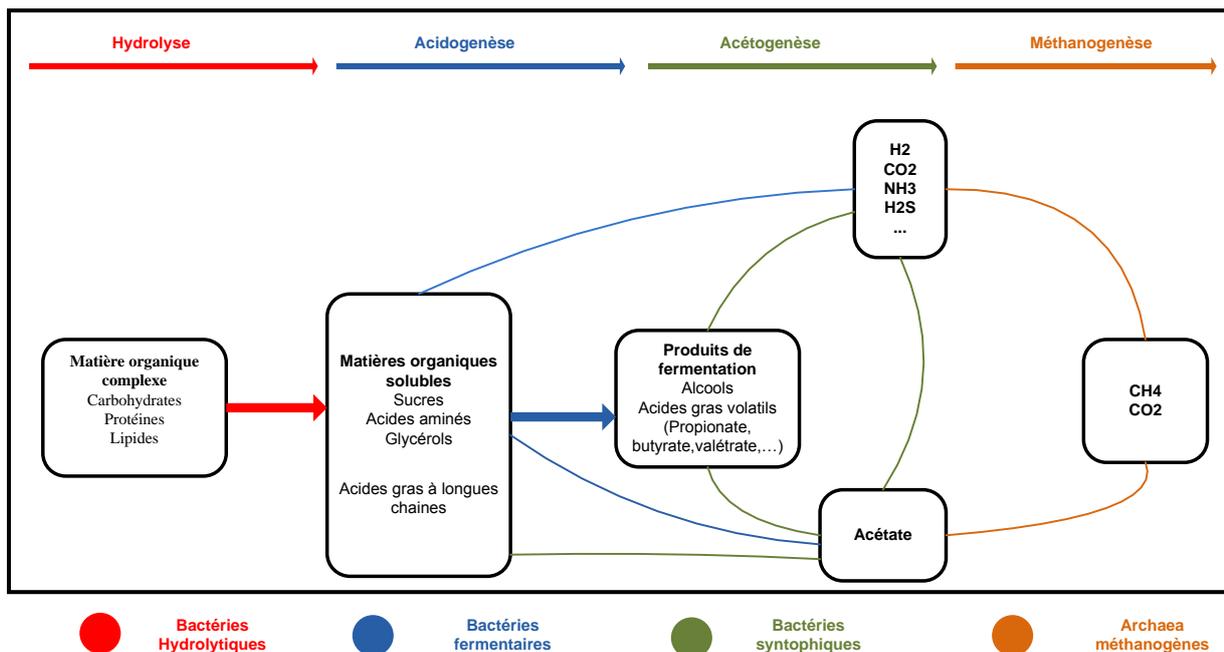


Figure 4 : Représentation schématique du processus biochimique de la méthanisation (Escudie et Cresson, 2017).

Les différentes étapes sont expliquées ci-dessous :

1/ **L'hydrolyse** : Cette première étape consiste à convertir les macromolécules organiques, liquides ou solides, en molécules solubles dans de l'eau via des bactéries hydrolytiques.

2/ **L'Acidogénèse** : Lors de cette étape, les différents monomères issus de l'hydrolyse sont transformés en AGV (Acides Gras Volatiles) et alcools via des bactéries fermentaires.

2/L'Acétogénèse : Dans cette étape, les acides gras volatiles se dégradent en acide acétique, et on a la formation d'hydrogène et de dioxyde de carbone.

3/ La Méthanogénèse : phase ultime où il y a la production du méthane par deux bactéries : les premières acétogènes qui assurent la réduction de l'acétate en méthane, CH₄ et bicarbonate. Les secondes, réduisent le bicarbonate en méthane.

B. Composition du biogaz

La composition du biogaz varie selon les sources de matière organique putrescible, à savoir des décharges, des STEP, des ordures ménagères, des déchets issus des sous-produits industriels et des déchets issus de l'industrie agricoles (IAA). Il est essentiellement un mélange de méthane (CH₄) et de gaz carbonique (CO₂). Le Tableau 1 ci-dessous présente la composition du biogaz en fonction du type de substrat.

Tableau 1 : Composition du biogaz selon le type du substrat (Rivera-Tinoco, 2012).

Composants	Ordures ménagères	STEP	Déchets agricoles	Déchets IAA
CH ₄ (% Vol.)	65-75	35-65	45-75	40-55
CO ₂ (% Vol.)	20-35	15-50	20-55	25-30
N ₂ (% Vol.)	0-5	5-40	0-5	10
O ₂ (% Vol.)	<1	0-5	<1	1-5
H ₂ O (% Vol.)	Traces		<1	Traces
H ₂ S (mg. Nm ⁻³)	<4000		<10000	<3000
NH ₃ (mg. Nm ⁻³)	<2500		<1500	<2500
Aromatiques (mg. Nm ⁻³)	0-200			
Organochlorés ou Organofluorés (mg. Nm ⁻³)	100-800			

C. Valorisation du biogaz

Le biogaz possède un potentiel énergétique important. Les voies de valorisation du biogaz sont diverses comme le montre la Figure 5. On distingue quatre filières :

- Energie thermique ;
- Energie électrique ;
- Biocarburant ;
- Injection dans le réseau du gaz naturel.

Le biogaz est utilisé actuellement dans la production de l'électricité et de la chaleur, mais la valorisation thermique ne peut se faire qu'à proximité du site de production de biogaz. Outre ces usages, plusieurs projets s'orientent vers l'injection du biométhane dans le réseau du gaz naturel.

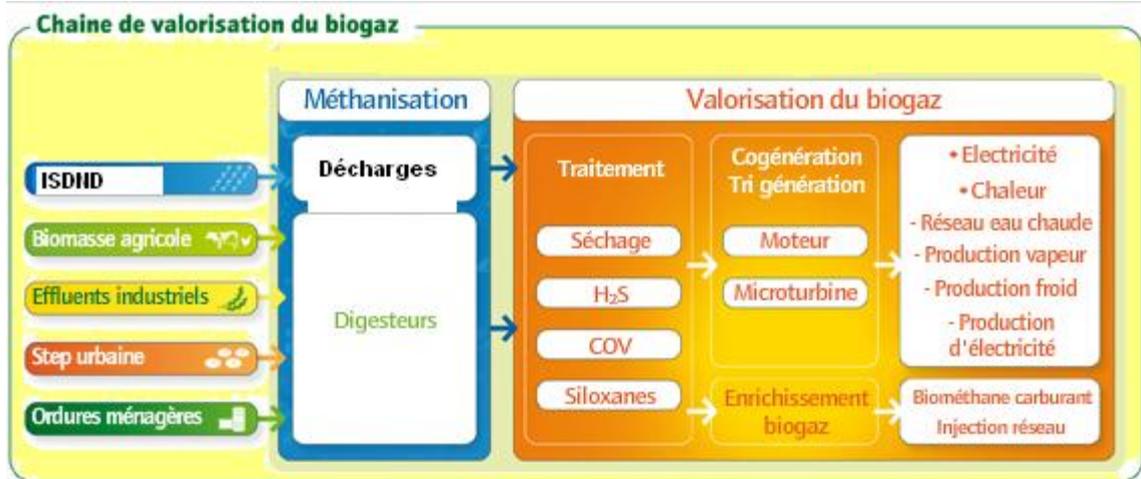


Figure 5 : Chaîne de valorisation du biogaz (Verdesis, 2012).

D. Du biogaz au biométhane

Pour l'injection du biométhane dans le réseau du gaz naturel, le biogaz brut doit être épuré. Le produit résultant de son épuration est le biométhane, un gaz ayant des propriétés très similaires au gaz naturel (ADEME, 2016a). L'association française de gaz (AFG) a défini la qualité du biométhane répondant aux exigences des gestionnaires de réseaux (voir Tableau 2).

La teneur en CH₄ permettant d'atteindre un PCS minimum de 10,7 kWh/Nm³ doit être supérieure à 96,65%. Cette teneur dépend du procédé de traitement du biogaz adopté. En général, les procédés de traitement du biogaz se segmentent en trois principales opérations (Rivera-Tinoco, 2012) :

- La dépollution : cette opération consiste à éliminer le sulfure d'hydrogène (H₂S), les organo-halogénés et les métaux.
- La déshydratation : Cette opération implique l'élimination de la vapeur d'eau.
- L'enrichissement : cette opération consiste à éliminer le CO₂ et l'azote (N₂) afin d'améliorer le pouvoir calorifique supérieur du gaz et par conséquent l'indice de Wobbe.

La littérature fait état d'une grande quantité de procédés de traitement du biogaz spécifique à chacune des trois opérations mentionnées. Les procédés principaux existants dans la littérature sont présentés dans la Figure 6.

L'injection du biométhane sous-entend le raccordement du site de production au poste d'injection. Cependant, de nombreux sites de gisements agricoles sont éloignés des réseaux de gaz. Dans ce cas, l'injection ne peut se faire que par portage du biométhane et on parle « d'injection portée ».

Tableau 2 : Qualité du biométhane conforme aux spécifications du réseau (ATEE, 2013).

Caractéristiques	Spécifications
PCS (pouvoir calorifique supérieur)	Gaz de type H ¹ : 10,7 à 12,8 kWh/Nm ³ Gaz de type B ¹ : 9,5 à 10,5 kWh/Nm ³
Indice de Wobbe ²	Gaz de type H : 10,7 à 12,8 kWh/Nm ³ Gaz de type B : 9,5 à 10,5 kWh/Nm ³
Densité	Comprise entre 0,555 et 0,77
Point de rosée eau	Inférieur à -5°C à la pression Maximale de Service du Réseau en aval du raccordement
Teneur en soufre de H ₂ S (+COS)	< 5 mgS/Nm ³
Teneur en CO ₂	< 2,5 %
Teneur sn soufre total	<30 mgS/Nm ³
Teneur en soufre mercaptique	<6 mgS/Nm ³
Point de rosée hydrocarbures	Inférieur à -2°C de 1 à 70 bar
Teneur en Hg	<1 µg/Nm ³
Teneur en Cl	<1 mg/Nm ³
Teneur en F	<10 mg/Nm ³
Teneur en H ₂	< 6 %
Teneur en CO	< 2 %
Teneur en NH ₃	<3 mg/Nm ³
Teneur en poussières	<5 mg/Nm ³ Gaz pouvant être transporté, stocké et commercialisé

¹ Gaz de type H : Gaz à haut pouvoir calorifique. Gaz de type B : Gaz à bas pouvoir calorifique

² Indice de Wobbe est le rapport entre le PCS et la racine carrée de la densité

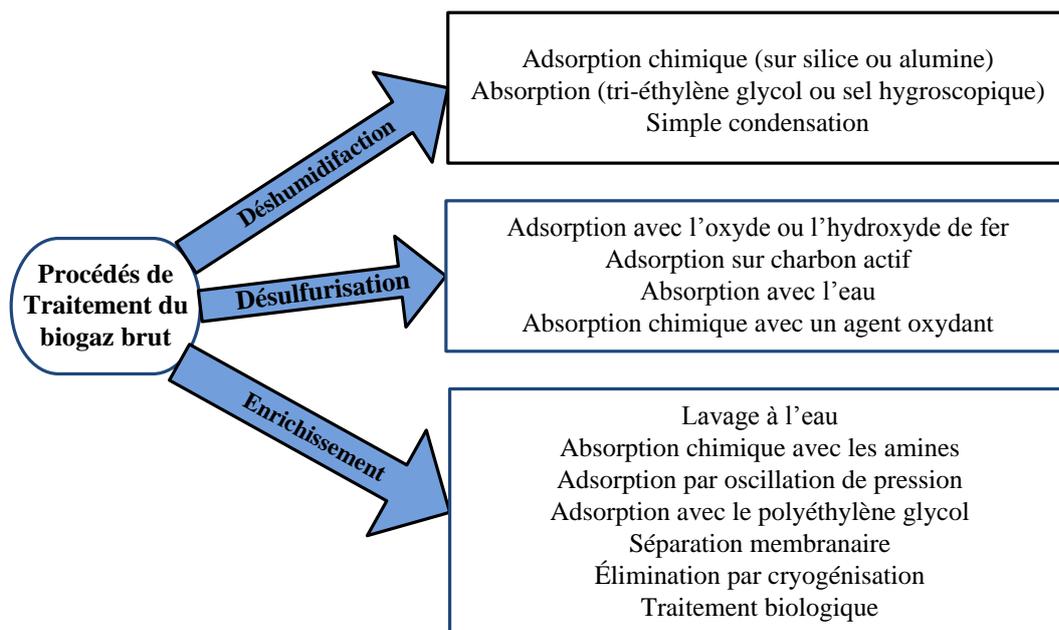


Figure 6 : Procédés de traitement du biogaz spécifique à chaque opération (Angelidaki et al., 2018).

Après épuration, le conditionnement du biométhane peut être assuré soit par compression ou liquéfaction du biométhane ou bien par compression du mélange $\text{CO}_2\text{-CH}_4$ à l'état supercritique.

Pour des raisons économiques, plusieurs projets de valorisation de biométhane s'orientent vers sa liquéfaction pour son transport vers les postes d'injection de gaz au réseau. En effet pour transporter le biogaz par compression, méthode alternative, ce dernier doit être comprimé jusqu'à une pression comprise entre 250 et 300 bar. Cette haute pression engendre un coût de compression onéreux et le volume du gaz comprimé reste supérieur à celui du gaz liquéfié (pour 1 Nm^3 de biogaz, le volume du gaz liquéfié à pression atmosphérique est de 1,7 litre contre 4 litres de gaz comprimé à 250 bar) (ADEME, 2016b). La compression du mélange $\text{CO}_2\text{-CH}_4$ est encore à l'état recherche en vue de l'instabilité du mélange à l'état supercritique.

En cas de conditionnement par liquéfaction du biométhane, le risque de givrage du CO_2 est présent. Cela dépendra de la pureté du biométhane et des propriétés thermodynamiques du mélange binaires $\text{CO}_2\text{-CH}_4$. Deux cas de figures sont envisageables : pour des teneurs basses en CO_2 , la liquéfaction à haute pression et basse température permettra de solubiliser le CO_2 et par conséquent l'obtention d'un mélange liquéfié homogène. Pour des teneurs infimes en CO_2 la liquéfaction peut se faire à basse pression et basse température. La Figure 7 représente le diagramme de phase du mélange $\text{CO}_2\text{-CH}_4$ pour des concentrations de CO_2 différentes.

La courbe ABCD représente la délimitation des phases pour un mélange composé de 0,5% de CO_2 et 99,5% de CH_4 . AB est la ligne solide-liquide, BC est la ligne représentant les trois phases solide-liquide-gaz et CD est la ligne solide-gaz. D'après le diagramme de phase le

mélange peut être liquéfié entre 9 et 18 bar à des températures variant entre -133,16 et -113°C. Dans le cadre de cette thèse, on suppose que les technologies de traitement du biogaz permettent une élimination totale du CO₂ du biométhane.

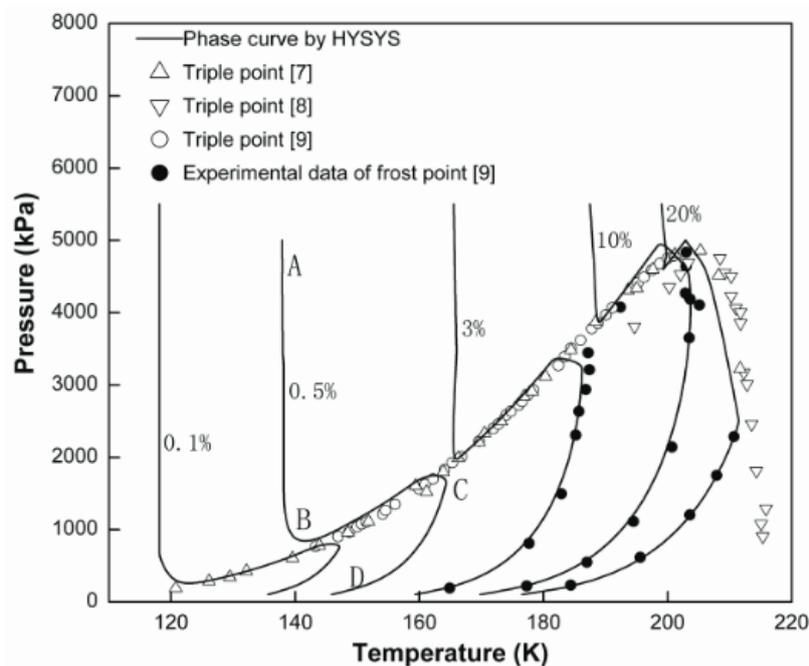


Figure 7 : Diagramme de phase du mélange binaire CH₄-CO₂ (Lin et al., 2015).

E. Contexte et enjeux du biométhane liquéfié

Le biogaz est une source d'énergie polyvalente, la seule source d'énergie renouvelable capable de produire de l'électricité, de la chaleur et du carburant automobile (EBA, 2011). Considéré comme substituant du gaz naturel, le biogaz est une énergie en plein essor au sein de l'Union Européenne. L'EurObserv'ER a évalué la production d'énergie primaire à partir du biogaz, à 16 millions de tonnes équivalent pétrole en 2016 (Eurobserv'ER, 2017). Une progression remarquable depuis 2000 (2,1 Mtep), mais avec un moindre rythme depuis 2011. Des unités de valorisation énergétique du biogaz existent dans tous les pays de l'Union, cependant l'Allemagne concentre à elle seule environ 50% de la production européenne (8 Mtep) avec 10000 méthaniseurs (Eurobserv'ER, 2016). En France, la filière du biogaz est en progression continue, cependant plusieurs facteurs, entravent le développement de la filière (Boubon, 2017). D'un point de vue économique, la question sur la rentabilité des projets de méthanisation inquiète les investisseurs. D'après une étude réalisée par l'ATEE (Association Technique Energie Environnement) auprès de 54 sites de méthanisation, 65% ont déclaré une rentabilité inférieure au prévisionnel (E-CUBE, 2015). La non maîtrise de gisement de substrat pénalise la rentabilité des installations (ADEME, 2016b). Des défauts de conception apparaissent au niveau de la chaîne de tri, ce qui engendre des surcoûts supplémentaires de maintenance. Les tarifs de rachat d'électricité freinent les agriculteurs à s'avancer dans des projets de méthanisation en cogénération. D'un point de vue réglementaire, les démarches administratives sont très lentes et complexes dans le cadre de l'injection de biométhane dans le réseau gazier.

Conscient du potentiel énergétique indéniable du biogaz, le gouvernement a mis en place des dispositifs de soutien encourageants les porteurs de projet et les collectivités. Les contrats de vente de l'électricité ont été étendus de 15 à 20 ans. Les tarifs de rachat de l'énergie produite via le biogaz ont été restructurés. Afin d'encourager les banques à investir dans la filière, l'Association d'initiatives locales pour l'énergie et l'environnement (Aile) et l'Agence Auvergne Rhône-Alpes énergie environnement ont publié un guide de conseils pour le financement des projets de méthanisation (Aile, 2017). Une fois ces dispositions ont été appliquées, le secteur a repris son envol. Concernant la production de l'électricité, le tableau de bord trimestriel de la filière affiche au 30 septembre 2017, 531 sites pour une puissance totale de 412MWe (Observ'ER, 2017). Concernant l'injection raccordée du biométhane dans le réseau du gaz naturel, la filière monte en puissance. En septembre 2017, 36 unités injectaient du biométhane dans le réseau, soit 3 fois plus qu'en décembre 2016, avec une capacité d'injection de 533 GWh/an (Observ'ER, 2017). Au cours du deuxième trimestre 2017, le biométhane injecté dans le réseau a atteint 97 GWh, soit moins de 0,1% du gaz distribué en France. Cette part est extrêmement faible, mais la filière est en développement accéléré : 297 projets étaient en file d'attente, au troisième trimestre 2017, avec une capacité d'injection de 6501 GWh/an (Observ'ER, 2017). L'objectif de la filière est d'atteindre 12 à 30 TWh/an de biométhane injecté d'ici 2030 (Siapartners, 2016).

Pour encourager le développement de la filière d'injection du biométhane en France, l'injection bénéficie d'une réglementation encadrant les tarifs d'achat du biométhane (ADEME, 2016b) :

- Tous les producteurs souhaitant injecter leur production dans les réseaux de distribution et de transport sont éligibles à une obligation d'achat ;
- Le tarif est calculé sur la base du débit nominal au point d'injection et non au débit de la production ;
- Pour les installations de stockage de déchets non dangereux, le tarif varie entre 1,5 c€/kWh et 9,5 c€/kWh selon la taille de l'installation (le tarif de base est maximal jusqu'à 50 Nm³/h et minimal au-dessus de 350 Nm³/h) ;
- Pour les autres unités le tarif de base est compris entre 6,4 c€/kWh et 9,5 c€/kWh ;
- Des primes peuvent s'ajouter aux tarifs de base en fonction de la matière traitée par méthanisation (2 à 3 c€/kWh pour les intrants composés de produits agricoles, 0,5 c€/kWh pour les intrants composés de déchets ménagers et de 0,1 à 3,9 pour ceux composés de boues de stations d'épurations des eaux usées).

Concernant la valorisation du biométhane autant que biocarburant, carburant qui bénéficie de nombreux avantages pour la lutte contre les émissions des particules fines et la réduction des émissions routières de CO₂, le biométhane peut compléter l'offre actuelle du gaz naturel véhicule (GNV), et être un carburant alternatif renouvelable aux carburants d'origine fossiles, responsable de 28% des émissions de CO₂. En France, 9 stations de GNV disposaient de biométhane carburant, soit 19% des 47 stations publiques française (Siapartners, 2016).

Pour l'injection portée du biométhane, plusieurs contraintes entravent l'envol de la filière. « La réglementation et l'année tarifaire sur l'achat du biométhane ne sont pas adaptés à

un découplage entre site de production et site d'injection » (ADEME, 2016b). Actuellement en France, 8 projets sont en phase d'étude et deux en phase de réalisations (le projet Méthabraye et AgroGaz).

La thèse s'inscrit dans cette logique d'injection du biométhane portée qui permettrait aux petites exploitations agricoles non raccordées aux réseaux du gaz de liquéfier leur biométhane et de le transporter vers les points d'injection. L'objectif est de développer les méthodologies nécessaires pour l'optimisation et la conception d'un cycle de réfrigération peu énergivore, compacte et facilement opérable, pour assurer la liquéfaction du biométhane à micro-échelle (10 Nm³/h de biométhane) à 17 bar et 25°C. Le choix de ces conditions thermodynamiques est imposé par l'industriel.

L'état de l'art témoigne de la rareté d'informations sur les procédés de liquéfaction du biométhane. En vue de la similitude entre les propriétés du biométhane et du gaz naturel, l'état de l'art sur les procédés de liquéfaction du gaz naturel sera également examiné afin de recenser les procédés extrapolables à l'échelle de liquéfaction du biométhane. Une fois le procédé de base défini, plusieurs architectures ont été modélisées en se basant sur deux critères : l'inflammabilité du mélange réfrigérant et le besoin de refroidissement en vue de la liquéfaction du biométhane. Ensuite chaque architecture a été simulée sous Aspen HYSYS et chaque simulation a été accompagnée d'une analyse exergetique pour évaluer l'efficacité énergétique du procédé et d'identifier les causes principales des irréversibilités thermodynamiques dans les diverses opérations unitaires. Pour améliorer les performances de chaque cycle de liquéfaction, et d'identifier la meilleure configuration, la méthode d'optimisation par algorithmes génétiques a été choisie. Le processus d'optimisation opère par la connexion entre Excel, Aspen HYSYS et PIKAIA (bibliothèque d'algorithme génétique disponible). Les conditions du biométhane à liquéfier sont une pression initiale de 17 bar et une température de 25°C. Une étude de l'impact de la variation de cette pression sur la performance de liquéfaction a été faite. Le but est d'évaluer la flexibilité du procédé, dans le cas où la pression du biogaz est en dessous de 17 bar. Ces analyses permettent de définir les architectures les plus adaptés et peu consommatrices d'énergie pour la liquéfaction de biométhane à micro-échelle. Dans le but d'étudier le comportement des cycles de liquéfaction en régime transitoire, les résultats obtenus en régime stationnaire sont considérés afin d'évaluer l'adéquation des solutions optimisées et la robustesse du système à charge partielle en débit de biométhane. La validation expérimentale de la liquéfaction de biométhane par la cascade à mélanges de réfrigérants est prévue en dehors du cadre de cette thèse avec des partenaires industriels.

2. Procédés de liquéfaction

2.1. Classification des procédés de liquéfaction du gaz naturel

Les procédés de liquéfaction du gaz naturel se segmentent principalement en trois groupes : les cycles en cascade avec réfrigérants purs, les cycles à mélange de réfrigérants et les cycles à expansion d'azote.

A. Les cycles en cascade à réfrigérants purs

Le principe des cycles en cascade classiques pour la liquéfaction du gaz naturel repose sur des cycles de réfrigération imbriqués opérant avec des réfrigérants purs qui s'évaporent à différents niveaux de pression (chaleur latente à températures constantes), fréquemment nommés étages. Le refroidissement se fait progressivement d'étage en étage à des températures décroissantes (Figure 8).

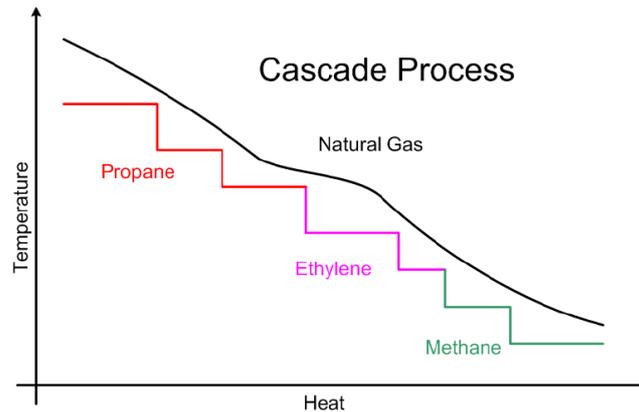


Figure 8 : Puissance thermique vs. Température d'un cycle en cascade à réfrigérants purs pour la liquéfaction du gaz naturel (Kanoglu, 2002).

Cette figure représente la variation de la température en fonction de la quantité de chaleur échangée entre le flux de gaz naturel à condenser et le flux de fluides frigorigènes. Le gaz naturel rentre à environ 30°C et se condense progressivement tout au long du cycle. On peut remarquer qu'il n'y a pas de palier de température au niveau du flux de gaz, ce qui confirme que le gaz est non traité et qu'il contient encore des traces d'autres composants qui condensent au fur et à mesure du refroidissement engendré par les réfrigérants. Le gaz naturel se compose du CH₄, de l'azote et des alcanes possédant plus d'un carbone (Tilagone et Lecointe, 2014). La courbe du fluide frigorigène comporte des paliers de condensation des réfrigérants purs à différents niveaux de pression. On utilise souvent le propane, l'éthylène et le méthane. Chaque étage opère avec un compresseur et on a une évaporation progressive de réfrigérants à chaque étage du cycle.

Le premier procédé en cascade, dont la conception a été élaborée par Technip/Air liquide, a vu son application autant que première unité de liquéfaction du gaz naturel à Arzew en Algérie (1964). Dans ce cycle classique (Figure 9), le gaz naturel comprimé (45 bar à 65 bar) est refroidi puis liquéfié en utilisant trois différents circuits de réfrigérants purs imbriqués en cascade : le propane, l'éthylène et le méthane. Autour de -30°C, le premier cycle à propane assure la condensation de l'éthylène issu du deuxième cycle et le refroidissement du gaz naturel et du méthane du troisième cycle. Le cycle à éthylène permet de condenser du méthane issu du troisième cycle et la condensation partielle du gaz naturel autour de -100°C. Le dernier cycle en méthane condense totalement et sous-refroidit le gaz naturel autour de -150°C avant de faire une détente isenthalpique à -160°C (1 bar). L'échangeur de type Kettle est utilisé pour le cycle en propane et l'échangeur de type bobiné pour les deux autres cycles. Des turbines à gaz fournissent le travail nécessaire à l'entraînement des compresseurs pour

chaque cycle. La capacité de cette unité est de 1,1 million tonne par annum (ou MTPA) (Bosma et Nagelvoort, 2009).

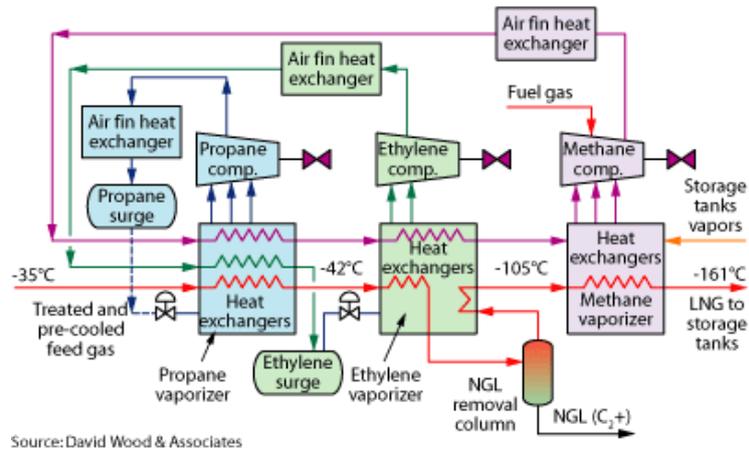


Figure 9 : Schéma représentatif du cycle Technip/Air liquide de liquéfaction du gaz naturel (Wood et Mokhatab, 2009).

Ce premier procédé a été repris par ConocoPhillips, optimisé et mis en application à Trinidad en 1999 (Mokhatab, et al., 2014). L'unité comporte également trois cycles opérant séparément à différents niveaux de pressions avec des réfrigérants purs : propane, éthylène et méthane. Le procédé diffère de la cascade Technip/Air Liquide par le cycle en méthane qui est en boucle semi-ouverte et non fermée, et l'emplacement de deux turbines en parallèle sur chaque cycle (voir Figure 10).

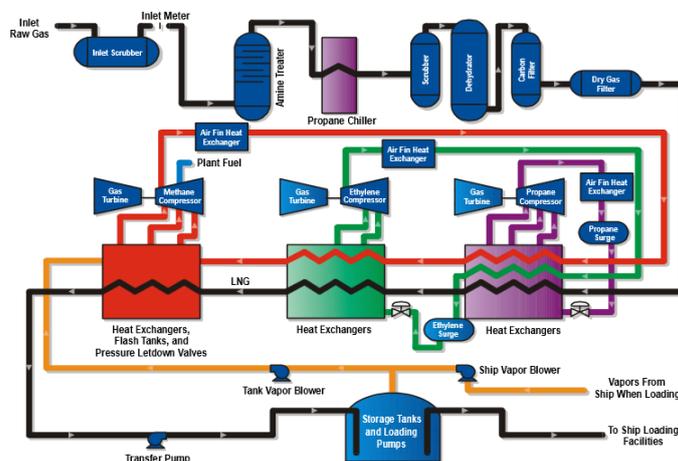


Figure 10 : Schéma représentatif du cycle Conoco Phillips de liquéfaction du gaz naturel (ConocoPhillips, 2018).

B. Les cycles à mélange de réfrigérants

Les procédés à mélange de réfrigérants assurent le refroidissement du gaz naturel suivant le glissement de température nécessaire à sa condensation totale (Figure 11). Le mélange de réfrigérant est composé d'hydrocarbures légers et de l'azote.

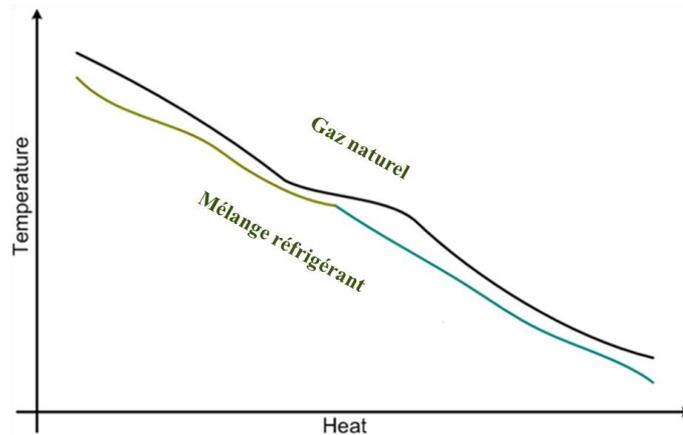


Figure 11 : Puissance thermique vs. Température d'un cycle à mélange de réfrigérants.³

Les procédés à mélange de réfrigérants se divisent principalement en trois types : les procédés à un seul mélange de réfrigérants (Single Mixed Refrigerant – SMR), les procédés à deux mélanges de réfrigérants (Dual Mixed Refrigerant – DMR), et les cycles à cascade à mélange de réfrigérants (He et al., 2018).

B.1. Les procédés SMR

Procédé APCI (Air Product chemical engineering). Le premier cycle à mélange de réfrigérants a été développé par APCI et industrialisé à Marsa el Berga en 1970 (Bosma, et al., 2009). Le procédé dispose d'un seul cycle avec un mélange d'azote et d'hydrocarbures (méthane, éthane, propane,...). Les étapes de condensation et d'évaporation sont réalisées en un seul cycle sur une large plage de températures pour refroidir le gaz naturel à environ $-160\text{ }^{\circ}\text{C}$. Ce procédé a été mis au point pour réduire le nombre d'équipements requis en comparaison avec les cycles en cascade. Cependant, la puissance requise est relativement élevée à cause du débit important de réfrigérants utilisé.

Procédé PRICO de Black et Veatch. Le procédé PRICO opère avec un mélange de réfrigérants composé d'azote, de méthane, d'éthane, de propane et d'isopentane. Le flux du fluide frigorigène est comprimé, et partiellement condensé avant d'être acheminé vers la chambre froide où il est totalement condensé. Le fluide est ensuite détendu et mis à contre-courant avec le gaz naturel (Figure 12). Ce dernier est ainsi refroidi jusqu'à -35°C . À cette température, les hydrocarbures moins volatiles sont condensés. Le mélange est envoyé vers une colonne flash où ces hydrocarbures liquides moins volatiles sont récupérés et fractionnés en individuel produits, et le gaz restant est réacheminé dans la chambre froide où il est totalement condensé (Stebbing et O'Brien, 1975).

Ce procédé mature a été récemment utilisé en Chine dans les stations de GNL d'écrêtement de pointe et dans les stations de services en ayant pour objectif de substituer les carburants, essence et diesel, par le gaz naturel.

³ <http://www.asx.com.au/asxpdf/20110704/pdf/41zkxd8zk40qnv.pdf>

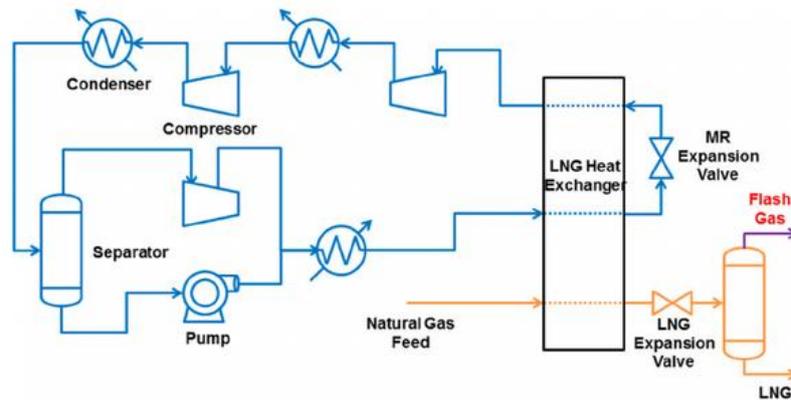


Figure 12 : Schéma représentatif du cycle PRICO de liquéfaction du gaz naturel (Lim et al., 2014).

Procédé Air Product (C3-MR). Le procédé C3-MR d'Air Product comporte deux cycles : un cycle de pré-refroidissement au propane et un second avec mélange de réfrigérants (méthane, éthane, propane et azote) (Figure 13) (Venkatarathnam, 2010). Le propane est évaporé à 3 ou 4 niveaux de pression, pour assurer la désurchauffe du gaz naturel et la condensation partielle du mélange de réfrigérant. Le nombre d'étages de compression dépend de la température de refroidissement de l'air où de l'eau de refroidissement disponible sur le site industriel. Le propane est partiellement évaporé au niveau des trois premiers échangeurs. L'évaporation complète est assurée au dernier échangeur. Ce procédé est le plus utilisé dans le domaine de liquéfaction du gaz naturel (environ 90% des unités matures). Le procédé C3-MR a connu des modifications afin d'augmenter sa capacité de liquéfaction. Parmi elles, la plus importante consiste à opérer le procédé avec un troisième cycle de réfrigération à l'azote qui assure le sous-refroidissement du gaz naturel et remplace le mélange réfrigérant à la température proche de -165°C . Le sous-refroidissement en amont et la détente favorise la formation de phase liquide à basse pression.

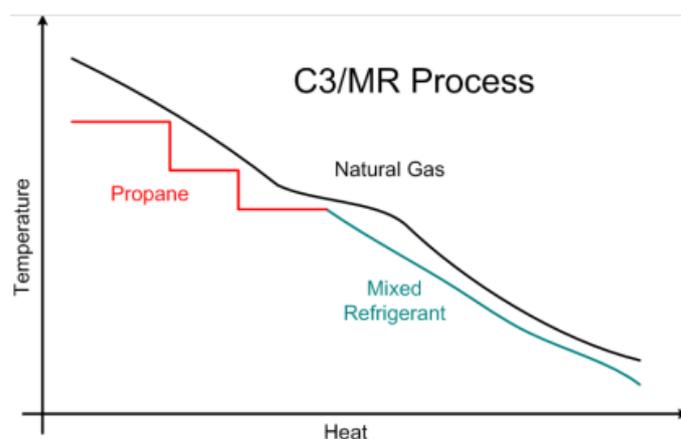


Figure 13: Puissance thermique vs. Température du procédé C3/MR et la liquéfaction du gaz naturel⁴.

⁴<http://www.asx.com.au/asxpdf/20110704/pdf/41zkd8zk40qnv.pdf>

B.2. Les procédés DMR

Procédé TEALARC (Technip/Air liquide). Le procédé TEALARC a été développé par Technip/Air liquide et appliqué à l'unité Skikda (Michelson, et al., 2010). L'unité dispose de deux cycles de réfrigérations : le premier cycle assure le pré-refroidissement du mélange de réfrigérants (méthane et éthane), utilisé dans le second cycle (cycle assurant la liquéfaction du gaz naturel).

Procédé SHELL et APCI. Afin de faire face à la limitation des dimensions du compresseur en utilisant que du propane comme réfrigérant dans le procédé C3-MR, Shell a proposé de remplacer le cycle en propane dans le procédé C3-MR par un mélange de propane et d'éthane, et d'utiliser des échangeurs bobinés à la place des échangeurs à plaques ou des échangeurs core-in-kettle (Boutelant, 2008). Ces améliorations ont rendu le procédé plus flexible tout en maintenant la configuration du compresseur. Ce procédé a été sélectionné pour le projet Sakhalin (unité d'une capacité de 4,8 MTPA) en Russie. Shell annonce une amélioration de l'efficacité de 9%.

Procédé à mélange de réfrigérants parallèles (PMR). Shell a développé un procédé dont la principale caractéristique est que les deux cycles à mélange de réfrigérants soient configurés en parallèle. Cette configuration réduit la chute de pression dans le système et améliore l'efficacité de l'unité (Finn, et al., 1999). La capacité des trains peut atteindre 8 MTPA.

Procédé IFP/Axens Liquefin. Le procédé comporte deux cycles à mélange de réfrigérants, le premier mélange assure le pré-refroidissement du gaz à trois différents niveaux de pression (Martin et al., 2003) : En effet le gaz est acheminé vers un échangeur cryogénique à plaques brasés d'aluminium où il est pré-refroidi via une unité de pré-refroidissement jusqu'à -80°C . Le gaz ainsi pré-refroidi, est séparé des hydrocarbures moins volatiles condensés et retourné vers l'échangeur. A ce niveau, le second mélange de réfrigérants issu d'un système cryogénique permet de liquéfier le gaz. Ce procédé n'est pas encore mature industriellement.

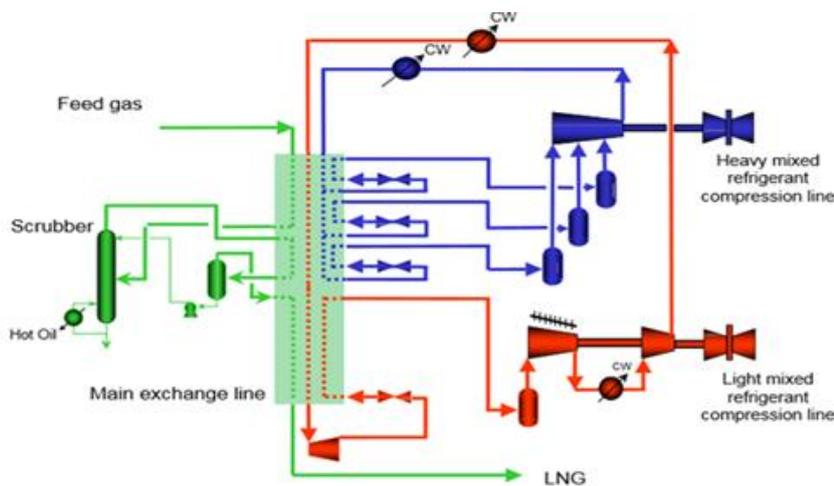


Figure 14 : Schéma représentatif du procédé IFP/Axens de liquéfaction du gaz naturel (Lim et Choi, 2012).

Procédé de Linde à mélange de réfrigérants : Le procédé Linde comprend trois échangeurs bobinés qui assurent simultanément le pré-refroidissement, la liquéfaction et le sous-refroidissement via un seul mélange de réfrigérants. Ce procédé est opérationnel en Chine avec l'unité Shan atteignant une capacité de 0,43 MTPA (Berger, et al., 2003).

Procédé Kryopak (Mokhatab, et al., 2014) comporte un étage de pré-refroidissement utilisant l'ammoniac ou le propane et un deuxième cycle avec un seul mélange de réfrigérants (Azote, méthane, éthane, propane et butane). Ce procédé est utilisé pour des unités à petites échelles (moins de 0,1 MTPA) comme l'unité Karratha en Australie produisant 200 t/jr.

Procédé OSMR (Optimized Single Mixed Refrigerant). Le procédé OSMR est un procédé à un seul mélange de réfrigérants couplé à un procédé d'absorption à l'ammoniac. L'utilisation de l'absorption améliore l'efficacité du procédé en comparaison avec les procédés usuels à un seul mélange de réfrigérants (Baguley, 2008).

C. Cascade à mélange de réfrigérants

Cascade de Linde /Stat-oil. Afin d'améliorer le rendement thermodynamique du cycle en cascade classique et apporter plus de flexibilité au procédé, Linde et Statoil proposent un cycle en cascade à mélange de réfrigérants (Figure 15).

Le procédé comporte trois circuits imbriqués en cascade, le premier circuit assure le pré-refroidissement via deux échangeurs à plaques. Le deuxième circuit permet la liquéfaction du gaz naturel et le dernier circuit le sous-refroidit par le biais de deux échangeurs bobinés. Cette technologie est mature depuis 2007 avec une seule unité construite par Aker en joint-venture avec Linde d'une capacité de 4,3 MTPA.

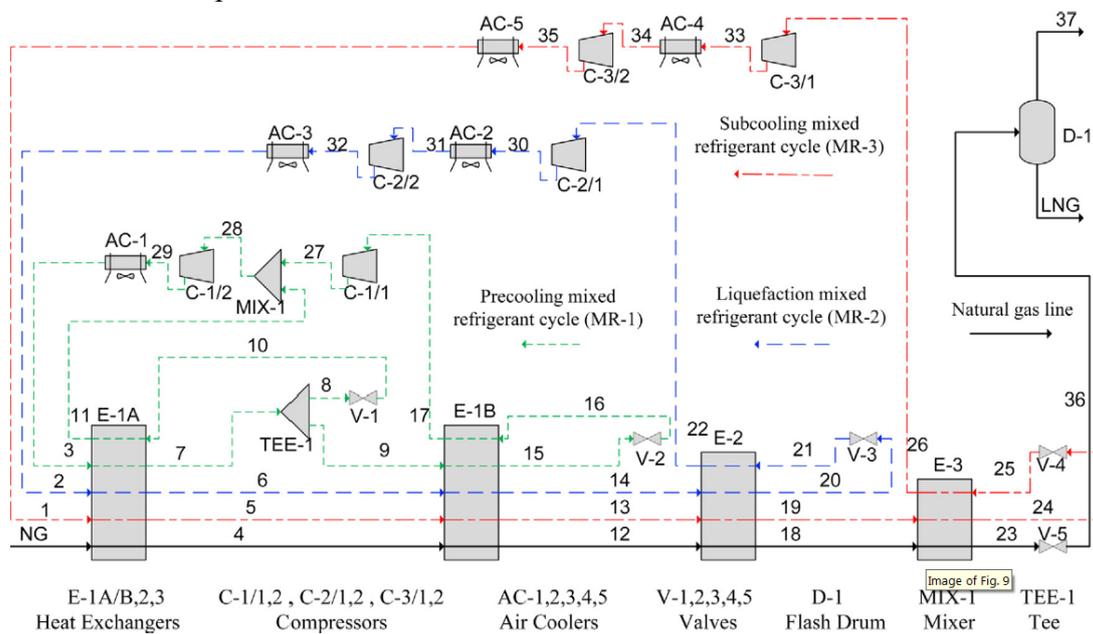


Figure 15 : Schéma représentatif de la cascade Linde/Statoil de liquéfaction du gaz naturel (Vatani et al., 2014).

Cascade Incorporée intégrale de Gaz de France (Flesch et Raillard 1998). Le procédé de cascade de Gaz de France comporte trois sous unités : une ligne de compression, une ligne de fractionnement, et une ligne d'échange. Dans l'unité de fractionnement, le mélange de réfrigérants est séparé en fluide lourd (pentane et butane) et fluide léger (Azote, méthane et éthane). Le fluide lourd assure le pré-refroidissement du gaz naturel et le fluide léger sa liquéfaction et sous-refroidissement. La ligne d'échange comprend deux larges échangeurs à plaques avec deux sections : une supérieure pour le pré-refroidissement du gaz naturel et une inférieure pour la liquéfaction et sous-refroidissement (Voir Annexe 1).

D. Procédés à cycle d'expansion de gaz

Le procédé à cycle d'expansion de gaz, utilise des turbo-détendeurs afin de produire le froid nécessaire à la liquéfaction. Le cycle débute par une compression, ensuite une détente isentropique du fluide réfrigérant. Le procédé peut être configuré avec un seul, deux ou multiples étages de détente (voir Figure 16). Ce procédé a la particularité d'opérer avec un seul réfrigérant, le méthane ou l'azote, ce qui exclut tout besoin d'ajustement de la composition et simplifie les opérations du procédé.

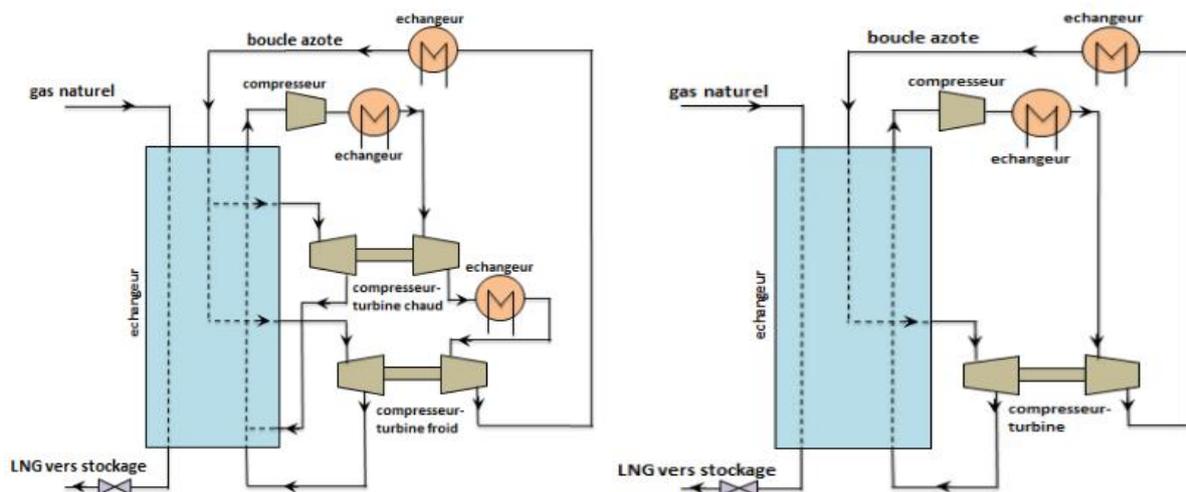


Figure 16 : Schéma représentatif d'un cycle à simple étage de détente de liquéfaction du gaz naturel (à droite) et à double étage de détente (à gauche) (Brèthes et Blanchard, 2014).

Procédé à double détente indépendante. Le procédé à double détente indépendante comporte deux cycles de réfrigération séparés, le premier utilise du méthane et le second de l'azote afin de diminuer l'écart de température entre la liquéfaction et le sous-refroidissement (Lim et al., 2012).

Procédé cLNG (compact LNG). BHP et Linde ont développé un procédé similaire aux cycles à un seul mélange de réfrigérants, mais en utilisant l'azote pure comme réfrigérant. Ce procédé opère sous deux niveaux de pression d'expansion d'azote afin d'améliorer l'efficacité énergétique du procédé. Pour refroidir suffisamment l'azote afin de descendre plus bas en température pour assurer la liquéfaction du gaz naturel, le procédé cLNG utilise l'auto-réfrigération et les turbo-détendeurs. La puissance générée de ces derniers est utilisée pour l'entraînement du compresseur du réfrigérant (Remelje et Hoadley, 2006).

Procédé Hamworthy (Mokhatab, et al., 2014). Ce procédé est généralement utilisé pour la liquéfaction du gaz naturel évaporé naturellement au cours du stockage. Il est utilisé dans divers réservoirs à membrane au Qatar. Le procédé se base sur le principe du cycle fermé à expansion d'azote.

Procédé OCX-2 (Open Cycle Expander Refrigeration) (Mokhatab, et al., 2014). Ce procédé a été développé par Mustang engineering. C'est un cycle ouvert avec expansion de gaz, utilisant le gaz d'admission comme réfrigérant. Le procédé a une capacité de 0,5 à 2 MTPA.

Procédé NICHE (Ha et Lee, 2014). C'est un procédé à expansion de gaz à deux étages de détente opérant avec un cycle en méthane et un second en Azote. Le cycle en méthane assure le pré-refroidissement du gaz et celui en azote la liquéfaction.

2.2. Description des procédés de liquéfaction du biométhane et du gaz naturel

La liquéfaction du biométhane est faite directement après traitement de polluants et autres gaz contenus dans le biogaz en instaurant un module de liquéfaction. La consommation d'énergie pour liquéfier le méthane peut varier en fonction des techniques d'épuration choisies. Certaines technologies d'épuration cryogénique en développement industriel permettent d'obtenir un biométhane pré-refroidi par rapport aux technologies conventionnelles (PSA, absorption).

Dans le cas de la liquéfaction suite à des technologies d'épuration autres que cryogéniques, divers procédés de liquéfaction du biométhane existent. On distingue, les cycles en boucle fermée et les cycles en boucle ouverte (Baillon et Hinge, 2012). La différence entre les deux cycles réside au niveau du fluide réfrigérant utilisé. Dans le premier cas, un autre réfrigérant externe au cycle est utilisé alors que dans le deuxième cas, le réfrigérant représente une partie du flux du gaz biogaz à l'entrée du système.

Les cycles à boucle ouverte. Les cycles en boucle ouverte incluent uniquement les cycles à expansion de gaz. Ces cycles sont généralement utilisés dans des stations régulatrices de la pression du réseau du gaz naturel proche du point d'injection où le gaz est reçu à haute pression et envoyé à basse pression. L'expansion du gaz est assurée par un turbo-détendeur. Une fraction du flux de gaz peut ensuite être liquéfiée avec un faible investissement et faibles coûts opératoires puisque le travail pris dans le turbo détendeur entraîne le compresseur (Johansson, 2008).

Les stations régulatrices de pression. La liquéfaction du biométhane peut se faire également dans les stations régulatrices de pression. Ces stations se situent à proximité du réseau du gaz et permettent de réduire la pression pour satisfaire la pression de distribution du gaz requise. Cette technologie a été développée par IDAHO National Laboratory (Johansson, 2008) et assure la liquéfaction de 20 à 30 % du gaz à injecter dans le réseau. Une fois le biogaz brut est

traité, il est séparé en deux flux A et B. le flux A est envoyé vers un turbo-détendeur qui assure simultanément la détente du gaz et la génération de travail par la turbine entraînant une chute importante de température. Le travail produit est ainsi utilisé pour comprimer le flux B. Ce dernier est acheminé vers un échangeur où il est refroidi par le flux A. Le flux A quittant l'échangeur à 4 bar, est injecté dans le réseau du gaz naturel. Le flux B est encore divisé en deux sous flux B₁ et B₂ ; le premier est détendu à travers une vanne et ensuite acheminé vers un échangeur où il est mis à contre-courant avec le second. A la sortie de l'échangeur le sous flux B₁ est liquéfié et B₂ est injecté dans le réseau du gaz. Ce type de technologie est généralement adopté quand la station de production et d'épuration du biogaz sont proches du réseau (Baillon et Hinge, 2012).

Les cycles à boucle fermée. Les cycles en boucle fermée incluent les cycles à expansion de gaz décrit précédemment ainsi que ceux à mélange de réfrigérants. Les fournisseurs des cycles à expansion de gaz sont le groupe Cryostar et Air liquide. Pour les cycles à mélange de réfrigérants, les principaux fournisseurs sont Hamworthy et le groupe Linde (Johansson, 2008).

Dans le cas d'épuration cryogénique avec des cycles à boucle fermée, on distingue trois technologies de liquéfaction matures : le procédé GTS, le procédé Acrion et le procédé Prometheus Energie (Baillon et Hinge, 2012).

Procédés GTS. Le procédé débute avec un prétraitement du biogaz par adsorption sur charbon actif afin d'éliminer le H₂S et une déshumidification par condensation jusqu'à 5 °C. Le biogaz est ensuite comprimé entre 17-26 bar, puis refroidi à -25 °C. A cette étape, la vapeur d'eau, le sulfure d'hydrogène, le dioxyde de soufre, les halogènes, les siloxanes et d'autres composants indésirables sont éliminés du biogaz. Afin d'affiner son traitement, le gaz est ensuite acheminé vers un filtre de coalescence et puis à travers une colonne d'adsorption avec oxyde de fer (SOXSIA®) qui élimine tous les contaminants restants. Pour l'enrichissement du biogaz, le dioxyde de carbone est éliminé suivant deux étapes. Dans la première, le biogaz sans soufre et déshumidifié est refroidi entre -50 et -59 °C où 30% à 40% du dioxyde de carbone est éliminé sous forme liquide. Le reste est séparé en diminuant la température jusqu'à -95 °C où le CO₂ est récupéré à l'état solide. Ce dernier est ensuite réchauffé pour être liquéfié. La liquéfaction du biométhane est ensuite assurée à -130°C et à une pression de 8 bar par un cycle en cascade. La première unité opérant avec cette technologie a démarré en 2010 à Vasberg en Suède avec une capacité de traitement de 100 Nm³/h de biogaz. Une deuxième a été installée à Stockholm en 2011 avec une capacité doublée. Une troisième unité a été développée en Chine pour traiter 2500 Nm³/ h de biogaz. Les deux unités installées en Suède présentent divers problèmes non détaillés dans la littérature (Baillon et Hinge, 2012).

Procédé Acrion⁵. La technologie Acrion combine l'épuration cryogénique et les technologies conventionnelles de traitement du biogaz. Après la déshydratation et la désulfuration du biogaz, ce dernier est acheminé vers une colonne de distillation où 70% du CO₂ est éliminé

⁵ www.acrion.com

par distillation cryogénique. Le reste du CO₂ est séparé du méthane par séparation membranaire, et le biométhane (méthane récupéré après séparation) est liquéfié dans un échangeur de chaleur. Ce procédé produit entre 650 et 1100 Nm³/hr de biométhane.

Procédé Prometheus-Energy. Le procédé comporte plusieurs modules, deux modules de prétraitement où la vapeur d'eau, le soufre et les composés organiques, y compris les siloxanes, sont éliminés. Un autre, assurant simultanément l'enrichissement du biogaz par givrage du CO₂ et pré-refroidissement du méthane et de l'azote. Le CO₂ séparé est évacué à l'atmosphère et le CH₄ est ensuite liquéfié via le cycle fermé de Brayton à fluide frigorigène (Baillon et Hinge, 2012). L'azote encore présent dans le flux du méthane est éliminé à travers une colonne flash. La première unité adoptant cette technologie a été construite aux USA en 2000.

Procédé Cryopur⁶(ASTRADE méthanisation) : Le procédé Cryopur est connu pour la décarbonation du CO₂ par givrage. Le biogaz subit tout d'abord un prétraitement afin d'éliminer les siloxanes et le sulfure d'hydrogène par absorption avec l'eau, il est ensuite déshumidifié par condensation ou givrage puis acheminé vers des échangeurs à ailettes pour la séparation par givrage/dégivrage du CO₂ du méthane. Le biométhane est récupéré à l'état gazeux avec une possibilité de liquéfaction à 15 bar et -117°C.

Procédés développés à micro-échelle⁷. En Australie, une unité de micro-liquéfaction développée par le groupe Linde est opérationnelle depuis août 2009 ; cette unité produit 50 tonnes/jour de GNL en utilisant un système à mélange de réfrigérants et procure du fuel pour 120 véhicules lourds. Des unités similaires ont été construites aux Etats Unis, en Angleterre et dans d'autres villes en Australie. Une autre unité a été développée en Chine utilisant les cycles à expansion de gaz à deux étapes. La technologie de Stirling Cryogenics utilisée par Verdemobil est l'une des technologies également utilisée à micro-échelle.

3. Méthodes d'analyse des procédés de liquéfaction et méthodes numériques d'optimisation

3.1. Méthodes d'analyse des performances des procédés

Pour l'amélioration des performances énergétiques des procédés industriels deux approches d'analyse ont vu le jour. La méthode dite de pincement (l'analyse de Pinch) et l'analyse exergetique. Il s'agit de deux approches à vocations différentes. La première vise à minimiser la consommation énergétique d'un procédé par l'intégration thermique, et la deuxième vise à quantifier les pertes thermodynamiques afin de prévoir les opérations unitaires à optimiser du système. Une brève description de la méthode de pincement est proposée dans le paragraphe suivant. Une description plus détaillée sera dédiée à la méthode d'analyse exergetique.

⁶ www.cryopur.com/la-technologie

⁷ <https://www.hydrocarbons-technology.com/projects/boc-tasmania>

A. Méthode de pincement

En 1970, face à l'augmentation accrue du prix du pétrole, les industriels s'interrogeaient sur la méthode efficace à adopter pour une consommation rationnelle de l'énergie dans leurs procédés. En se basant uniquement sur l'existant, les propositions d'amélioration restaient incomplètes, car elles ne prenaient pas en considération toutes les utilités dont dispose le site industriel. Les méthodes d'intégration ont alors vu le jour, afin de compléter cette lacune méthodologique et améliorer les performances des procédés. Parmi celles-ci, la méthode du pincement (Pinch Technology), développée à l'initiative de Bodo Linnhoff de l'université de Manchester (Favrat et Staine, 1994). En se basant sur une représentation graphique des courbes composites des flux du procédé, ainsi que sur le premier et le deuxième principe de la thermodynamique, la méthode permet tout d'abord d'identifier l'énergie minimale requise du système (EMR) puis les options techniques pour une récupération optimale d'énergie interne aux procédés sous forme d'utilités froides ou chaudes. Bien que la méthode graphique de Linnhoff permette également de concevoir un réseau d'échangeurs de chaleur, il est loin d'être le point optimal considérant l'aspect économique. La méthode a été ainsi numérisée permettant une flexibilité dans l'analyse de plus de configurations, et dans l'optimisation de procédés dans de nouveaux secteurs (Zoughaib, 2015). Dans l'industrie gazière, la méthode a fait notamment ses preuves pour l'optimisation des unités de liquéfaction du gaz naturel (Kamath et al., 2012 ; Marmolejo et al., 2013). Les divers travaux montrent que la méthode est limitée aux aspects thermiques sans apporter des pistes de valorisation de l'exergie dans les procédés.

La méthode de pincement est la méthode d'intégration thermique la plus utilisée pour l'amélioration de l'efficacité énergétique des procédés. D'autres approches alternatives ont été développées, parmi celles-ci la méthode d'analyse exergetique. La partie suivante est consacrée à la description détaillée de cette méthode.

B. Analyse exergetique

L'analyse exergetique permet d'évaluer l'efficacité thermodynamique d'un procédé industriel et d'identifier les causes principales de la dégradation de ces performances énergétiques (Kanoglu, 2002 ; Neveu, 2002).

B.1. Définition de l'exergie

L'exergie est définie comme étant « la quantité de travail maximale pouvant être produite, lorsque certaines matières évoluent vers un état d'équilibre en interagissant avec le milieu ambiant, moyennant un processus réversible » (Szargut et al., 1987). Autrement dit, lorsqu'un système est dans un état thermodynamique différent de son milieu ambiant, il pourra produire du travail.

L'exergie d'un système ou d'un flux dépend de leur état initial, ainsi que des conditions d'équilibre de l'environnement de référence. Avant d'établir une analyse exergetique, il est primordial de définir cet environnement (Dincer et Rosen, 2007). Le choix est arbitraire, Szargut et al., (1988) ont proposé dans leur ouvrage un état de référence de T_0 et P_0 de 25°C et 1 atmosphère.

B.2. Destruction d'exergie

Suivant le deuxième principe de la thermodynamique, l'exergie ne se conserve pas, elle est détruite durant un processus irréversible (Cziesla et Tasatsaronis, 2002). En négligeant la variation de l'énergie cinétique et potentielle, le flux d'exergie pour un système à l'état stationnaire peut être exprimé par la relation ci-dessous :

$$ex = (h - h_0) - T_0(s - s_0) \quad \text{Eq. 1}$$

h et s représentent respectivement l'enthalpie et l'entropie spécifiques, h_0 et s_0 sont les valeurs respectives de ces deux propriétés à la température de référence T_0 et à la pression aux conditions de référence, typiquement aux conditions ambiantes. Considérons le système de volume de contrôle donné par la Figure 17:

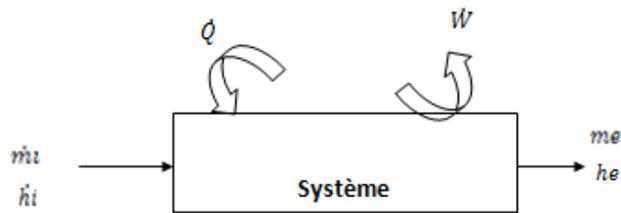


Figure 17 : Volume de contrôle général.

La destruction d'exergie pour ce volume de contrôle peut être exprimée par l'équation (Eq. 2) :

$$\Delta ex = \sum_j \left(1 - \frac{T_0}{T_j}\right) \dot{Q}_j - W + \sum \dot{m}_i ex_i - \sum \dot{m}_e ex_e \quad \text{Eq. 2}$$

Le premier terme représente le travail net pouvant être obtenu de \dot{Q}_j en utilisant un cycle réversible. Le deuxième terme est le travail net fourni au système et les deux derniers termes représentent le flux d'exergie entrant et sortant. Pour un système complexe, le calcul de la destruction d'exergie est effectué en analysant chaque équipement séparément. Le Tableau 3 présente les équations de calcul de la destruction exergetique par composant.

B.3. Rendement exergetique

Le rendement exergetique d'un système est défini comme étant le rapport entre le travail requis minimal par un système réversible et le travail réel fourni au système.

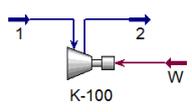
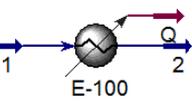
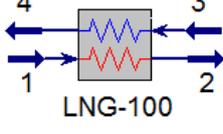
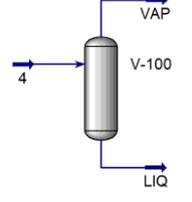
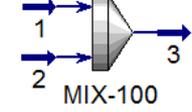
$$\eta_{ex} = \frac{W_{\min}}{W_{act}} \quad \text{Eq. 3}$$

$$\eta_{ex} = \frac{W_{act} - \sum \Delta ex}{W_{act}} \quad \text{Eq. 4}$$

$$\eta_{ex} = 1 - \frac{\sum \Delta_{ex}}{w_{act}} \quad \text{Eq. 5}$$

Avec w_{min} le travail requis minimal par un système réversible, w_{act} le travail réel fourni au système et $\sum \Delta_{ex}$ la somme des destructions d'exergie.

Tableau 3 : Calcul des destructions d'exergie par équipement.

Équipement	Symbole sur Aspen HYSYS	Destruction d'exergie (kW)
Compresseur		$\Delta ex = \dot{m}(ex_1 - ex_2) - W$ $\Delta ex = \dot{m}T_0(s_2 - s_1)$
Aero		$\Delta ex = \dot{m}(ex_1 - ex_2)$
LNG échangeur		$\Delta ex = \sum_{i=1}^n \dot{m}(ex_{i,in} - ex_{i,out})$
Séparateur flash		$\Delta ex = \dot{m}_4 ex_4 - \dot{m}_{VAP} ex_{VAP} - \dot{m}_{LIQ} ex_{LIQ}$
Vanne		$\Delta ex = \dot{m}(ex_1 - ex_2)$
Mixeur		$\Delta ex = \dot{m}ex_1 + \dot{m}ex_2 - \dot{m}ex_3$

B.4. Coefficient de performance

Le coefficient de performance d'un système représente un indice de comparaison des efficacités des systèmes. Pour un cycle idéal (cycle de Carnot), on définit un coefficient de performance de Carnot pour un système de réfrigération par :

$$COP = \frac{T_{SF}}{T_{SC} - T_{SF}} \quad \text{Eq. 6}$$

Avec T_{sf} = la température de la source froide (K), T_{sc} = la température de la source chaude (K).

Dans le cycle de Carnot, les températures des deux sources, chaude et froide sont considérées constantes. Supposant ainsi, que le transfert de chaleur s'effectue dans un intervalle à température constante. Chose qui n'est pas toujours vrai, car l'échange s'effectue par une variation de température lorsque l'on utilise des mélanges réfrigérants. Ce dernier point s'explique par la différence des points d'ébullition des composants du mélange. Dans ce cas, une température entropique moyenne (K) est définie sur la base de la chaleur échangée pour le calcul du COP Carnot et la relation 4 devient :

$$COP = \frac{T_{SFM}}{T_{sc} - T_{SFM}} \quad \text{Eq. 7}$$

Avec

$$T_{SFM} = \frac{\Delta H}{\Delta S} \quad \text{Eq. 8}$$

Pour un cycle normal irréversible, le coefficient de performance est fréquemment défini par :

$$COP = \frac{Q}{W} \quad \text{Eq. 9}$$

Q est la puissance thermique (kW) entre les deux flux (chaud et froid), W est le travail (kW) fourni au compresseur, ΔH est la différence d'enthalpie (kJ/kW) et ΔS la différence d'entropie (kJ.kW⁻¹.K⁻¹).

Bien que l'analyse exergetique soit utilisée comme approche alternative pour l'optimisation des procédés de liquéfaction du gaz naturel, l'optimisation basée sur cette méthode d'analyse n'est pas une optimisation proprement dite du procédé. En effet, l'analyse exergetique permet d'établir une analyse critique du système afin d'identifier les opérations unitaires destructrices d'exergie et elle peut éventuellement fournir les paramètres sur lesquelles il faut agir pour parvenir à la solution optimale (Neveu, 2002). Cette méthode sera adoptée par la suite pour localiser les irréversibilités des cycles proposées, et pour choisir les variables à prendre en compte pour l'optimisation de ces cycles, en se basant sur une méthode d'optimisation numérique parmi celles décrites dans la partie suivante.

3.2. Méthodes d'optimisation numérique des procédés de liquéfaction du gaz naturel

Les procédés de liquéfaction du gaz naturel sont des procédés énergivores, en effet pour liquéfier 1 kg de gaz naturel 1.118 kJ d'énergie est requise (Mokhatab et al., 2014). Pour cette raison, un grand intérêt pour l'optimisation de la chaîne de liquéfaction du gaz naturel a été observé dans la littérature durant les dernières décennies. Le procédé de liquéfaction du gaz naturel est un système, non linéaire, complexe, possédant plusieurs variables et des multi-contraintes strictes. La modélisation et l'optimisation de ce type de système est difficile en utilisant les méthodes d'optimisation conventionnelles. Plusieurs études ont été menées afin de résoudre ce problème (Austbo et al, 2014). Les méthodes d'optimisation sont classifiées

selon la formulation du problème à optimiser et on distingue entre l'optimisation déterministe, l'optimisation non déterministe, dite stochastique, et l'approche hybride qui est une combinaison des deux.

Méthodes d'optimisation déterministe : Les méthodes déterministes sont très rapides au niveau du temps de convergence, par contre elles convergent vers des optimums locaux. Les méthodes déterministes sont données dans Tableau 4 ci-dessous :

Tableau 4 : Méthodes d'optimisation déterministes (Austbo et al, 2014).

Méthodes déterministes
Méthode de programmation séquentielle quadratique
Programmation non linéaire mixte (MINLP)
Programmation mathématique non linéaire (NLP)
Méthode du gradient
Dérivée libre

Une minorité des auteurs a opté pour l'optimisation des procédés de liquéfaction avec la méthode MINLP. Ceci s'explique par le fait que le système est complexe et comporte des multiples équations décrivant l'équilibre thermodynamique des fluides. Ceci empêche de trouver un optimum significatif (Pham et al, 2016). Cependant, certains auteurs ont choisi la programmation séquentielle quadratique comme méthode d'optimisation déterministe principalement en raison de leurs propriétés de convergence rapide héritées des méthodes de Newton et de leur large éventail d'applicabilité. L'information du Tableau 5 résume l'ensemble des travaux sur l'optimisation des procédés de liquéfaction du gaz naturel avec l'information sur le procédé utilisé et la méthode d'optimisation déterministe appliquée (Austbo et al, 2014).

Méthodes d'optimisation stochastique : Les méthodes d'optimisation stochastiques sont les plus utilisées pour la résolution des problèmes d'optimisation des procédés de liquéfaction du gaz naturel, car quel que soit le degré de complexité du système, les possibilités d'atteindre un optimum global sont plus importantes. Les méthodes stochastiques utilisées sont présentées d'après (Austbo et al, 2014) :

- Algorithmes génétiques ;
- Recuit simulé ;
- Recherche Tabou ;
- Recherche évolutionnaire ;
- Essaims de particules ;
- KBO.

Tableau 5 : Travaux sur l'optimisation déterministe des procédés de liquéfaction du gaz naturel.

Auteur	Procédé de liquéfaction étudié	Algorithmes
Hasan et al. (2009)	C3MR	NLP
Zhang et Xu (2011)	Cascade	MINLP
Gong et al. (2004)	SMR	Simplex
Hatcher et al. (2012)	C3MR	BOX
Wang et al. (2013)	C3MR	BOX
Aspelund et al. (2010)	SMR	Nelder Mead simplex
Hwang et al. (2013a)	DMR	Programmation
Hwang et al. (2013b)	DMR	quadratique séquentielle (SQP)
Khan et al. (2012)	SMR	
Lee et al. (2011)	DMR	
Morin et al. (2011)	SMR/DMR	
Skaugen et al. (2010)	SMR	
Skaugen et al. (2013)	SMR	
Wahl et al. (2013)	SMR	
Wang et al. (2011)	C3MR	

Pham et al, (2016) ont utilisé l'algorithme Coggins (méthode de dérivée libre) pour minimiser la puissance consommée au niveau du compresseur d'un cycle à mélange de réfrigérant modifié. L'algorithme est codé sous VBA et fait appel à Aspen HYSYS. Le travail de compression a été réduit de 21,9%. (Xiaojun et al., 2016) ont étudié le design de trois nouveaux procédés de liquéfaction du gaz naturel (un cycle en cascade, un cycle avec un seul mélange de réfrigérant et un cycle avec expansion de gaz). L'optimisation des trois procédés proposés a été effectuée avec **l'algorithme génétique** sous Aspen HYSYS. Après optimisation, la puissance consommée a été réduite respectivement de 46%, 50% et 63% par rapport aux procédés conventionnels. La surface d'échange a été également réduite de 42%, 25% et 4%). Sanvandi et al., 2016 se sont focalisés sur l'optimisation de la composition d'un cycle C3MR pour minimiser la consommation énergétique au niveau du compresseur en suivant deux méthodes : la première est une **optimisation mathématique** via l'optimiseur de HYSYS et la deuxième méthode, développée par (Sanvandi et al., 2016) se base sur l'observation de la tendance régissant le comportement de la courbe composite des échangeurs par le biais d'une analyse de sensibilité paramétrique. Moein et al., 2015 ont travaillé sur l'optimisation du procédé APCI en utilisant **l'algorithme génétique** codé sous MATLAB et connecté à Aspen HYSYS. Ils ont étudié l'effet de la variation de la composition, de la pression du gaz naturel et de la température ambiante sur le travail fourni par le compresseur. Les résultats obtenus ont montré que le travail total varie linéairement en fonction de la composition du mélange dans leur système ; quand la température ambiante augmente, la composition doit être ajustée afin de minimiser le travail ; la variation de la pression du gaz naturel n'affecte que légèrement la composition du mélange, mais significativement le travail. (Moein et al., 2015) ont également appliqué **l'algorithme génétique** pour l'optimisation du procédé d'APCI. (Yuan et al., 2014) ont proposé un nouveau procédé de liquéfaction du gaz naturel à petite échelle (cycle à expansion de gaz avec pré-refroidissement avec du CO₂). L'optimisation a été faite par **l'optimiseur d'Aspen**

HYSYS pour minimiser le travail de compression. Une analyse exergetique a été également élaborée afin de déceler les irréversibilités. Xu et al., 2012 ont optimisé le procédé PRICO sous des températures d'entrée différentes dans la boîte froide du cycle en utilisant **l'algorithme génétique**. Khan et al. (2013) ont utilisé la méthode du recuit simulé codé sous MATLAB et connecté à UniSIM pour optimiser un procédé avec un seul mélange de réfrigérant. Khan et al. (2013) ont optimisé un procédé avec un seul mélange de réfrigérant et un C3MR avec la méthode **KBO**. En considérant la différence entre les températures d'ébullition des différents composants, ils ont amélioré l'efficacité énergétique des deux cycles. Skaugen et al., (2013) ont adopté un concept incluant les détails sur les échangeurs pour l'amélioration d'un procédé à un seul mélange de réfrigérant. Khalipour et al., (2013) ont eu recours à trois fonctions objectif différentes incluant la puissance consommée, l'efficacité exergetique et le coût opératoire pour l'optimisation de deux procédés C3MR. Ils ont conclu que la minimisation du travail fourni au compresseur est la meilleure fonction objectif à considérer pour ces cycles. Motazavi et al. (2012) ont amélioré les performances d'un C3MR en remplaçant le système d'expansion conventionnel par un nouveau système. Li et al. (2012) ont combiné l'algorithme génétique et l'analyse exergetique pour optimiser une unité de liquéfaction à grande échelle. Le Tableau 6 résume l'ensemble des travaux sur l'optimisation des procédés de liquéfaction du gaz naturel avec l'information sur le procédé utilisé et la méthode d'optimisation stochastique.

Tableau 6 : Synthèse des travaux d'optimisation stochastique des procédés de liquéfaction du gaz naturel (Austbo, et al., 2014).

Auteurs	Technologies	Algorithmes
Alabdulkarem et al. (2011)	C3MR	Génétique
Castillo et Dorao (2010)	SMR	
Del Nogal et al. (2008)	SMR	
Del Nogal et al. (2010)	MFC	
Hwang et al. (2013a)	DMR	
Hwang et al. (2013b)	DMR	
Lee et al. (2011)	DMR	
Li et al. (2012)	Brayton	
Sayyadi et Babaelahi (2011)	Brayton	
Shah et al. (2009)	Brayton	
Shirazi et Mowla (2010)	SMR	
Skye et al. (2009)	SMR	
Taleshbahrami et Saffari (2011)	C3MR	
Xu et al. (2013)	SMR(PRICO)	
Yoon et al.(2012)	SMR	
Xu et al. (2014)	SMR	
Xiaojun et al.(2016)	Cascade/SMR/Brayton	
Morin et al.(2011)	SMR	
Khan and Lee (2013)	SMR	Essaims de particules
Austbo et al. (2013)	SMR	Recuit simulé
Aspelund et al. (2010)	SMR	Recherche Tabou
Pham et al. (2016)	Pham et al. (2016)	Coggins
Pham et al. (2017)	Pham et al. (2017)	KBO

Des problèmes d'optimisation sont aussi résolus en combinant les deux méthodes (approche hybrides) (Alabdulkarem et al. 2011, Hwang et al., 2013a, 2013b ; Lee et al., 2011 ; Morin et al., 2011 ; Aspelund et al., 2010). En effet, dans ce type d'approche la méthode stochastique est utilisée pour l'optimisation du procédé et la déterministe pour affiner la solution trouvée.

Pour chaque problème d'optimisation on définit trois éléments : une ou plusieurs fonctions objectives, les variables et les contraintes. Pour la sélection d'articles représentée dans le Tableau 6, on prend juste ceux dont la méthode de résolution est l'algorithme génétique. Dans Tableau 7, on note pour chaque article la fonction objectif définie pour l'optimisation.

Tableau 7 : Fonction objectif utilisée dans les procédés de liquéfaction.

Auteurs	Fonction objectif
Alabdulkarem et al. (2011)	Minimiser la puissance de compression
Castillo et al. (2012)	
Del Nogal et al. (2008)	
Hwang et al. (2012)	
Hwang et al. (2013a)	
Hwang et al. (2013b)	
Lee et al. (2011)	
Shirazi et Mowla (2010)	
Tahouni et al. (2010)	
Taleshbahrami et Saffari (2010)	
Xu et al. (2013)	
Yoon et al. (2013)	
Li et al. (2012)	Maximiser l'efficacité exergetique
Sayyadi et Babaylahi (2011)	
Sayyadi et Babylahi (2010)	Minimiser le coût opérationnel
Tahouni et al. (2011)	
Tahouni et al.(2011)	Maximiser le profit Multi-objectif
Mehrpooya et al.(2010)	
Mehrpooya et al. (2011)	
Sayyaadi et Babelahi (2011)	

La méthode d'optimisation par algorithmes génétiques est la plus fréquemment retenue pour l'optimisation des procédés de liquéfaction du gaz naturel (Sangick, 2017) pour trois raisons : l'algorithme génétique possède le potentiel d'atteindre un optimum global en dépit de la complexité du problème d'optimisation, d'autant plus l'optimisation ne dépend pas du point de démarrage. Un avantage est la grande disponibilité de bibliothèques d'algorithmes génétiques gratuitement disponible au profit des utilisateurs. Pour ces raisons, cette méthode est retenue pour l'optimisation des différents cycles proposés dans les Chapitres qui suivent concernant la liquéfaction du biométhane. Cette méthode est détaillée dans le paragraphe qui suit.

Algorithme génétique : L'algorithme génétique est une méthode d'optimisation métaheuristique qui a été présenté pour la première fois en USA par le professeur John Holland en 1970 (Sangick, 2017). Le principe de l'algorithme repose sur l'utilisation de la

théorie de Charles Darwin de l'évolution des espèces en tant que technique d'optimisation globale (Lutton, 2006). Ces algorithmes s'inspirent des phénomènes biologiques liés à la nature de l'ADN pour définir leur paramètre. L'exécution de l'algorithme se fait principalement en trois étapes :

- **Première étape : génération de la population initiale (population des parents)**

Tout commence par la définition d'une population. Cette population contient plusieurs individus caractérisés par leur génotype ou chromosome (Collette et Siarry, 2002). Au début de l'optimisation la valeur initiale du génotype est prise de l'expérience. Les génotypes constituent les premiers individus (1^{ère} génération de population). Chaque individu représente les variables pour une solution potentielle du problème d'optimisation. Cette solution est représentée sous forme de codage binaire.

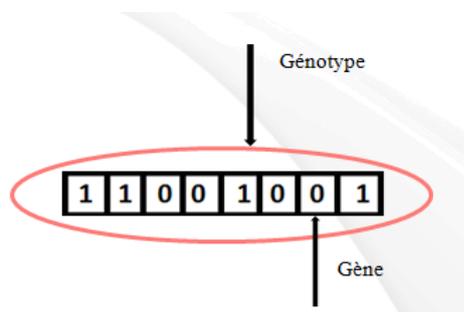


Figure 18 : Codage binaire d'un individu.

- **Deuxième étape : évaluation de la population**

Dans cette étape, on sélectionne les individus qui vont se reproduire selon leur capacité à résoudre le problème d'optimisation. En effet, on évalue l'efficacité de chaque individu en considérant une fonction d'évaluation (fitness). Ces individus constituent la génération suivante

- **Troisième étape : reproduction**

Une fois sélectionnés, les individus ayant une meilleure efficacité, on effectue un croisement en combinant deux individus : on choisit un point de croisement, à ce point-là on sépare le codage et on opère un changement des deux morceaux séparés afin d'obtenir deux nouveaux individus.

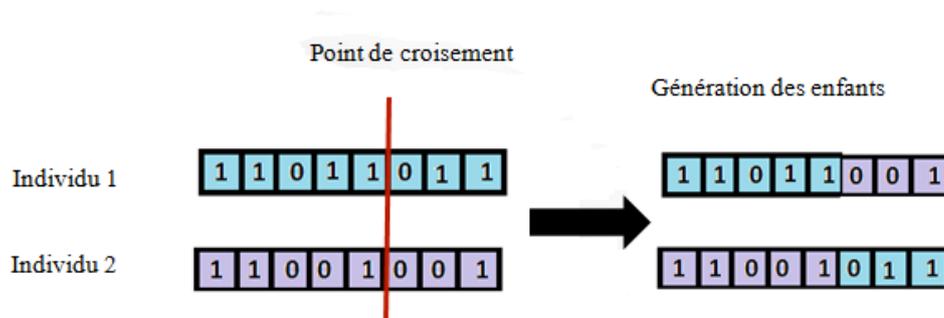


Figure 19 : Croisement du génotype de deux individus (Collette et Siarry, 2002).

Pour obtenir une plus grande diversification, on peut effectuer une mutation au niveau des gènes en changeant le 0 par le 1 dans le codage et vice versa.

Les différentes étapes de l'algorithme génétique sont regroupées dans l'organigramme ci-dessous.

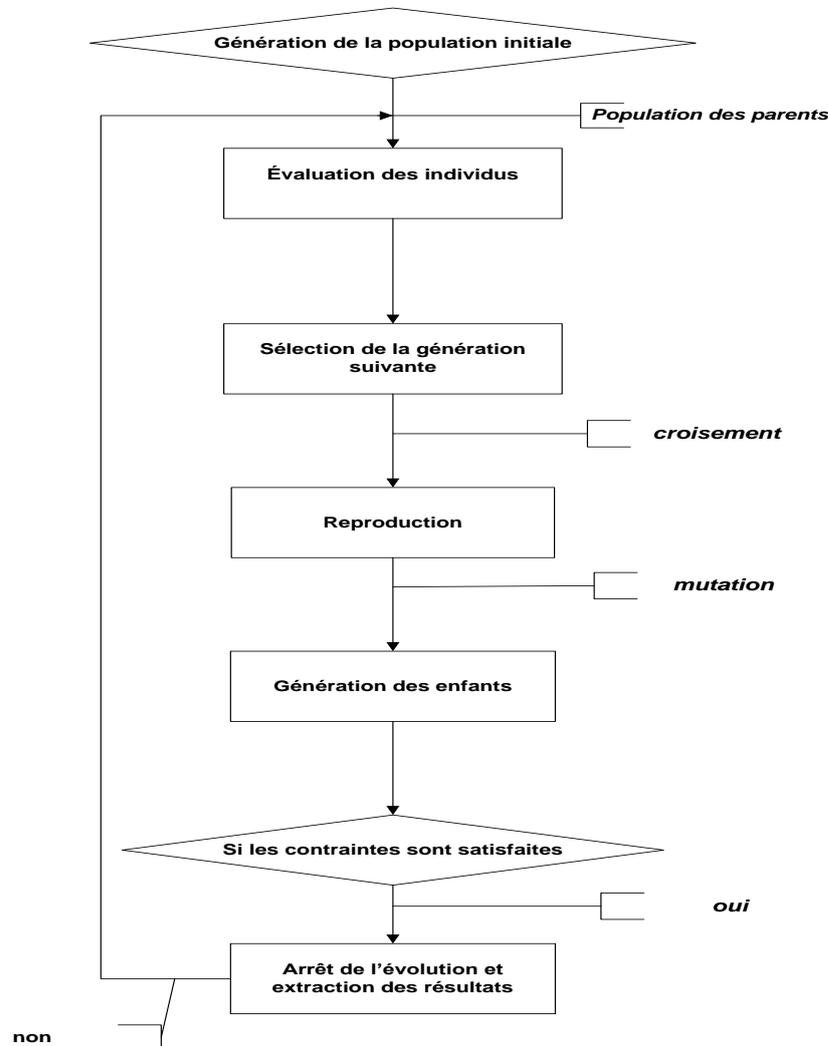


Figure 20 : Différentes étapes de l'algorithme génétique.

Conclusion

Pour comparer les technologies de liquéfaction du gaz naturel et du biométhane (bio-GNL), et déterminer le procédé le plus adapté à la micro-liquéfaction, on se base sur quatre critères : l'échelle ou taille de l'unité de liquéfaction, la complexité des composants, les performances du procédé et le coût d'investissement. En effet, la capacité de micro-liquéfaction est environ 200 fois inférieure à celle des unités de liquéfaction LNG. La Figure 21 représente les différentes échelles de liquéfaction et la capacité correspondante. D'après l'état de l'art, les procédés de liquéfaction du gaz naturel extrapolable à l'échelle du biométhane sont les cycles à mélange de réfrigérants et les cycles à expansion de gaz. Les cycles en cascade à réfrigérants purs sont plutôt adaptés à des unités à grande échelle. Ceci s'explique par le

nombre de composants requis (multiples compresseurs) qui rendent complexe et onéreuse son utilisation dans des petites échelles de liquéfaction (<15 Nm³/h).

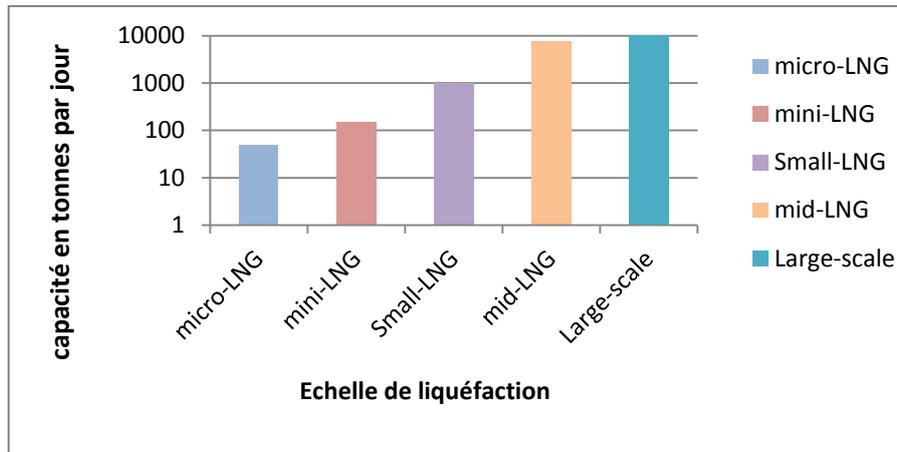


Figure 21 : Capacité de liquéfaction en tonne par jour en fonction de l'échelle de l'unité (Brèthes et Blanchard, 2012).

Les cycles à mélange de réfrigérants et à expansion de gaz sont les plus adaptés au biogaz. Les cycles à expansion de gaz sont simples à mettre en œuvre et robustes, mais avec une efficacité énergétique faible (voir Figure 22). Les cycles à mélange de réfrigérant ont l'avantage d'avoir un point de fonctionnement plus proche au glissement en température du méthane. Ils sont plus complexes que les cycles à expansion de gaz, mais avec une meilleure efficacité énergétique, (la consommation électrique du cycle à expansion de gaz de Cryostar est 0,63 kWh/Nm³ contre 0,43 kWh/Nm³ du cycle à mélange de réfrigérant de Hamworthy).

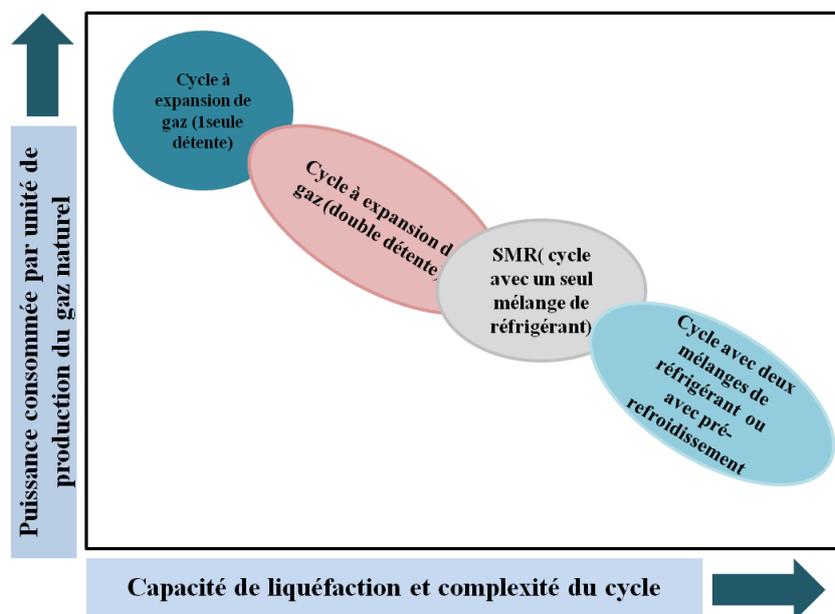


Figure 22 : Comparaison qualitative de l'efficacité et la capacité des cycles à expansion de gaz et des cycles à mélange de réfrigérant (Mokhatab et al., 2014).

En conclusion, les cycles en cascade à réfrigérants purs sont complexes et exigent un coût d'investissement élevé. Il serait pénalisant d'utiliser ces cycles à micro-échelle. Les cycles à expansion de gaz sont simples, certes, mais on risque d'avoir un rendement exergétique faible dans une filière aujourd'hui en naissance. Dans le cas particulier de la micro-liquéfaction, les coûts d'investissement et d'opération, ces derniers dépendant des performances, sont rédhibitoires. Ce qui semble judicieux dans notre cas est de développer un cycle à mélange de réfrigérants avec une architecture simple et l'appliquer à la micro-liquéfaction du biométhane.

Sur la base des informations collectées dans cet état de l'art concernant les procédés de liquéfaction du gaz naturel et du biogaz ainsi que leurs méthodes d'optimisation, il a été mis en évidence que les procédés de micro-liquéfaction sont très peu développés. Aucune simulation d'un procédé de liquéfaction n'a été élaborée et les informations fournies sont sommaires. Il a été souligné que l'approche d'analyse exergétique n'est pas une méthode d'optimisation directe, mais plutôt, une méthode qui permet d'établir un premier diagnostic du système. En complément à ce diagnostic, le choix d'une méthode d'optimisation numérique est nécessaire pour une amélioration optimale des procédés proposés dans le chapitre 2. A partir des méthodes d'optimisation numériques identifiées dans ce chapitre, l'algorithme génétique est le plus utilisé. L'utilisation simultanée de l'analyse exergétique et l'algorithme génétique sera adoptée dans le chapitre suivant. Cette thèse permettra ainsi de combler ce manque d'informations en proposant des cycles thermodynamiques peu énergivore pour la micro-liquéfaction du biométhane et de développer un outil d'optimisation des cycles à mélange de réfrigérants.

Chapitre 2 - Simulation, analyse exergétique et optimisation de cycles à mélange de réfrigérants adaptés à la micro-liquéfaction

1. Simulation et optimisation de différentes architectures de cycle à mélange de réfrigérant inflammables

Le but de ce chapitre est de proposer un cycle thermodynamique peu énergivore qui permette de liquéfier du biométhane (100% méthane) à micro-échelle (<15 Nm³/h). La revue bibliographique établie dans le premier chapitre, nous a permis d'identifier les procédés de liquéfaction du gaz naturel extrapolables à l'échelle du biométhane, qui sont : les cycles à expansion de gaz, et les cycles à mélange de réfrigérants. Le procédé retenu dans notre cas est le cycle à mélange de réfrigérants. Différentes architectures seront modélisées en se basant sur deux critères : l'inflammabilité du mélange de réfrigérant et le besoin de refroidissement du méthane en vue de sa liquéfaction. Ce dernier point peut être observé en s'appuyant sur le diagramme TH du méthane avec une isobare à 17 bar (Figure 23).

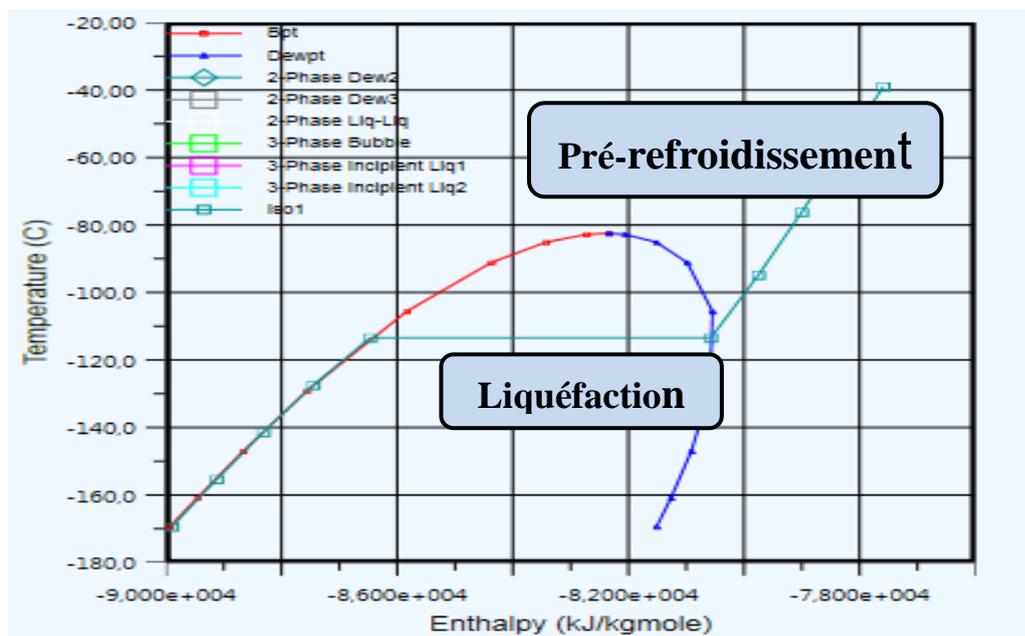


Figure 23 : Diagramme T-H du méthane.

En effet, le biométhane récupéré du site d'épuration est à une température de 30°C et une pression de 17 bar. Ce flux a besoin d'une utilité froide pour assurer le refroidissement du méthane de 30°C à -112°C (chaleur sensible), et pour assurer ensuite la liquéfaction (chaleur latente). Compte tenu de ces besoins, deux options se présentent pour le développement et le choix des architectures : un cycle à mélange de réfrigérants inflammable pour la chaleur sensible et latente, ou bien un cycle à mélange de réfrigérants inflammable pour la chaleur sensible et un groupe froid pour la chaleur latente. La deuxième option est de modéliser un cycle à mélange de réfrigérants non inflammable pour la chaleur sensible et latente ou bien un cycle à mélange de réfrigérants non inflammable pour la sensible et un groupe froid pour la latente.

Chaque architecture est modélisée et simulée sous Aspen HYSYS. Chaque simulation est accompagnée d'une analyse exergetique pour évaluer les voix d'améliorations possibles, et d'une optimisation énergetique avec l'algorithme génétique.

2. Cycle à mélange de réfrigérants inflammable

2.1. Description du procédé

La première architecture du procédé de liquéfaction du biométhane proposée opère avec un mélange de réfrigérants inflammable qui assure le pré-refroidissement et la liquéfaction du biométhane. Le flux du fluide frigorigène circulant dans le cycle se compose initialement de 39% mol de méthane, 41% mol d'éthylène (C_2H_4), 12% mol d'isobutane (C_4H_{10}) et 0,8% mol de propylène (C_3H_6). Le choix de la composition en réfrigérants du mélange est primordial pour le fonctionnement optimal du procédé. Le mélange est fait de fluides réfrigérants ayant une température de saturation vapeur différente, ce qui entraîne un glissement de température et une condensation partielle progressive à chaque étage du cycle. Le choix de ces réfrigérants est faite en partant des informations collectées de l'état de l'art et des consultations en interne du CES avec le personnel travaillant sur des procédés de liquéfaction. Dans la

Figure 24 est présenté le schéma de l'architecture du procédé de liquéfaction proposée. Le fluide frigorigène est tout d'abord comprimé de 3,5 bar à 30 bar, refroidi et condensé partiellement via l'échangeur LNG-100 à une température de $-10^{\circ}C$. Le flux du mélange réfrigérant biphasique (liquide-vapeur) est ensuite acheminé vers le premier séparateur (séparateur flash V-100). Le flux vapeur (V1) est condensé partiellement dans le côté condenseur de l'évapo-condenseur LNG-101 avant d'être acheminé au deuxième séparateur (V-101), et la chaleur de condensation libérée assure l'évaporation du flux liquide (L1) détendu isenthalpiquement par VLV-100. Le même processus s'enchaîne dans les échangeurs et les séparateurs de réfrigérants suivants du procédé. Le flux liquide (L2) est détendu de façon isenthalpique via le détendeur (VLV-101) et s'évapore à travers l'évapo-condenseur (LNG-102), alors que le flux vapeur (V2) est condensé totalement. Le flux liquide (L3) est détendu dans le détendeur (VLV-102) et à ce stade, la température est de $-138,4^{\circ}C$. Ce flux de fluide frigorigène à $-138,4^{\circ}C$ représente l'utilité froide du procédé de liquéfaction du méthane. En effet, après la détente du liquide (L3), ce dernier est acheminé vers l'échangeur LNG-104. Cet échangeur assure la liquéfaction du méthane pré-refroidi de $30^{\circ}C$ à $-109^{\circ}C$ via l'échangeur LNG-103. Cette température est choisie de telle façon que dans l'échangeur LNG-103 puisse avoir principalement lieu le pré-refroidissement (chaleur sensible) du biométhane, et dans l'échangeur LNG-104 ait lieu sa liquéfaction (chaleur latente).

Le biométhane liquéfié récupéré à la sortie du procédé est à une température de $-112,6^{\circ}C$ et une pression de 17 bar. Le choix de cette pression est imposé par la pression maximale que supporte les camions transportant du gaz naturel liquéfié qui est 20 bar et des recommandations du partenaire industriel. Dans la dernière partie de ce chapitre, sera discuté l'impact de cette pression sur les performances de la liquéfaction. Les hypothèses considérées lors de la simulation sont : le rendement polytropique du compresseur est de 80%, les pertes

de charge dans les colonnes flash et les échangeurs E-100 est supposée nulle, la température d'approche minimale au niveau des échangeurs est de 3°C.

2.2. Base thermodynamique et modèle thermodynamique

Le procédé de liquéfaction du biométhane est simulé sous Aspen HYSYS. Le calcul du COP de Carnot et de la destruction d'exergie est fait en se basant sur les résultats de simulation. Le choix du modèle thermodynamique est primordial pour la simulation du procédé. Ce dernier impacte les résultats d'équilibre entre les phases et, peut conduire à des résultats potentiellement faux si le choix est mal fait (Voir Annexe 1) pour la justification du choix du modèle). La base d'Aspen HYSYS fournit plusieurs modèles. Celui retenu est le Peng Robinson. En se référant à l'état de l'art, c'est le modèle le plus utilisé dans l'industrie gazière notamment dans la simulation des procédés de liquéfaction du gaz naturel (Austbo et al., 2014).

2.3. Analyse exergetique

2.3.1. Calcul de la destruction d'exergie

La destruction d'exergie par chaque opération unitaire a été calculée en utilisant, Excel, VBA et Aspen HYSYS. En effet, une feuille de calcul a été créée sous Excel, codée sous VBA. La subroutine VBA transfère les résultats de la simulation du procédé en Aspen HYSYS, à savoir l'enthalpie, l'entropie et le débit de chaque courant, dans des cellules appropriées dans la feuille de calcul créée sous Excel. Les valeurs d'exergie obtenues incluent la partie d'exergie physique et d'exergie chimique, malgré que cette dernière n'est que d'une magnitude très faible. La Figure 25 représente la répartition de la destruction d'exergie de la première architecture aux conditions opératoires précisées.

Les résultats obtenus montrent que 28% de la destruction totale d'exergie est distribuée entre les échangeurs LNG-100, LNG-101, LNG-103 et LNG-104 à cause des irréversibilités engendrées par l'écart de température entre les fluides dans les échangeurs. Les courbes composites relatives aux échangeurs permettent de visualiser graphiquement cet écart. La Figure 26 représente les courbes composites des échangeurs LNG-101 et LNG-102, récupérées d'Aspen HYSYS. Pour l'échangeur LNG-101, le flux chaud, en rouge, entre à -10°C et sort à -64°C. Le flux froid, en bleu, entre à contre-courant à -84,34°C et sort à -43,26°C. La température d'approche minimale est de 20,34°C. Pour l'échangeur LNG-102, la température d'entrée de l'échangeur, côté chaud, est de -64 °C. La température de sortie est de -89°C. Le flux froid a une température d'entrée de -107,9°C et une température de sortie de -98,14°C. La température d'approche minimale est de 18,29°C.

HP (bar)	30
BP (bar)	3,5
\dot{m}_{MR} (kg/h)	83,6

P= 17 bar
T= 25°C
 $\dot{m}_{\text{Biométhane}} = 7,219 \text{ kg/h}$

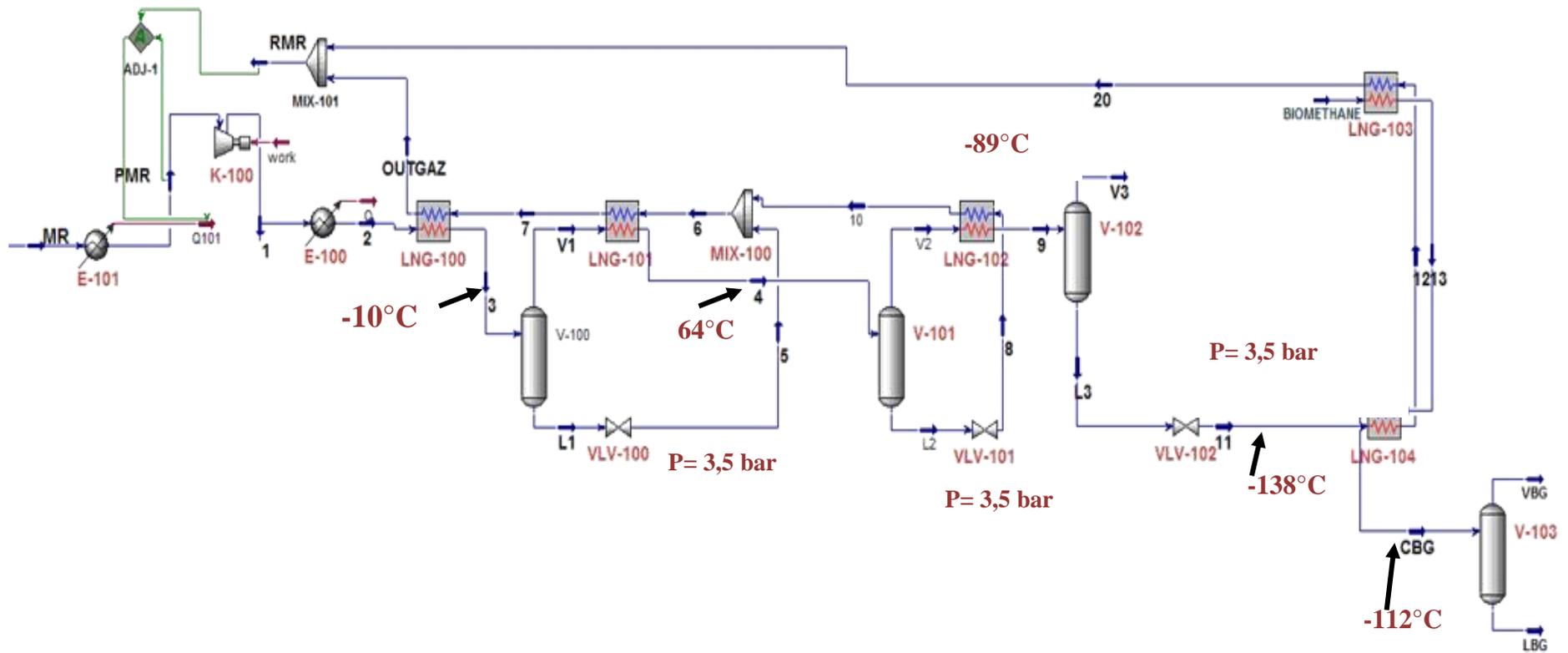


Figure 24 : Schéma représentatif de la première architecture de liquéfaction du biométhane (ASPEN HYSYS).

Équipements	Destruction d'exergie (kW)
Compresseur	1,154
LNG-100	0,424
LNG-101	0,825
LNG-102	0,185
LNG-103	0,07
LNG-104	0,157
V-100	0
V-101	0
V-102	0
V-103	0
VLV-100	0,315
VLV-101	0,644
VLV-102	0,198
MIX-100	0,275
MIX-101	0,172
E-100	1,276
E-101	0,063
$\sum \Delta ex$	5,758

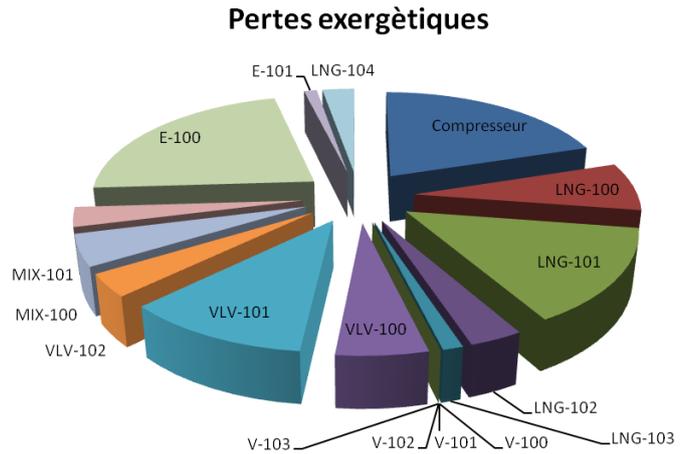


Figure 25 : Répartitions de la destruction d'exergie de la première architecture.

De la destruction d'exergie, 21 % est due à la compression et 23% aux échangeurs de pré-refroidissement E-100, vu l'écart entre la température du refoulement du compresseur et la température de pré-refroidissement. La détente isenthalpique au niveau des vannes VLV-100, VLV-101, et VLV-102 engendre une destruction d'exergie de 21%. Au niveau des colonnes flash et du mixeur, la destruction d'exergie est négligeable. Globalement, la destruction d'exergie s'élève à 5,758 kW, la puissance électrique fournie au système est de 6,557 kW et le rendement exergetique est de 13,6%.

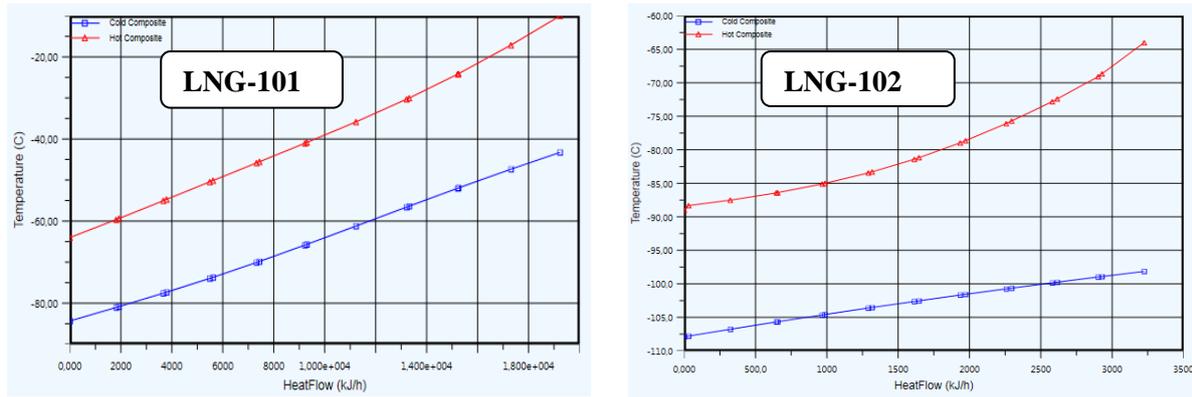


Figure 26 : Courbes composites relatives aux échangeurs LNG-101 et LNG-102.

2.3.2. Calcul du COP et du rendement exergetique

En se basant sur les équations 6, 7, 8 et 9 (Eq. 6, Eq. 7, Eq. 8, Eq. 9), définies dans la deuxième partie, le coefficient de performance de Carnot du cycle est :

$$COP = \frac{T_{SFM}}{T_{sc} - T_{SFM}} = 1,58$$

$$T_{SFM} = 185,86 \text{ K}$$

$$T_{sc} = 303,15 \text{ K}$$

Le coefficient de performance du cycle en considérant les irréversibilités est :

$$COP = \frac{Q_1 + Q_2}{W} = \frac{0,668 + 0,753}{6,557} = 0,216$$

Q_1 et Q_2 représentent respectivement les puissances thermiques (kW) transférées dans les échangeurs LNG-103 et LNG-104.

2.4. Optimisation de la première architecture

2.4.1. Définition de la fonction objectif

A partir de la revue bibliographique établie dans la deuxième partie, sur les méthodes d'optimisation des procédés de liquéfaction de gaz naturel, la méthode d'algorithme génétique est retenue pour l'optimisation des architectures proposées dans ce chapitre. Pour le codage de l'algorithme, une bibliothèque déjà présente dans la littérature sera exploitée (PIAKAI). Pour chaque problème d'optimisation, le choix de la fonction objectif, des paramètres à optimiser et des contraintes est primordial. PIKAIA cherche à maximiser une fonction définie par l'utilisateur dans un espace n-dimensionnel délimitée :

$$X = (x_1, x_2, \dots, x_n) \quad x_k \in [0,0, 1,0] \quad \text{Eq. 10}$$

Dans notre cas, l'objectif est de maximiser la quantité de méthane liquéfiée par rapport à la puissance électrique fournie au compresseur :

$$f_{max} = \frac{\dot{m}_{Biométhane}}{W} \quad \text{Eq. 11}$$

$\dot{m}_{Biométhane}$ est le débit massique (kg/h) du méthane liquéfiée (flux nommé LBG) et W la puissance électrique fournie au compresseur (kW).

2.4.2. Contraintes et variables de décision

L'optimisation du procédé est limitée par trois contraintes. La température d'approche minimale dans les échangeurs doit être supérieure à 2,7°C pour satisfaire la faisabilité technique des composants. La température du mélange à l'entrée du compresseur doit être supérieure à la température de rosée du fluide pour éviter la formation du liquide à l'entrée du compresseur et des possibles endommagements. La fraction vapeur du flux 9 doit être nulle. PIKAIA ne prend pas en considération ces contraintes. Ces dernières sont considérées comme des pénalités de la fonction objectif qui devient :

Maximiser

$$f_{max} = \frac{\dot{m}_{Biométhane}}{W} - \sum \text{pénalités} \quad \text{Eq. 12}$$

Ces pénalités sont programmées sous VBA comme suit :

- Si la température d'approche minimale est inférieure à 2,7°C, une pénalité de 5 est attribuée à cette contrainte.
- Si la température du mélange à la sortie du compresseur est supérieure à 135 °C, une pénalité de 2 est considérée.
- Si la fraction de vapeur du flux 20 est inférieure à 1, une pénalité de 5 est attribuée à cette contrainte
- Si la fraction de vapeur du flux 9 est supérieure à 0, une pénalité de 5 est considérée.
- Si le retour au compresseur contient du liquide, une pénalité de 5 est considérée également
- Si le flux du « LBG » n'est pas totalement liquéfié, une pénalité de 1 est considérée

Le choix des valeurs de chacune des pénalités a été faite en suivant la méthodologie suivante :

- Définition de la magnitude de la valeur de la fonction objectif sans pénalités ;
- Etude de sensibilité des résultats d'optimisation vis-à-vis des valeurs données aux pénalités. Il est observé que des valeurs inférieures à 5 pénalisent le temps de calcul de l'optimisation par algorithmes génétiques. Ceci est dû à une importante rétention d'individus (jusqu'à 50%) ne satisfaisant pas les contraintes techniques (pénalisés) des composants et du procédé. D'autre part, des valeurs de pénalités supérieures à 7 ne sont pas pertinentes. La magnitude de la fonction objectif et l'accumulation des pénalités conduisent à une réduction très importante d'individus pertinents (<5%) retenus entre les étapes d'optimisation. Il devient ainsi très fréquent l'atteinte de nombre d'itérations maximales sans solutions optimisées pour le procédé.

2.4.3. Choix des variables de décision

En se référant à l'analyse exergétique établie dans la partie précédente, on peut identifier les paramètres ayant une influence importante sur la destruction d'exergie totale. Cette méthodologie de choix de variables a été développée au centre par Bou Malham et al. (2017). La méthode introduit la dérivée de la destruction d'exergie comme un paramètre clé pour identifier les variables ayant le plus d'impact sur la destruction d'exergie totale et pour réduire le temps de calcul en limitant le nombre de variables non pertinentes. Dans notre cas, le but est de déterminer la priorité des variables à considérer pour l'optimisation des différentes architectures proposées. Pour ce faire, les variables suivantes sont considérées : la Haute Pression (HP), la Basse Pression (BP), le débit de chaque réfrigérant et la température de sortie du fluide à HP des échangeurs LNG-100, LNG-101 et LNG-102.

Pour chaque variable V , on calcule la variation de la perte exergétique relative à la variation de ce paramètre de V_1 à V_2 (voir Eq. 13).

$$\frac{\Delta Ex}{\Delta v} = \frac{\Delta Ex}{v_2 - v_1} \quad \text{Eq. 13}$$

Les résultats trouvés sont présentés sous forme vectorielle (Eq. 14). Pour analyser les valeurs deux aspects sont à considérer : l'ordre de magnitude de la valeur et son signe. Le premier indique le poids du paramètre sur la destruction d'exergie. Plus ce poids est grand, plus il sera pertinent de choisir la variable pour l'optimisation du procédé. Pour le deuxième, le signe de la valeur indique si la variation du paramètre choisi influence positivement ou négativement la destruction d'exergie totale.

$$\frac{\Delta Ex}{\Delta v} = \begin{bmatrix} 1,38 \\ 0,11 \\ 2,5 \\ 2,9 \\ 0,08 \\ -0,07 \\ 0,05 \\ -1,21 \\ -2,225 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} BP \\ HP \\ \dot{m}_{CH_4} \\ \dot{m}_{C_2H_4} \\ \dot{m}_{C_4H_{10}} \\ \dot{m}_{C_3H_6} \\ T_3 \\ T_4 \\ T_9 \end{bmatrix} \quad \text{Eq. 14}$$

Ces 9 variables sont des paramètres clés pour l'optimisation du procédé. La section suivante met en œuvre le processus d'optimisation et explique comment ces variables sont intégrées dans l'algorithme génétique.

2.4.4. Processus d'optimisation

PIKAIA est un sous-programme d'optimisation général basé sur l'algorithme génétique. Ce sous-programme a été développé au début sous Fortran et traduit par la suite sous le langage VBA (Charbonneau, 2002). L'optimisation s'effectue par le transfert de données entre Excel, Aspen HYSYS et PIKAIA. L'environnement de cette librairie a été adapté à notre cas d'optimisation. La subroutine PIKAIA crée une population de vecteurs de variables. Chaque vecteur se compose des valeurs aléatoires prises d'un intervalle spécifié pour chaque variable

(Tableau 8). En effet, dans l’algorithme génétique, on définit pour chaque variable une plage spécifiée de valeurs, l’évaluation de la fonction objectif s’effectue ainsi sur tout un intervalle et le risque de convergence vers un optimum local est par conséquent réduit (point fort de l’algorithme génétique). Pour la basse pression, l’intervalle est choisi pour avoir une température suffisamment basse pour la liquéfaction, celui de la HP pour éviter un taux de compression supérieur à 10 entre la HP et la BP, les débits pour avoir un flux de mélange de réfrigérant suffisant, avec les proportions molaires adéquates, pour la liquéfaction et les températures pour avoir une condensation progressive du mélange tout au long du cycle. Les valeurs aux bornes de chaque intervalle sont choisies comme suit : on encadre la valeur initiale par un intervalle plus large, puis on procède à un repérage d’intervalle autour de l’optimum trouvé. Une fois les vecteurs définis, une macro VBA les transmet un par un à Aspen HYSYS. Aspen HYSYS simule le procédé pour chaque vecteur et transfère les résultats de simulation à Excel. La macro VBA calcule la fonction objectif pour chaque vecteur et transmet les résultats à PIKAIA. La subroutine PIKAIA classe les résultats par ordre décroissant, puis procède à la reproduction de la nouvelle population en conservant certains vecteurs et en appliquant les opérations de croisement et de mutation. La Figure 27 décrit le processus.

Tableau 8 : Variables à optimiser et intervalles considérés.

Variables	Intervalle de variation
Haute pression du mélange (bar)	[25 ; 35]
Basse pression du mélange (bar)	[3 ; 4]
Débit méthane (kgmole/h)	[0,5 ; 1,8]
Débit éthylène (kgmole/h)	0,5, 1,7]
Débit isobutane (kgmole/h)	[0,15 ; 0,9]
Débit propylène (kgmole/h)	[0,15 ; 0,9]
T ₃ °C	[-10 ; -5]
T ₄ °C	[-70 ; -60]
T ₉ °C	[-95 ; -75]

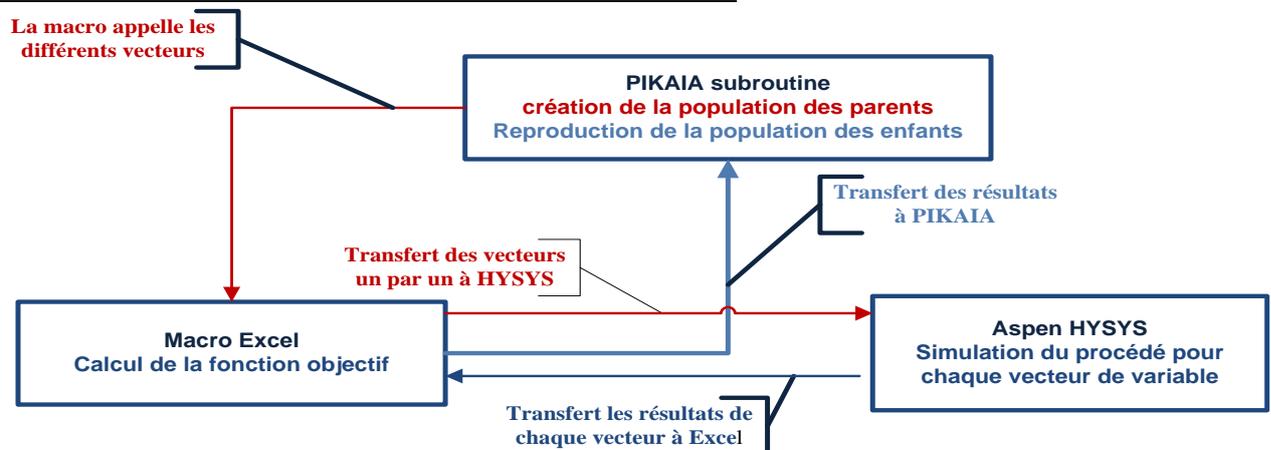


Figure 27 : Processus de connexion entre Excel, PIKAIA et VBA.

2.4.5. Résultats de l'optimisation

Les principaux résultats après optimisation sont donnés dans le tableau ci-dessous :

Tableau 9 : Comparaison des conditions opératoires et consommations d'énergie avant et après optimisation.

Variables	Valeur de base	Valeur optimisée	Taux de variation relatif
Haute pression (bar)	30	25,36	15,4%
Basse pression (bar)	3,5	3,061	12,5%
Débit méthane (kgmole/h)	1,18	0,53	54,23%
Débit éthylène (kgmole/h)	1,24	0,54	56,45%
Débit isobutane (kgmole/h)	0,242	0,153	36,77%
Débit propylène (kgmole/h)	0,363	0,296	18,45%
T ₃ (°C)	-10	-5,675	43,25%
T ₄ (°C)	-64	-60	6,25%
T ₉ (°C)	-89	-98	-9,1%

Résultats	Valeur de base	Valeur après optimisation
Puissance électrique au compresseur kW	6,557	3,24
Destruction totale d'exergie kW	5,763	2,558
kWh/kg de biométhane liquéfié	0,908	0,49

D'après les résultats obtenus, on observe un changement marquant apporté à la composition du mélange réfrigérant, la pression du refoulement du compresseur et la température du flux 3. Le débit du mélange a été réduit de presque 50%, la température du flux 3 a augmenté de 43,25% et la haute pression a été réduite de 15,4%. La destruction d'exergie a diminué de 46% (Figure 28) et par conséquent la puissance électrique fournie au procédé a été réduite de 50,3%.

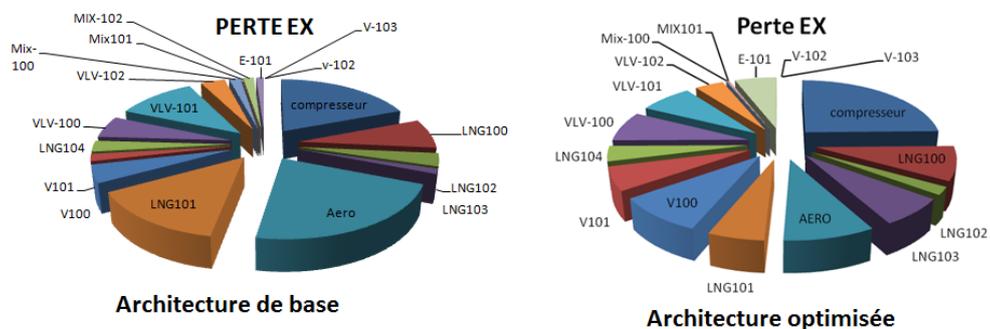


Figure 28 : Comparaison de la distribution de la destruction d'exergie entre le cycle de base et le cycle optimisé.

La destruction d'exergie au niveau du compresseur et de l'aéro-refroidisseur a diminué considérablement après optimisation (de 31% pour le compresseur et de 78% pour l'aéro). La destruction d'exergie au niveau de ces deux équipements est liée indirectement à la composition du mélange et aux conditions opératoires de pression. En effet, la composition du mélange ainsi que les conditions de pression conditionnent la température du retour au compresseur (T_{20}). Plus ce retour est froid, moins de destruction d'exergie est observée. Au niveau de l'aéro, la température de refoulement du compresseur a été réduite, par conséquent, l'écart entre cette température et la température de l'air de refroidissement a diminué et ainsi la destruction d'exergie a diminué. Globalement, la destruction d'exergie après optimisation est quantifiée à 2,558 kW, la puissance électrique du système est de 3,24 kW et le rendement exergetique est de 21%. Le COP du système est de 0,4 après optimisation contre 0.216 (simulation de base). La température d'approche minimale au niveau des échangeurs a diminué également. On peut le visualiser sur les courbes composites des échangeurs LNG-101 et LNG-102. La température d'approche minimale est passée de 20,34°C à 2,724°C pour l'échangeur LNG-101, et de 18,89°C à 1,622°C pour l'échangeur LNG-102 (voir Figure 29 et Figure 30).

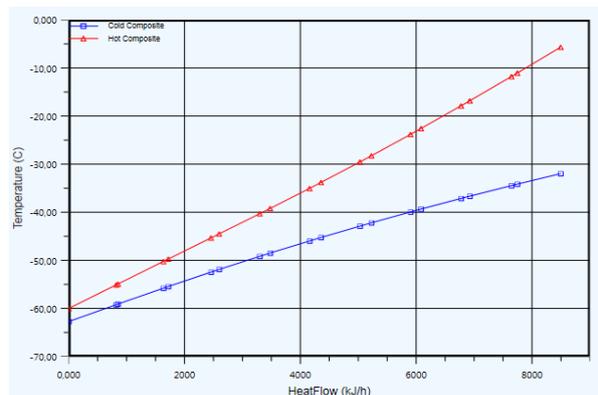
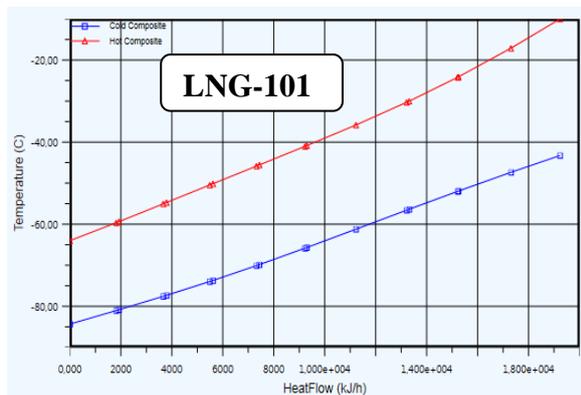


Figure 29 : Courbe composite de l'échangeur LNG-101 avant optimisation (à gauche), et après optimisation (à droite).

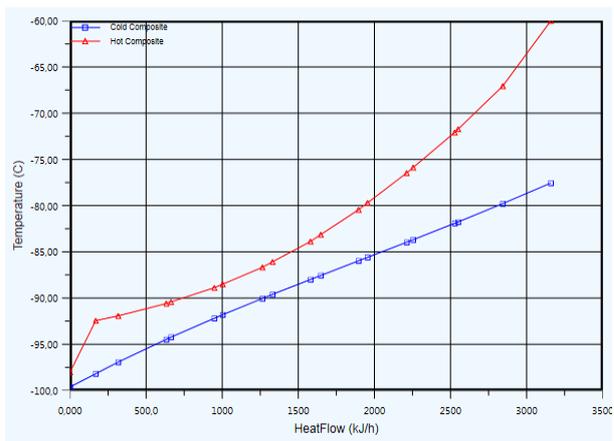
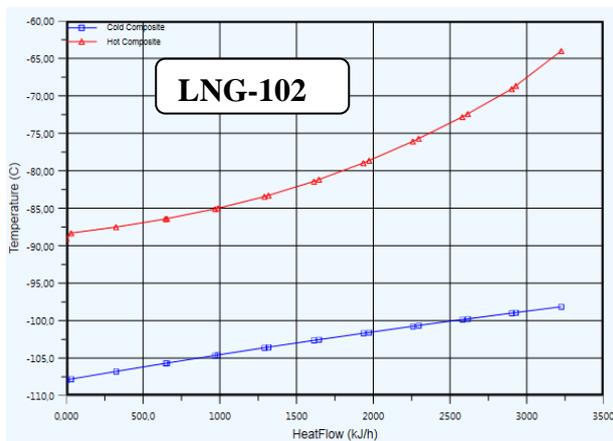


Figure 30 : Courbe composite de l'échangeur LNG-102 avant optimisation (à gauche), et après optimisation (à droite).

2.5. Description et optimisation de la deuxième architecture

La première architecture possède comme contrainte la liquéfaction totale du flux 9. Cette contrainte rend le système moins flexible à la variation de la composition et des conditions opératoires, surtout durant la phase de démarrage et d'arrêt de l'unité. Pour ces raisons, une deuxième architecture est proposée.

2.5.1. Description et évaluation des performances de la deuxième architecture

La deuxième architecture suit le même principe que la première. La différence réside après le séparateur V-102. Le flux vap3 est détendu puis acheminé vers l'échangeur LNG-103. Le flux 12 est mélangé au flux 8, constituant le courant froid de l'échangeur LNG-102. L'architecture opère avec le même mélange de réfrigérants. Le débit de ce mélange et celui du biométhane ainsi que les conditions opératoires sont représentées dans le Tableau 10.

Tableau 10 : Conditions opératoires considérées dans l'évaluation de l'architecture 2.

Débit réfrigérant (kg/h)	83,06
Débit méthane (kg/h)	7,219
HP ; BP (bar)	24 ; 3
T ₂ (température flux 2 en °C)	8
T ₃ (température flux 3 en °C)	-10
T ₄ (température flux 4 en °C)	-64
T ₉ (température flux 9 en °C)	-92
Pression entrée méthane (bar)	17

2.5.2. Calcul du COP et de destruction d'exergie

A. Calcul du COP

Pour le calcul du COP Carnot, du COP et du rendement énergétique, on se base sur les (Eq. 6, Eq. 7, Eq. 8). Le Tableau 11 regroupe les résultats :

Tableau 11 : Calcul du COP.

COP Carnot	1,64
COP	0,30
Rendement exergetique	18%

B. Calcul de la destruction d'exergie

Le calcul de destruction d'exergie a été effectué en considérant les équations du tableau 9 et les résultats sont présentés dans la Figure 31. La Figure 34 montre l'architecture 2.

Équipements	Destruction d'exergie (kW)
Compresseur	1,154
LNG-100	0,424
LNG-101	0,825
LNG-102	0,185
LNG-103	0,07
LNG-104	0,157
V-100	0
V-101	0
V-102	0
V-103	0
VLV-100	0,315
VLV-101	0,644
VLV-102	0,198
MIX-100	0,275
MIX-101	0,172
E-100	1,276
E-101	0,063
$\sum \Delta ex$	5,69

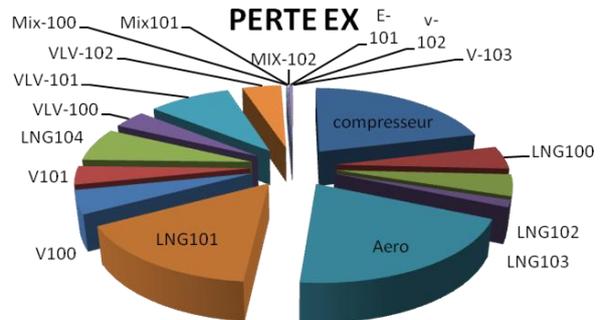


Figure 31 : Répartitions de la destruction d'exergie pour la deuxième architecture proposée pour la liquéfaction du biométhane.

Pour la deuxième architecture, on peut observer que 40% de la destruction totale d'exergie est due aux irréversibilités engendrées par la compression (compresseur) et le pré-refroidissement (l'aéro), 16% sont causées par le transfert de chaleur au niveau du premier échangeur et le reste des pertes sont distribuées entre les autres équipements. Au niveau de l'échangeur LNG-101, la destruction d'exergie est due à l'écart de température entre les deux flux, chaud et froid. La température d'approche minimale est de 20°C. On peut visualiser cet écart sur la courbe composite (voir Figure 32) La destruction totale d'exergie s'élève à 5,69 kW, la puissance électrique fournie au système est de 6,287 kW et le rendement exergetiques est de 18%.

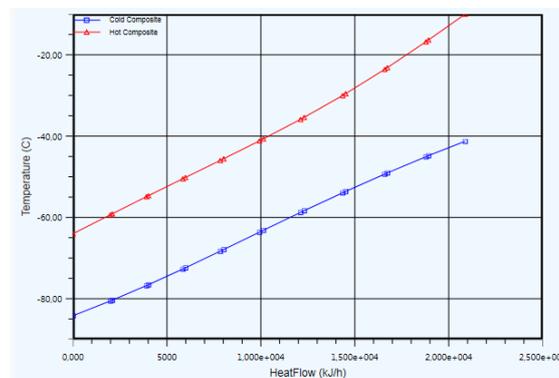


Figure 32 : Courbe composite de l'échangeur LNG-101.

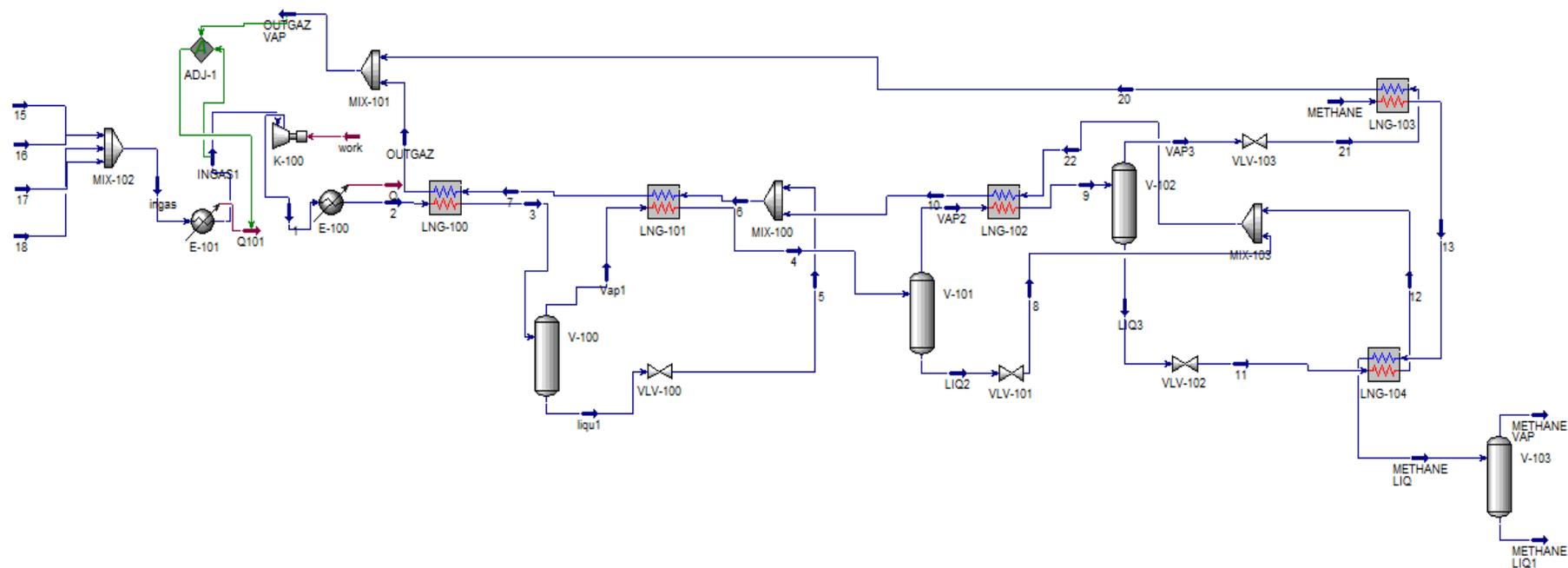


Figure 33 : Schéma représentatif de la deuxième architecture de liquéfaction du biométhane (Aspen HYSYS).

2.5.3. Optimisation de la deuxième architecture

L'optimisation du deuxième cycle a été également effectuée en utilisant l'algorithme génétique et en suivant les mêmes étapes que la première architecture. Dans le Tableau 12 sont présentées les valeurs de base et celles après optimisation des variables. Dans le Tableau 13 sont présentés les résultats de l'optimisation sur les performances du système.

Tableau 12 : Comparaison entre les valeurs de base et les valeurs optimisées des conditions opératoires.

Variables	Valeurs de base	Valeurs optimisée	Variation relative
Haute pression (bar)	24	25,22	-5,08%
Basse pression (bar)	3	2,878	4,06%
Débit CH ₄ (kgmole/h)	1,18	1,018	13,72%
Débit C ₂ H ₄ (kgmole/h)	1,24	0,5915	52,29%
Débit C ₄ H ₁₀ (kgmole/h)	0,242	0,3004	-24,13%
Débit C ₃ H ₆ (kgmole/h)	0,363	0,2685	26,03%
T ₃ (°C)	-10	-11,38	-13,8%
T ₄ (°C)	-64	-69,04	-7,875%
T ₉ (°C)	-92,64	-92	0,69%

Tableau 13 : Comparaison des performances du procédé par l'« architecture 2 ».

Résultats	Valeur de base	Valeur optimisée	Taux de variation relatif
Puissance au compresseur kW	6,287	4,255	32,32%
$\sum \Delta ex$ kW	5,692	3,70	35%
kWh/kg de biométhane liquéfié	0,87	0,68	21,84%

Pour l'optimisation de la deuxième architecture, les changements majeurs concernent surtout le débit de l'éthylène et du propylène. Leurs débits ont été réduits respectivement de 52% et de 26,03%. Les performances du système ont connu une amélioration marquante : la puissance électrique fournie au cycle a été réduite de 32,32% et la destruction d'exergie a été diminuée de 35%. L'écart de température au niveau de l'échangeur LNG-101 a été réduit. La température d'approche minimale est passée de 20°C à 2,7°C (voir Figure 36).

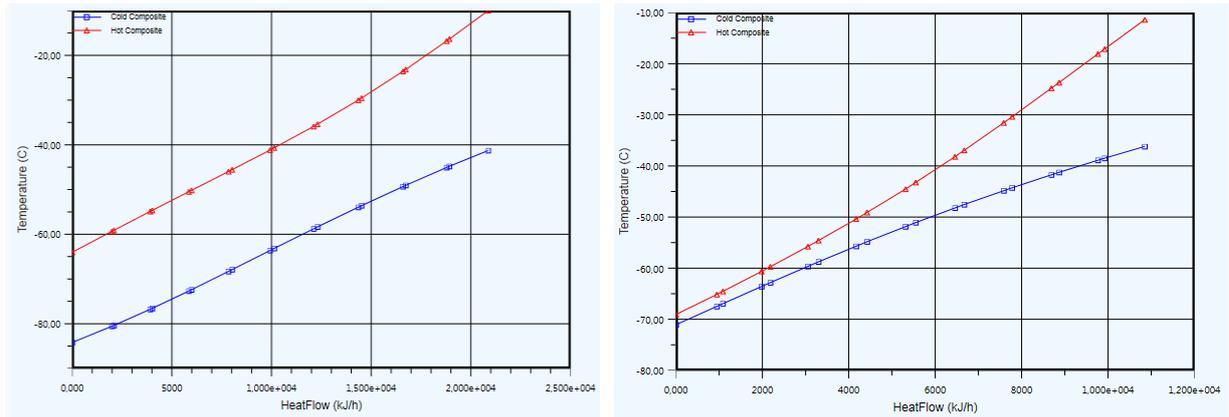


Figure 34 : Comparaison de la courbe composite avant optimisation (à droite), et après optimisation (à gauche) de l'échangeur LNG-101.

L'utilisation simultanée de l'analyse exergetique et l'algorithme génétique nous a permis d'améliorer les performances des deux architectures proposées et les résultats sont concluants. Pour les deux procédés, la puissance électrique a été réduite respectivement de 32,32% et 21,84%, en comparaison avec les cas de référence. Cette méthodologie d'optimisation, sera par conséquent appliquée sur l'ensemble des procédés proposés. Dans la section suivante, une autre architecture sera proposée. Cette architecture est une combinaison des architectures 1 et 2, et un cycle froid (style Stirling).

2.6. Description et optimisation de la troisième architecture

L'objectif de cette partie est d'évaluer l'impact de la combinaison de deux cycles froids sur la performance de liquéfaction. Pour ce faire, nous allons considérer les deux premières architectures présentées précédemment. La combinaison se fera comme suit : Le premier cycle, similaire aux deux premières architectures, procure le froid nécessaire pour le pré-refroidissement du biométhane à 17 bar. Le deuxième cycle, le groupe froid (Machine Stirling) est considéré pour assurer la liquéfaction à la même pression. Le groupe Stirling sera modélisé par un simple échangeur. L'évaluation des performances de ce groupe froid sera établie à partir d'une feuille de calcul présente dans l'interface d'Aspen HYSYS. Le but est de calculer la puissance électrique nécessaire pour assurer la liquéfaction du flux de méthane pré-refroidi. Au début, les variables nécessaires pour effectuer le calcul sont importées dans des cellules appropriées (imported variables) (voir Figure 35).

Cell	Object	Variable Description
A1	METHANE LIQ	Mass Enthalpy
A2	METHANE LIQ	Mass Entropy
A3	methane liq1	Mass Enthalpy
A4	methane liq1	Mass Entropy
A5	E-102	Duty

Figure 35 : Variables nécessaires pour le calcul de la puissance électrique.

La Figure 36 explicite les différentes étapes du calcul effectué, avec les équations correspondantes à chaque étape. Au début, le COP Carnot (COP_C) du cycle Stirling est calculé. La température de la source froide (T_{SFM}) est une température entropique moyenne, qui représente le rapport de la différence d'enthalpie et d'entropie du flux (METHANE LIQ) et (methane liq1). Ensuite, on calcule le COP réel (COP) et la puissance électrique (Q_{elect}). La valeur de cette puissance est exportée directement sur le schéma du procédé (voir Figure 37).

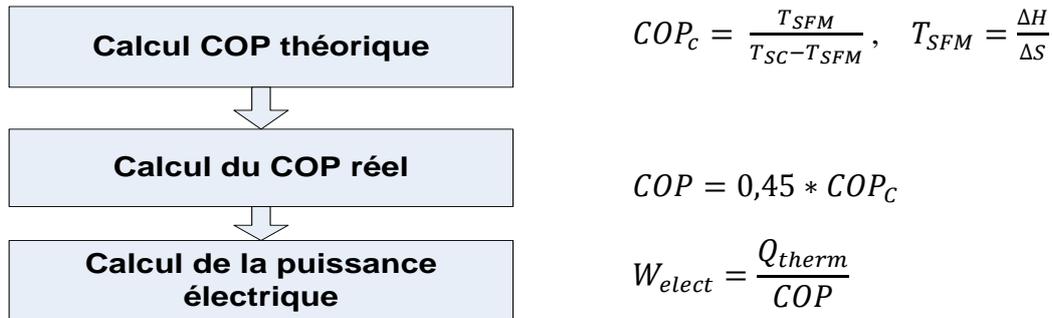


Figure 36 : Les étapes de calcul de la puissance électrique utile pour la liquéfaction du flux de biométhane pré-refroidi.

Pour le calcul du COP réel, nous avons considéré que le COP est égal à 45% du COPc. C'est la tendance trouvée dans le monde industriel.

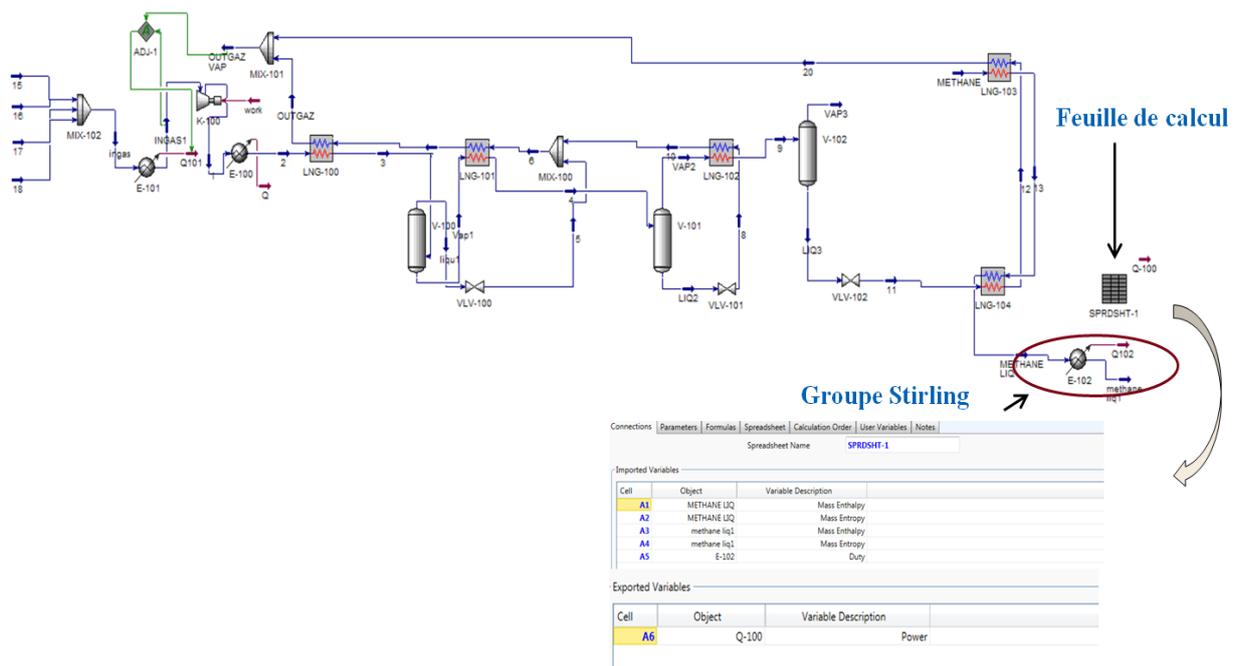


Figure 37 : Schéma représentatif de l'architecture 1 combinée au groupe froid (Machine de Stirling).

2.7. Evaluation des performances des liquéfacteurs hybrides Cascade-Stirling

Les performances du groupe Stirling associé aux deux premiers cycles sont présentées dans le Tableau 14. Le COP Carnot des deux cycles est différent, cela est dû à la différence entre les températures des deux cycles au point (METHANE LIQ). Les performances des cycles hybrides (cycle à mélange de réfrigérant et Stirling) sont présentées dans le Tableau 15.

Tableau 14 : Performances du cycle Stirling.

Cycles froids	COP Carnot	COP réel	Puissance électrique (kW)
1 ^{er} cycle	1,17	0,53	1,364
2 ^{ème} cycle	1,94	0,87	1,21

Tableau 15 : Performances des cycles hybrides.

Cycles combinés	Cop réel	Puissance consommée	kWh/kg de méthane liquéfié
1 ^{er} cycle	0,42	1,97	0,46
2 ^{ème} cycle	0,496	1,021	0,39

Les résultats de l'analyse exergetique sont présentés dans le Tableau 16. La cartographie de la répartition de la destruction d'exergie des deux cycles hybrides est illustrée par la Figure 38. Un tableau comparatif des performances des architectures est présenté ci-dessus (Tableau 17).

Tableau 16 : Résultats du calcul de la destruction d'exergie par composant et pour l'«architecture 1 + Stirling» (Cycle 1) » et l'«architecture 2 + Stirling» (Cycle 2) ».

Equipements	Destruction d'Ex (kW)/1 ^{er} cycle	Destruction d'Ex (kW)/2 ^{ème} cycle
Compresseur	0,4	0,39
E-101	0,09	0,003
E-100	0,2	0,086
LNG-100	0,13	0,118
LNG-101	0,11	0,205
LNG-102	0,047	0,248
LNG-103	0,26	0,054
LNG-104	0,008	0,015
VLV-100	0,11	0,07
VLV-101	0,15	0,135
VLV-102/VLV-103	0,06/0	0,018/0,34
Mix-101/103	0,14/0	0,19/0,004
Mix-100	0,10	0,15
V-100	0	0
V-101	0	0
V-102	0	0
V-103	0	0
E-102	0,61	0,73
$\Sigma \Delta e$ (kW)	2,45	2,58

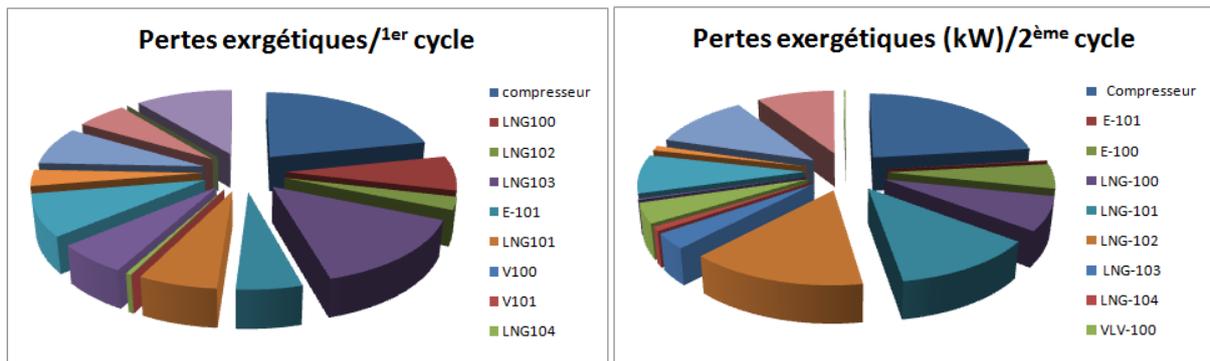


Figure 38 : Cartographie de la destruction d'exergie des deux cycles.

Tableau 17 : Comparaison des performances des architectures.

				COP	kWh/kg de CH ₄ Liquéfié
Méthane			Architecture 1	0,38	0,59
P(bar)	T(°C)	ṁ(kgmole/h)	Architecture 2	0,3	0,68
17	25	0,45	Architecture 3/1 ^{er} cycle	0,42	0,46
17	25	0,45	Architecture 3/2 ^{ème} cycle	0,49	0,39

D'après les valeurs dans le Tableau 17 Nous pouvons constater que la combinaison de l'architecture 1 et du groupe froid (Machine de Stirling) impacte positivement les performances du procédé. En effet, la dissociation du pré-refroidissement et de la liquéfaction engendre moins de destruction d'exergie au niveau de l'échangeur LNG-104 (échangeur assurant la liquéfaction dans la première architecture sans Stirling). Énergétiquement, l'architecture hybride est la plus performante, cependant économiquement le choix de cette configuration est pénalisant à micro-échelle : En effet la machine STIRLING nécessite une maintenance lourde, ce qui génère un CAPEX onéreux. Une évaluation économique de cette architecture sera établie dans la deuxième partie du chapitre 4.

2.8. Etude d'impact de la pression du biométhane sur les différentes architectures

Cette partie a pour objectif d'étudier l'impact de la variation de la pression du biométhane sur la performance des architectures proposées pour sa liquéfaction. La pression du biométhane considérée précédemment est de 17 bar. Le but de cette analyse est de prévoir le comportement du procédé, dans le cas où la pression du biométhane issu des compresseurs

du site de valorisation est inférieure à 17 bar (10 et 5 bar). Ceci peut être dû à une moindre production de biogaz et une perte de pression dans le système en amont des compresseurs de biométhane. Seuls les résultats de la première architecture seront présentés dans cette partie (voir Tableau 18), les résultats de l'architecture 2 et des deux cycles combinés seront mis en Annexes. L'analyse de sensibilité paramétrique est effectuée sur les architectures aux conditions opératoires optimisées. Une optimisation est relancée par la suite, après chaque variation de pression afin d'identifier les ajustements nécessaires à faire dans les conditions opératoires.

Tableau 18 : Impact de la variation de la pression du biométhane sur les performances de l'architecture 1 optimisée.

Méthane			ARCHITECTURE 1			
P (bar)	T (°C)	ṁ (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,41	25,36	0,4	3,240	0,49
10	25	0,39	25	0,28	4,8	0,76
5	25	0,25	24,35	0,2	4,813	1,19

A 10 bar la température de liquéfaction du méthane est de (-125°C), à 5 bar cette température atteint (-137,96°C) (voir Figure 39). Cette baisse de pression engendre un pincement au niveau de l'échangeur LNG-104 (voir Figure 40). Pour forcer le système à atteindre des températures plus basses et palier ce pincement, des rectifications sont à apporter au cycle. Une augmentation du débit du réfrigérant et une réduction de la basse pression sont requises.

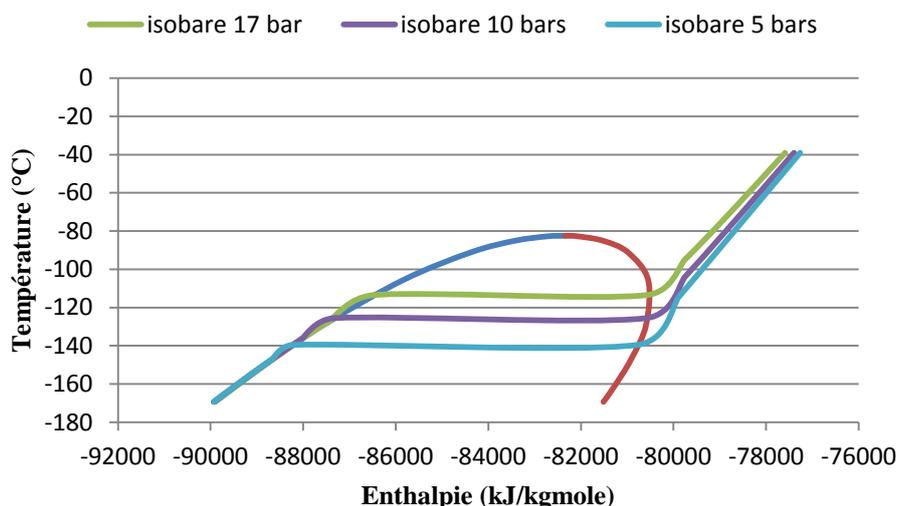


Figure 39 : Diagramme TH du méthane.

Ces changements, entraînent une variation croissante du taux de compression par conséquent une dégradation des performances des différentes architectures. Cette tendance de résultats a été relevée au niveau des différentes architectures (voir Annexe 2). En diminuant la pression

du biométhane, la quantité du biométhane liquéfiée a été réduite de 29% à 10 bar, et 34% à 5 bar.

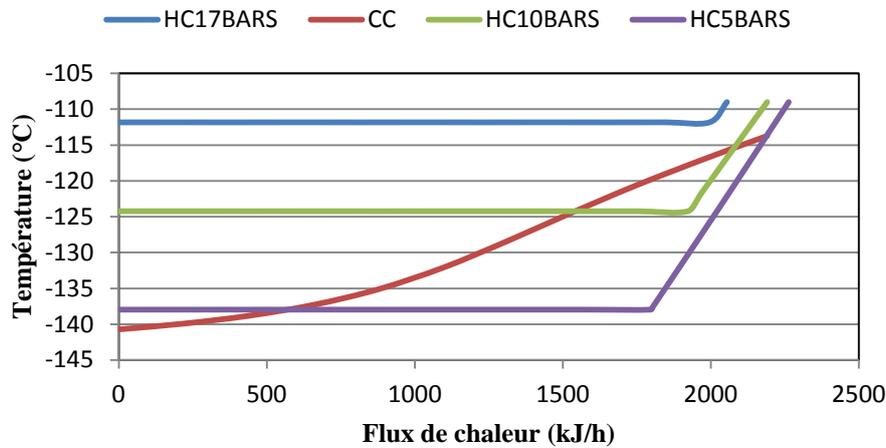


Figure 40 : Courbes composites méthane/mélange de réfrigérant de l'échangeur LNG-104 de l'architecture 1 et 2 à 17, 10 et 5 bar.

La Figure 41 représente la variation de la consommation électrique des différentes architectures (en kWh/kg de biométhane liquéfié) et la variation du COP en fonction de la pression (à 17, 10 et 5 bar). Comme expliqué précédemment, cette figure démontre la dégradation des performances des différents cycles, en diminuant la pression du biométhane. La configuration optimale est l'architecture 2 combinée au cycle de STIRLING.

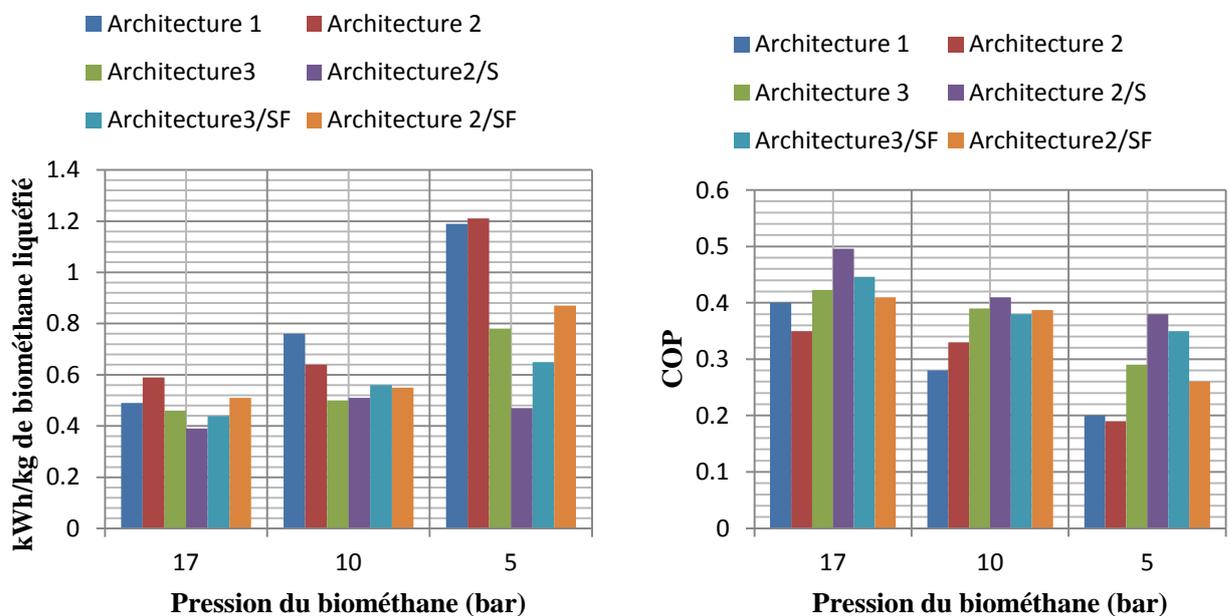


Figure 41 : Consommation des différentes architectures en kWh/kg de biométhane liquéfié à gauche, et variation du COP à droite, en fonction de la pression.

Dans cette analyse de sensibilité paramétrique, nous avons évalué également l'impact de la configuration des deux cycles hybrides sur la performance de la liquéfaction (voir Tableau 19

et Tableau 20). Pour ce faire, nous avons procédé de deux manières différentes : la première, nous avons considéré les architectures (1 et 2) non optimisées et nous avons réajusté les paramètres de telle façon que les architectures n'assurent que le pré-refroidissement du gaz puis nous avons ajouté la machine de Stirling et effectué une optimisation de tout le cycle. La deuxième consiste à considérer les architectures (1 et 2) optimisées et d'augmenter le débit du biométhane pour que le système n'assure que le pré-refroidissement puis ajouter la machine de Stirling. Dans le tableau 19, nous présentons les résultats de la variation de la pression sur le 1^{er} cycle combiné (architecture1+ machine Stirling) après optimisation. Dans le tableau 20, nous présentons le résultat de la variation de la pression sur l'architecture 1 optimisée combinée à la machine Stirling. Les résultats de l'architecture 2 sont présentés en Annexe 5.

Tableau 19 : Impact de la variation de la pression du biométhane sur le 1^{er} cycle combiné.

Méthane			ARCHITECTURE 3			
P (bar)	T (°C)	\dot{m} (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,45	23	0,423	1,976	0,46
10	25	0,45	26,82	0,42	1,724	0,5
5	25	0,45	32,49	0,29	3,069	0,78

Tableau 20 : Impact de la variation de la pression du biométhane sur le 1^{er} cycle hybride à débit de biométhane forcé.

Méthane			ARCHITECTURE 1+Stirling forcée			
P (bar)	T (°C)	\dot{m} (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,818	25,36	0,446	3,255	0,439
10	25	1,186	26,78	0,35	5,81	0,56
5	25	1,205	26,05	0,33	6,772	0,69

Les performances du cycle hybride à débit de biométhane forcé (l'architecture 1+Stirling forcée) sont légèrement supérieures à celles combinées après optimisation (architecture 3). En effet pour la première configuration, pour restreindre les performances du cycle strictement au pré refroidissement, nous avons juste augmenté le débit de biométhane. Bien que cette augmentation ait entraîné une augmentation du débit de réfrigérant et par conséquent une variation croissante du travail fourni au compresseur, la quantité du biométhane liquéfiée par le biais de la machine de Stirling reste importante par rapport au travail fourni (plus que le double du débit de la deuxième configuration).

2.9. Etude de l'impact de la compression du biométhane

D'après les résultats de l'étude précédente, nous concluons que la diminution de la pression engendre une dégradation des performances des différentes architectures, par conséquent le travail à basse pression est pénalisant pour ce genre de système. Pour cette raison, nous allons étudier dans cette partie si la compression directe du biométhane de 5 bar à 17 bar et de 10 bar à 17 bar améliore l'efficacité énergétique de ces procédés de liquéfaction. Une modification du schéma de procédé est ainsi requise (voir Figure 42).

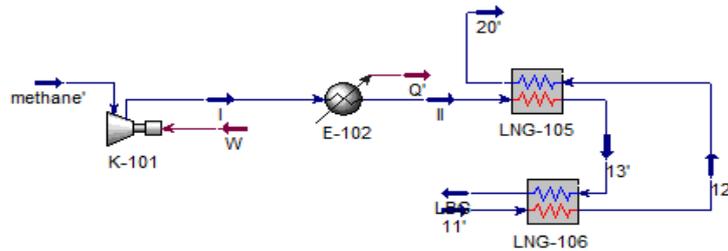


Figure 42 : Modification apportée à l'architecture 1 optimisée.

Les résultats de l'impact de l'insertion de l'étape de compression du biométhane est présentée dans le tableau ci-dessous.

Tableau 21 : Etude de l'impact d'une étape de compression du biométhane sur les performances de l'architecture 1 optimisée.

Méthane			ARCHITECTURE 1			
P (bar)	T (°C)	\dot{m} (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,4121	25,36	0,4	3,240	0,49
10	25	0,3921	25,36	0,37	3,452	0,522
5	25	0,45	25,36	0,34	3,776	0,53

D'après les résultats du tableau 21 nous concluons que la compression directe du biométhane impacte positivement les performances du cycle. En effet, la puissance totale consommée (cascade et compression du biométhane) est inférieure à la puissance consommée par la cascade seule opérant à 10 et à 5 bar sans compression du biométhane. Etant donné qu'aucune augmentation du débit n'est requise.

3. Cycle à mélange de réfrigérants non inflammable

Les différents cycles à mélange de réfrigérant étudiés dans la section précédente utilisent un fluide d'hydrocarbures, composé de CH_4 , C_2H_4 , C_4H_{10} et C_3H_6 . En général, les procédés de liquéfaction opérant avec un mélange de réfrigérant inflammables sont surveillés pour réduire tout risque d'explosion. Cependant, les exigences de sécurité, de plus en plus strictes, imposent de prévoir les risques immanents de la manipulation des hydrocarbures. Une fuite accidentelle du gaz peut provoquer la propagation du gaz inflammable dans une zone d'ignition, et par conséquent provoquer le déclenchement d'une flamme. La congestion de cette flamme crée une onde de pression. Le risque d'explosion peut croître selon la force de cette onde, entraînant des dommages humains et matériels (Paul et al., 2014). L'utilisation de réfrigérant alternatifs non inflammables, est une solution potentielle pour réduire le risque inhérent à l'être humain et surtout en tenant compte du développement de la filière biogaz dans des zones rurales. Les propriétés physiques de certains réfrigérants non inflammables diffèrent des réfrigérants conventionnels (méthane, éthylène, propane, éthane,) utilisés dans l'industrie de liquéfaction du gaz naturel. Des modifications significatives sont souvent à apporter aux architectures existantes pour parvenir à l'efficacité énergétique optimale.

A ce jour, la littérature a signalé l'inexistence des procédés de liquéfaction du biométhane utilisant un fluide non inflammable. En 2014, CONOCOPHILIPS COMPANY a breveté un mélange de réfrigérant non inflammable composé de dérivés de méthane et éthane pour la liquéfaction du gaz naturel (Paul et al., 2014). L'étude reste théorique et n'a pas donné naissance à un projet industriel. Répondant aux exigences de sécurité, ce chapitre aboutit au choix des alternatifs non inflammable du CH_4 , C_2H_4 , C_4H_{10} et C_3H_6 pour la liquéfaction du biométhane à micro-échelle.

La sélection des réfrigérants alternatifs se fait en trois étapes (Pitiot, 1996). Une présélection qui consiste à soumettre les fluides candidats à trois conditions : ces fluides ne doivent pas être des dérivés chlorés, sont non inflammables et ont une température d'ébullition dans les conditions normales (NBT) proche de celles du CH_4 , C_2H_4 , C_4H_{10} et C_3H_6 . Dans la deuxième étape, on soumet les fluides présélectionnés aux critères généraux conformes avec d'autres systèmes de production de froid. Enfin, les critères propres aux cycles à mélange de réfrigérants permettent de trancher sur les combinaisons viables à choisir. Il est important de mentionner que le choix peut conduire à des réfrigérants certainement à proscrire dans les années à venir à cause de leurs impacts environnementaux (Potentiel de Réchauffement Global –PRG et Potentiel de Déplétion Ozonique – PDO)⁸. Cependant, l'arrivée de réfrigérants de type HFO pourront se substituer aux réfrigérants choisis. Certains réfrigérants à mentionner dans cette section sont commercialement disponibles en Europe, mais pas en France, et également en Amérique et en Chine.

Dans les tableaux ci-dessous, les réfrigérants remplaçants sont listés pour chaque hydrocarbure utilisé précédemment.

⁸ <https://www.ecologique-solidaire.gouv.fr/Substances-impact-climatique-fluides-frigorigène>

Tableau 22 : Réfrigérants alternatifs possibles du méthane.

Fluides alternatifs au $T_b(^{\circ}\text{C})$	
CH_4	
CH_4	-161
Argon	-185,5
N_2	-196

Tableau 23 : Réfrigérants alternatifs possibles de l'éthylène et du propylène.

Fluides alternatifs au $T_b(^{\circ}\text{C})$		Fluides alternatifs au $T_b(^{\circ}\text{C})$	
C_2H_4		C_3H_6	
C_2H_4	-103,7	C_3H_6	-47,6
R14	-128	E116	-59
SiF_4	-86	SO_2F_2	-55,4
R1132	-85,6	R125	-48,6
R23	-82	E125	-41,9
CO_2	-78,4	SOF_2	-41
R116	-78,2		

Tableau 24 : Réfrigérants alternatifs possibles de l'isobutane.

Fluides alternatifs au $T_b(^{\circ}\text{C})$		Fluides alternatifs au $T_b(^{\circ}\text{C})$	
C_4H_{10}		C_4H_{10}	
C_4H_{10}	-11	CF_3I	-22,5
R227ca	-16,3	E170	-24,8
R227ea	-16,5	R152a	-24,7
R245cb	-18,3	R134a	-26,1
E-134a	-19	R1216	-29,6

3.1. Critères de sélection des corps purs

Une première étape de sélection consiste à soumettre les corps purs présélectionnés à trois critères : critères d'usage (la condensation), critères de sécurité (toxicité et inflammabilité) et critères environnementaux (PRG et PDO) (Pitiot, 1996).

3.1.1. Critères d'usage

Pour la conception des cascades intégrées, une condensation partielle des réfrigérants est requise à chaque étage du cycle frigorifique. Pour les architectures avec mélange de réfrigérant inflammable, l'isobutane et le propylène (composants les moins volatils) sont les fluides majoritaires de la phase liquide, à l'échangeur LNG-100. A l'échangeur LNG-101, une grande partie de ces deux réfrigérants se condense. A l'échangeur LNG-102, la même transformation se produit pour l'éthylène et le méthane. La condensation de chaque réfrigérant est conditionnée par un critère d'usage qui se prononce aux corps purs de la manière suivante : pour que la condensation du propylène, isobutane, éthylène et méthane se produise, les températures de condensation à chaque étage du cycle frigorifique doivent être respectivement inférieures aux températures critiques de chaque réfrigérant.

Pour satisfaire le critère d'usage de condensation l'indicateur T_k/T_C doit être inférieur à 1. Les résultats de l'application de ce critère sur les réfrigérants alternatifs présélectionnés, sont présentés dans le Tableau 25. Avec T_k est la température de condensation du mélange inflammable à chaque étage du cycle à mélange de réfrigérant.

Tableau 25 : Sélection des réfrigérants alternatifs par le critère d'usage.

Ti-2	T_k/T_C $T_K=268,15\text{ K}$	Ti-1	T_k/T_C $T_K=212,15\text{ K}$	H.T	T_k/T_C $T_K=176,15\text{ K}$
Argon	1,16	R125	0,65	R134a	0,71
N2	2,78			R1216	0,68
R14	0,77			R227ea	0,71
CO ₂	0,6				
R116	0,6				
R23	0,76				

L'argon et l'azote, remplaçants potentiels du méthane sont éliminés à ce stade. Les remplaçants potentiels de l'éthylène sont en nombre de 4 (R14, CO₂, R116, R23). Le remplaçant potentiel du propylène est le R125 et les remplaçants de l'isobutane sont le R134a, le R1216 et les R227ea. Certains réfrigérants présélectionnés ont été éliminés d'office par manque de données et raréfaction d'usage.

3.1.2. Critères de sécurité

Pour évaluer le risque lié à l'utilisation des réfrigérants, ces derniers sont soumis à deux critères : la toxicité et l'inflammabilité.

La toxicité : L'ASHRAE 34 (ASHRAE34, 2001) définit la toxicité comme la capacité d'un fluide à être nocif ou mortel lors d'une exposition aiguë par contact, inhalation ou ingestion. Selon ce critère, les réfrigérants sont assignés à deux classes (classe A et classe B). La classe A regroupe les réfrigérants dont la toxicité n'a pas été encore identifiée pour des concentrations inférieures à 400 ppm, et la classe B regroupe les réfrigérants dont la toxicité est prouvée pour des concentrations inférieures à 400ppm.

L'inflammabilité : l'ASHRAE 34 définit une Limite Inférieure d'Inflammabilité, pour chaque réfrigérant (connu aussi sous le nom de limite inférieure d'explosion, LIE) comme un indice indéniable de prévention dans les industries maniant les composants combustibles. La LIE est « la concentration minimale de réfrigérant permettant la propagation d'une flamme dans un mélange homogène de réfrigérants et d'air sous certaines conditions expérimentales » (Pitiot, 1996). Plusieurs méthodes de prédiction de la LIE existent dans la littérature (Zabetakis, 1965a, Zabetakis, 1965b), la plus répondue est celle basée sur la relation de Le Chatelier (Eq.15).

$$LFL_M = \frac{100}{\sum_i^n \frac{A_i}{LFL_i}} \quad \text{Eq.15}$$

LFL_M est la limite inférieure d'inflammabilité du mélange en % mol.

A_i est la fraction molaire de chaque réfrigérant dans le mélange.

LFL_i est la limite inférieure d'inflammabilité propre à chaque réfrigérant.

Cette relation permet de calculer la limite inférieure d'inflammabilité pour un mélange de réfrigérants inflammables (Schroeder, 2016). Elle n'est pas valable pour le calcul de la LIE des hydrocarbures partiellement halogénés. Une extension de cette relation a été développée pour inclure l'effet de la dilution des gaz inertes sur la Limite Inférieure d'Inflammabilité des gaz inflammables (Kondo, et al., 2006). Selon ce critère d'inflammabilité, les réfrigérants sont attribués à trois classes (1, 2 et 3). La classe 1 représente les réfrigérants qui n'ont pas montré une propagation de flamme à 101 kPa et 21°C. La classe 2 représente les réfrigérants dont la LFL est inférieure à 0,1 kg/m³ à 101 kPa et 21 °C et dont la chaleur de combustion est inférieure à 19000 kJ/kg. La classe 3 indique les réfrigérants qui sont fortement inflammables (la LFL inférieure ou égale à 0,1 kg/m³ à 101 kPa et 21°C et dont la chaleur de combustion est supérieure ou égale à 19000 kJ/kg. La Figure 45 représente la classification des réfrigérants selon les deux critères de toxicité et d'inflammabilité.

Les réfrigérants du fluide utilisé dans les simulations précédentes (CH₄, C₂H₄, C₄H₁₀ et C₃H₆) appartiennent à la classe A₃ et la LIE calculée avec Eq.15 est de 4.06%. Les remplaçants alternatifs sélectionnés dans le tableau 4 sont non inflammable et appartiennent à la classe 1.

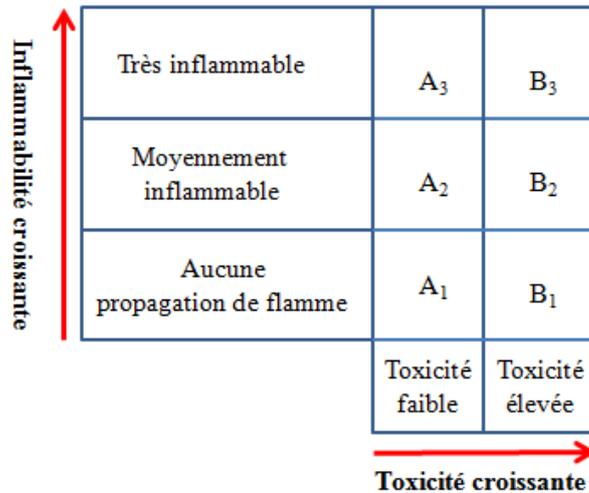


Figure 43 : Classification des réfrigérants selon les critères de sécurité.

3.1.3. Critères environnementaux

Les critères environnementaux prennent en considération deux facteurs : « le potentiel de déplétion ozonique » (PDO) et le « potentiel de réchauffement climatique » (PRG).

Le **PDO** permet d'évaluer la nocivité de différents gaz sur la couche d'ozone. Il reflète le potentiel du réfrigérant à détruire la couche d'ozone relativement à une valeur de référence qui est le potentiel du CFC-11 (son ODP est égale à 1). Les réfrigérants présélectionnés dans cette partie ont un ODP nul.

Le **PRG** permet d'évaluer la contribution de différents gaz au réchauffement climatique, dans une période définie (100 ans), par rapport à celle du dioxyde de carbone. Le CO₂ est le composant de référence, son GWP est égale à 1.

Le GWP des réfrigérants candidats sélectionnés par le critère d'usage est présenté dans le Tableau ci-dessous.

Tableau 26 : Sélection des réfrigérants alternatifs par leur GWP.

Ti-2	PRG	Ti-1	PRG	H.T	PRG
R14	7390	R125	3420	R134a	1370
CO2	1			R1216	
R116	11200			R227ea	3580
R23	14200				

Dans ce tableau, l'éthylène peut être remplacé au choix par le R14 et le CO₂. Le R125 et le R134a sont respectivement les remplaçants éventuels du propylène et de l'isobutane.

3.1.4 Conclusion

D'après des discussions avec le personnel technique et les critères de sélection pour les réfrigérants alternatifs, nous concluons que l'azote et l'argon, remplaçants potentiels du méthane ne peuvent pas être utilisés : ils ne répondent pas au critère d'usage, l'argon reste cher comme réfrigérant, il n'est pas rentable de l'utiliser à micro-échelle et l'azote génère une température de refoulement très haute au niveau du compresseur. Le R14 et le CO₂ sont des remplaçants éventuels de l'éthylène, cependant notre choix porte sur le R14 pour la raison suivante : le point triple du CO₂ est bien au-dessus de la température la plus basse de l'architecture 1 (flux 11, voir Figure 37), le risque de la présence du givre devient important surtout que la concentration du CO₂ est non négligeable au dernier étage de la cascade. Ce risque est également présent mais dans une moindre mesure avec le choix du R125 et R134a dont le point triple est également, légèrement au-dessus de la température la plus basse du cycle (T₁₁ = -116°C) (voir Tableau 27). Cependant, le composant majoritaire à ce niveau est le R14 (97% mol), nous supposons par conséquent que la phase liquéfiée serait capable de solubiliser le givre éventuellement produit.

Tableau 27 : Point triple des réfrigérants sélectionnés.

Réfrigérants	CO ₂	R14	R125	R134a
Point triple (°C)	-56,56	-183,61	-100	-103

3.2. Résultats de la simulation de l'architecture 1 et 3 avec le mélange de réfrigérant non-inflammables

3.2.1. Performances énergétiques de l'architecture 1

Le mélange non-inflammable comporte du R134a/R125/R14 dans les proportions molaires de 25,27% ; 26,51% et 48,22%. Des rectifications ont été apportées à l'architecture 1 pour réduire les contraintes d'optimisation et favoriser la possibilité de parvenir à un optimum. Les performances de la simulation optimisée de l'architecture 1, pour une pression de biométhane de 17 et 10 bar sont présentées dans le Tableau 28. Les résultats de l'architecture 3 (hybridation de l'architecture 1 et le groupe froid STIRLING Figure 37 sont présentés dans le Tableau 29. Le Tableau 30 représente une comparaison des performances énergétiques de l'architecture 1 et l'architecture 3.

Tableau 28 : Performances de l'architecture 1 avec mélange de réfrigérant non inflammable.

Biométhane			ARCHITECTURE 1 (mélange non inflammable)			
P (bar)	T (°C)	ṁ (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,45	11,25	0,47	2,810	0,42
10	25	0.45/0,33*	11,25	0.33	3,371	0,74

* la quantité de méthane liquéfiée à 10 bar par rapport à la quantité injectée

La liquéfaction du biométhane à 10 bar requière une diminution de la basse pression et du débit de méthane à liquéfier. Le taux de compression est presque le double (de 5,56 à 10). Ce qui entraîne une dégradation de la performance du cycle. Tel qu'étudié précédemment, cette dégradation de performance peut être compensée par l'utilisation d'un compresseur du biométhane produit pour le conduire à une pression de 17 bar. Par la suite une autre architecture intégrant le flux de vapeur de biométhane pré-refroidit sera étudiée.

Tableau 29 : Performances de l'architecture 3 avec mélange de réfrigérant non inflammable.

Biométhane			ARCHITECTURE 3 (mélange non inflammable)			
P (bar)	T (°C)	\dot{m} (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,96	12,46	0,51	3,472	0,37
10	25	0,855	11,25	0,39	3,74	0,54

3.2.2. Comparaison des deux architectures avec mélange inflammable et non inflammable

Les résultats des simulations des deux cycles diffèrent en certains points. Le taux de compression passe de 8,28 (architecture avec mélange de réfrigérants inflammables) à 5,56 (architecture avec mélange de réfrigérants non-inflammables). La température de refoulement décroît de 150°C à 82°C. Le Tableau 30 présente une comparaison des performances des deux architectures. Les résultats de simulation de l'architecture 2 avec mélange de réfrigérants non inflammables sont présentés en Annexes. La configuration de l'architecture 3 avec mélange de réfrigérants non inflammables est la plus performante.

Tableau 30 : Comparaison de l'architecture 1 avec mélange inflammable et non inflammable.

Architectures non inflammables	Architecture 1	Architecture 3
COP	0,47	0,51
kWh/kg	0,42	0,37

Conclusion

La simulation, l'analyse exergetique et l'optimisation en régime stationnaire de nouveaux cycles à mélange de réfrigérants pour la liquéfaction du biométhane à micro-échelle ont fait l'objet de la deuxième partie de cette thèse. Quatre architectures basées sur le principe des cycles à mélange de réfrigérant, plus précisément le principe de la cascade intégrée, ont été modélisées. Les deux premières architectures fonctionnent avec un mélange de réfrigérants inflammable (CH₄, C₂H₆, C₄H₁₀ et C₃H₆). La troisième est une hybridation de la première architecture et un groupe froid de type machine de Stirling. La dernière architecture proposée fonctionne avec un mélange de réfrigérants non-inflammable (R14, R125 et R134a). Chaque architecture a été simulée sous Aspen HYSYS, et chaque simulation a été accompagnée d'une

analyse exergetique pour évaluer l'efficacité thermodynamique du procédé et identifier les causes principales des irréversibilités thermodynamiques dans ces systèmes.

Pour améliorer les performances de chaque cycle de liquéfaction, et identifier la meilleure configuration, une méthode d'optimisation basée sur l'algorithme génétique a été développée. Cette méthode établit une connexion entre PIKAIA, Aspen HYSYS et Microsoft Excel. Les résultats d'optimisation ont montré que la composition du mélange de réfrigérants et les conditions opératoires, principalement la pression, auraient un impact majeur sur la performance de liquéfaction. L'optimisation de ces deux paramètres, a conduit à une réduction de destruction d'exergie et de la puissance consommée des différentes architectures développées. Pour tester la flexibilité de ces cycles à la variation de pression du biométhane, une étude de l'impact de pression sur la performance de liquéfaction a été établie. Ces analyses ont montré que la diminution de la pression du biométhane impacte négativement les performances des différents cycles. Les résultats des simulations des différentes architectures optimisées, avec mélange de réfrigérants inflammables et non inflammables et à différentes pressions du biométhane nous permet de conclure que la configuration optimale est l'architecture 3 (hybridation de l'architecture 1 non inflammable et STIRLING) avec mélange de réfrigérants non inflammables, opérant avec une pression du biométhane de 17 bar est la configuration ayant le meilleur COP (0,5) et peu consommatrice d'énergie (0,37 kWh/kg de biométhane liquéfié). Etant donné les bons résultats de l'architecture 1 et de l'hybridation des cycles à mélange de réfrigérant avec le groupe froid STIRLING, l'architecture 1 avec mélange de réfrigérants non inflammables a été choisie pour la simulation dynamique. Ceci fait l'objet de la troisième partie de cette thèse et a pour objectif de définir les performances de la liquéfaction en charges partielles et le délai de mise en régime permanent.

Chapitre 3 - Simulation des régimes à charge partielle et transitoires du cycle à mélange de réfrigérants non inflammables

Introduction

La simulation des procédés industriels en régime dynamique est devenue d'une utilité indéniable à cause de la complexité des systèmes et du design dont l'exploitation frôle les contraintes. Il est vital que toutes les opérations unitaires d'un schéma de production complexe puissent réagir ensemble face aux perturbations éventuelles (Luyben, 2002). Cette étude est devenue une exigence critique pour les nouvelles unités de liquéfaction du gaz naturel. Les résultats qui en ressortent peuvent apporter des modifications significatives de conception qui pourront améliorer les performances des unités de liquéfaction, renforcer les dispositifs de sécurité et assurer la fiabilité des différentes opérations unitaires. Economiquement, cette étude ne peut être que bénéfique pour les projets de liquéfaction : les problèmes liés au démarrage/arrêt peuvent être évincés et la variabilité de la qualité du produit sera réduite.

Ce chapitre a pour objectif de présenter les travaux en régime dynamique des procédés de liquéfaction et, par la suite, d'étudier le comportement en régime transitoire du cycle à mélange de réfrigérants non inflammables pour la liquéfaction du biométhane. Cette partie comporte deux étapes : la première porte sur une analyse de sensibilité paramétrique du cycle dont le but est d'étudier la flexibilité du système à charge réduite du biométhane et la deuxième concerne la simulation dynamique du cycle. Les simulations dynamiques ont été réalisées à l'aide d'Aspen HYSYS DYNAMICS.

1. Simulation en charge partielle du cycle à mélange de réfrigérants non inflammables

Avant d'établir le modèle dynamique du cycle à mélanges de réfrigérants non inflammable, une étude préliminaire de la capacité du système à s'adapter aux éventuelles variations du débit du biométhane a été mise au point. Une variation de 10% du débit est considérée à chaque simulation. Pour répondre à cette variation, uniquement la pression de décharge du compresseur est actionnée. L'intervalle de variation du débit est délimité de la manière suivante :

- Le débit initial du biométhane pour une pression de 17 bar est de 7,219 kg/h. Ce débit est réduit petit à petit avec un pas de 10%. Cette réduction entraîne un pincement au niveau de l'échangeur LNG-104, du au sous-refroidissement du flux du biométhane ;
- Une fois ce point est atteint, une augmentation de la pression est requise pour revenir à une condition de saturation, par une gestion de quantité de réfrigérant d'appoint dans le cycle : en effet en augmentant la pression, la condensation du flux du mélange des réfrigérants est favorisée à chaque étage du cycle. Le débit de retour au compresseur devient plus froid, ce qui augmente sa densité volumétrique. Par conséquent, la puissance requise au niveau du compresseur est réduite ;
- Un nouveau point de saturation est ainsi défini et on reproduit les mêmes étapes.

L'intervalle de variation est ainsi délimité par un point de saturation et un point de sous-refroidissement. Ces deux phases sont considérées pour garantir plus de lisibilité des données trouvées et pour définir l'intervalle de pression optimal au bon fonctionnement du cycle.

L'intervalle défini doit satisfaire deux points : pas de pincement au niveau des échangeurs et liquéfaction totale du débit du biométhane. Les différents points calculés sont présentés dans le Tableau 31 .

Tableau 31 : Résultats de la simulation en charge partielle du cycle à mélange de réfrigérant non inflammable.

HP (bar)	Débit de biométhane (kg/h)	W (kW)	kWh/kg de biométhane liquéfié
11,25	7,219	2,813	0,389
	7,139	2,813	0,394
	7,059	2,811	0,398
	6,979	2,811	0,402
11,53	6,898	2,797	0,405
	6,818	2,795	0,409
	6,738	2,795	0,414
11,78	6,658	2,778	0,417
	6,578	2,777	0,422
	6,497	2,776	0,427
12,05	6,417	2,758	0,429
	6,233	2,757	0,422
	6,257	2,756	0,44
12,27	6,176	2,74	0,443
	6,096	2,739	0,449
	6,016	2,738	0,455
12,47	5,936	2,722	0,458
	5,856	2,721	0,464
	5,775	2,72	0,470
12,67	5,695	2,703	0,474
	5,615	2,702	0,481
	5,635	2,701	0,487
12,88	5,455	2,681	0,491
	5,474	2,679	0,489
	5,294	2,777	0,505
13,07	5,214	2,66	0,510
	5,134	2,658	0,517
	5,053	2,657	0,525
13,25	4,973	2,638	0,53
	4,893	2,638	0,539
	4,733	2,636	0,547

La Figure 44 représente les variations de la pression de décharge, de la puissance requise au niveau du compresseur et de l'énergie spécifique de consommation (kWh/kg de biométhane liquéfié) à charge réduite du biométhane.

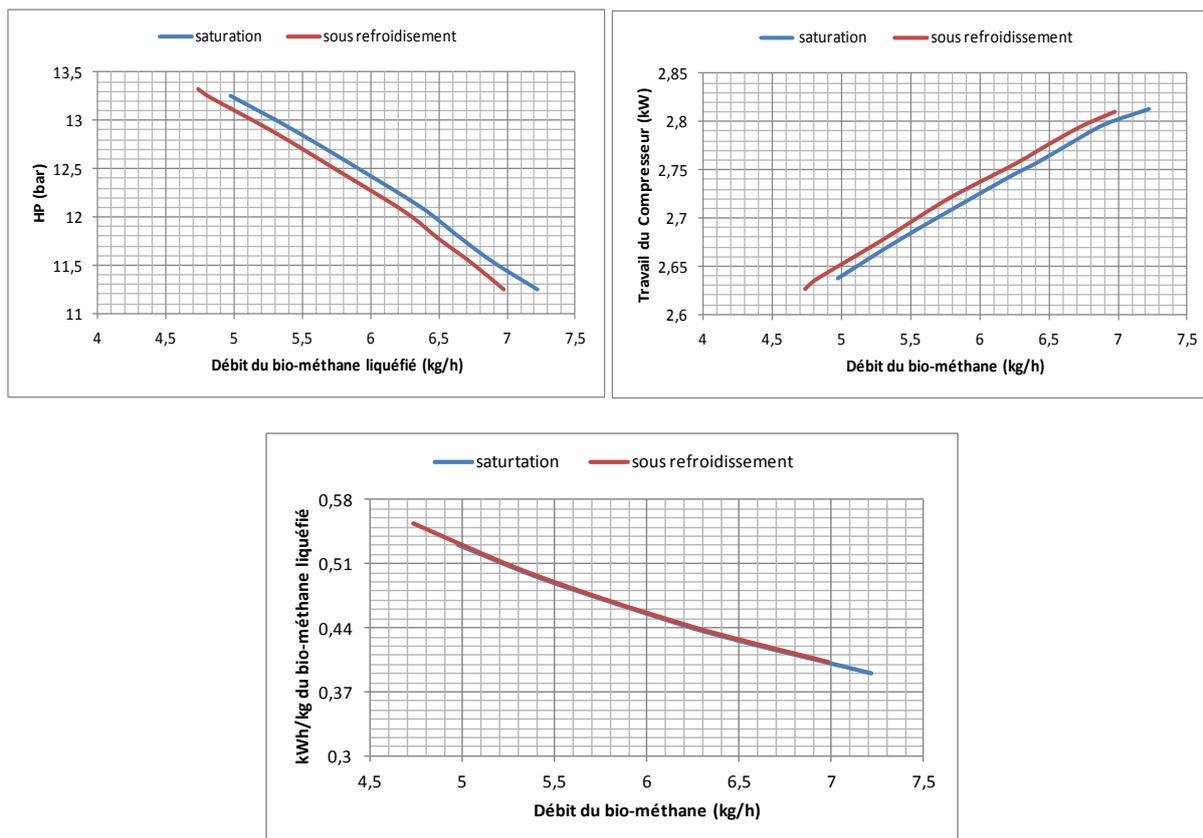


Figure 44 : Variation de la pression de décharge (a), la puissance requise au niveau du compresseur (b) et l'énergie spécifique de consommation (c) à charge réduite.

2. Simulation dynamique du cycle à mélange de réfrigérant non inflammable

2.1. Revue bibliographique

Dans le domaine de liquéfaction du gaz naturel, la majorité des sujets de recherche se focalise sur l'évaluation des performances thermodynamiques de la chaîne de liquéfaction en intégrant la notion d'exergie, et sur l'optimisation des opérations unitaires et du design du procédé en se basant sur les méthodes d'optimisation existantes (stochastiques et déterministes) ou en développant d'autres (méthodes d'optimisation hybrides (Lee et al., 2016)). En dépit de la disponibilité de travaux antérieurs, peu d'études ont porté sur la modélisation dynamique et la simulation en régime transitoire des procédés de liquéfaction du gaz naturel.

Afin d'étudier la réponse dynamique du cycle aux variations du débit massique du réfrigérant (N_2), Khan et al. (2018) ont développé un modèle transitoire pour un cycle à expansion d'azote assurant la liquéfaction du gaz naturel.

Fazlollahi et al. (2016a) ont présenté les résultats de simulation en régime transitoire de deux cycles à mélange de réfrigérant pour la liquéfaction du gaz naturel utilisant Aspen HYSYS. Les deux procédés diffèrent dans la configuration d'échangeurs de chaleur. Le premier est un échangeur à plaques usuel, traditionnellement réservé pour la liquéfaction du gaz naturel

(THED). Le second repose sur un nouveau design innovant d'échangeur de chaleur dynamique (DHED). L'échangeur dynamique est un échangeur à multi-injections qui permet de maintenir les profils de température proche de l'état d'équilibre. Dans l'échangeur classique ce maintien est compensé par le contrôle PID. Dans cette étude, les auteurs ont simulé le comportement des deux échangeurs à différents débits du mélange de réfrigérants, et du gaz naturel. Ils ont également montré leurs profils de température. Les résultats montrent que généralement le deuxième échangeur est énergétiquement plus efficace que le premier. En effet, en variant le débit du gaz naturel, le profil de température et l'efficacité de l'échangeur restent les mêmes pour l'échangeur de chaleur dynamique.

Dans un autre article Fazlollahi et al. (2016b) ont présenté les modèles en régime stationnaire et transitoire d'un cycle à mélange de réfrigérants intégrant un système cryogénique pour la capture du CO₂ avec stockage d'énergie.

Dans l'article de Lee et al. (2016), les auteurs ont développé une méthodologie pour la modélisation en régime transitoire, des échangeurs de chaleur à plaques et ailettes d'un cycle à mélange de réfrigérant. Dans cette étude, ils ont proposé d'identifier le coefficient (k) liant la pression au débit et la valeur d'UA en deux étapes. Dans un premier temps, ils ont estimé les valeurs de k et UA avant de procéder à l'ajustement de k via un algorithme d'optimisation associé à une boucle de contrôle IP (intégral proportionnel). Les itérations s'arrêtent une fois que les débits des flux en simulation dynamique sont identiques à ceux du régime stationnaire. En se basant sur la même approche, l'UA est ajusté jusqu'à ce que les températures résultantes de la simulation dynamique, une fois le régime permanent atteint égalisent celles de la statique. Cette méthode a été validée à travers son application au procédé industriel C3MR. La Figure 45 illustre cette méthode.

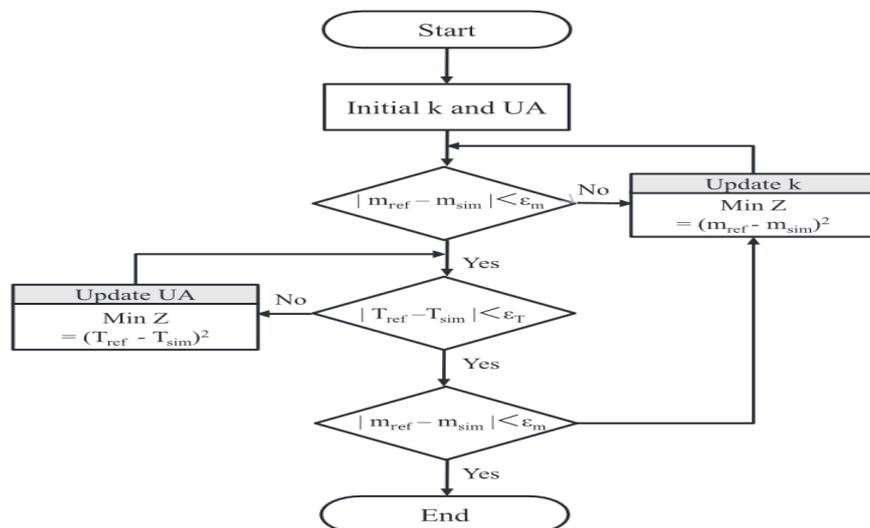


Figure 45 : Bloc diagramme illustrant la méthode de décomposition de Lee et al.,(2016).

Un autre modèle dynamique a été développé par He et Ju (2016), afin d'évaluer la réponse dynamique d'un cycle à mélange de réfrigérant à certaines perturbations, dont les variations

de la température du flux du gaz naturel, sa pression, son débit et sa composition. Les auteurs ont également étudié le comportement dynamique du système aux variations de la pression de section du mélange de réfrigérants au niveau du compresseur, ainsi que la température de refroidissement d'eau utilisée. Les résultats ont montré que le système peut faire face à ce genre de perturbations et revenir aux valeurs désirées après un certain temps.

Husnil et al. (2014) ont mis au point une stratégie pour améliorer l'efficacité économique d'un cycle à mélange de réfrigérant. Cette stratégie a pour objectif de définir les variables dont le contrôle renforcera la stabilité du cycle. Pour ce faire une analyse de sensibilité paramétrique a été élaborée. En se basant sur les résultats de cette analyse, les auteurs ont conclu que le rapport entre les débits du mélange des réfrigérants lourds et des réfrigérants légers est une variable de contrôle optimale pour ce genre de procédés. Ensuite les auteurs ont montré qu'une boucle de contrôle incluant ce paramètre, en régime dynamique, maintient la stabilité du procédé contre les variations éventuelles du débit et de la température du flux du gaz naturel à liquéfier.

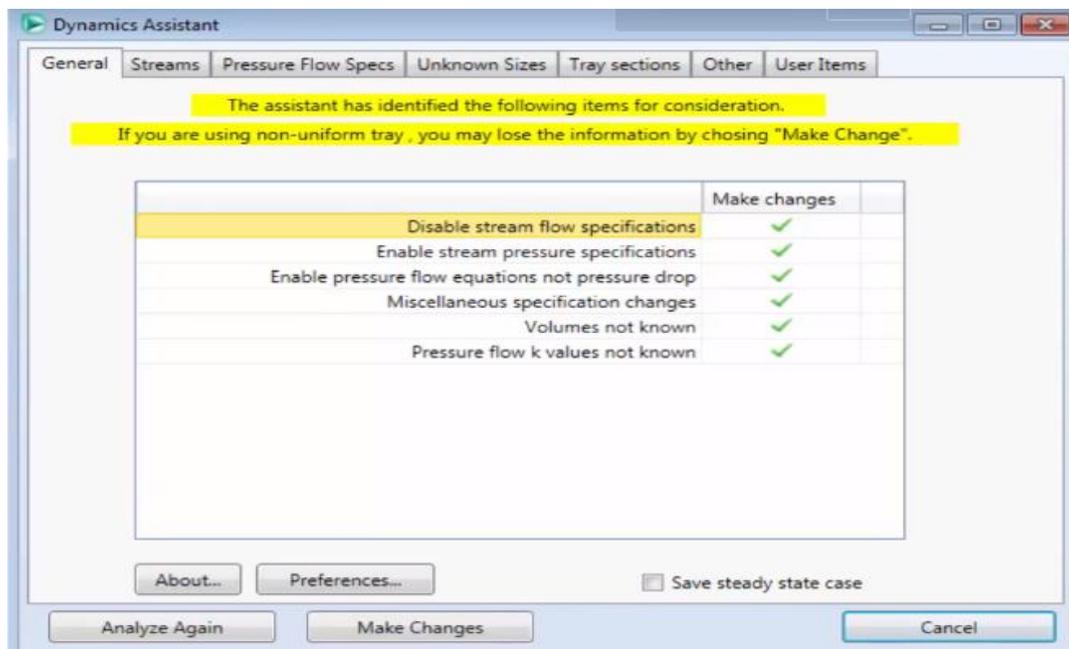


Figure 46 : Recommandations d'HYSYS pour la simulation dynamique.

En se basant sur ces différentes études, on conclut que le dimensionnement des différents équipements d'un cycle à mélange de réfrigérants ainsi que le contrôle du procédé sont deux points déterminants pour l'évaluation du comportement dynamique de ce genre de système. Certains auteurs ont développé des méthodologies pour choisir les variables pertinentes à contrôler pour renforcer la robustesse du cycle vis-à-vis des perturbations extérieures, et d'autres se sont focalisés sur l'élaboration des méthodologies pour ajuster le dimensionnement des équipements du cycle, précisément les échangeurs. Dans le cadre de cette thèse, on a choisi de combiner les deux approches : une fois les résultats de la simulation en régime stationnaire établis, on intègre le dimensionnement des différents équipements, on estime le UA pour les différents échangeurs du cycle en se basant sur le résultat du dimensionnement d'Aspen EDR, ensuite on définit les différentes variables à contrôler en se

référant à l'état de l'art, et on lance la simulation dynamique en se basant sur les instructions d'ASPEN Dynamics (ces instructions sont résumées dans la Figure 46). Ensuite, on compare les résultats à ceux de la statique. Si les résultats sont cohérents, on retient ce dimensionnement et cette stratégie de contrôle. Sinon, on propose d'autres variables à contrôler pour canaliser les différentes perturbations, tout en ajustant le dimensionnement jusqu'à concordance des résultats de la simulation statique, une fois le régime permanent atteint, avec ceux du régime stationnaire voir Figure 38.

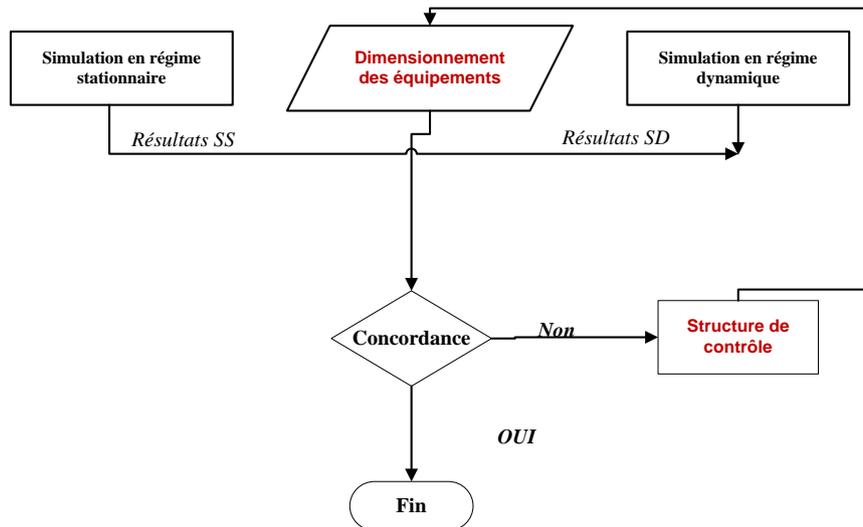


Figure 47 : La méthodologie adoptée pour la simulation dynamique du cycle à mélange de réfrigérants non inflammable.

2.2. Simulation à l'aide de Aspen HYSYS Dynamics

2.2.1. Simulation des composants

2.1.1.1. Echangeurs de chaleur

Les échangeurs sont des équipements clés des cycles à mélange de réfrigérant. Leur comportement dynamique est très sensible à leurs dimensionnements. Sous Aspen HYSYS, les échangeurs de chaleur destinés à la liquéfaction du gaz naturel sont des échangeurs à plaques et ailettes. Leur dimensionnement sur le volet dynamique d'Aspen requiert des informations concernant leur longueur et leur épaisseur, la configuration des plaques et la spécification des types des ailettes ainsi que leurs propriétés (perforations, ondulations, etc.). Un dimensionnement préliminaire a été effectué en utilisant Aspen EDR (Aspen Exchanger Design and Rating). Cependant il est commun que le dimensionnement exact des équipements soit ajusté en se basant sur les résultats finaux de la simulation dynamique (Lee et al., 2016). Dans notre cas, pour simplifier le modèle dynamique des échangeurs, les échangeurs à plaques ont été considérés. Des ailettes simples sans perforation ni ondulations ont été prises en compte.

A. La configuration des plaques

L'agencement des flux dans les échangeurs influence la répartition de la charge thermique totale. Dans notre cas, la circulation des courants chauds et froids se fait comme selon un seul passage pour le courant chaud et un seul pour le courant froid. Ainsi, la disposition chaud-froid est considérée (Figure 48). Pour optimiser les performances de l'échangeur, le mode d'écoulement à contre-courant est pris en compte.

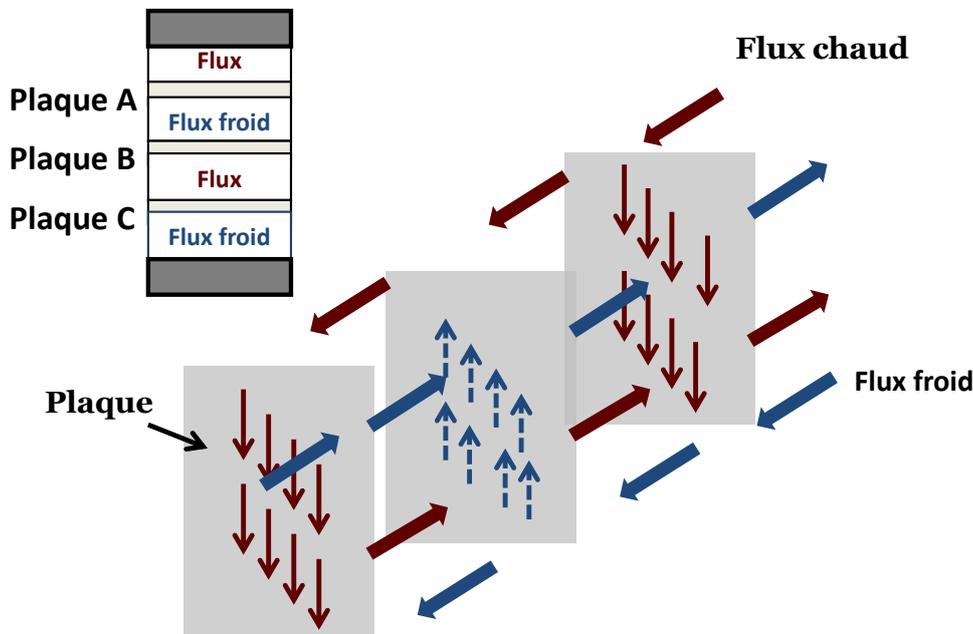


Figure 48 : Agencement des flux dans un échangeur de chaleur à plaques.

B. La configuration des zones et du transfert de chaleur

Sur Aspen, l'échangeur est partitionné en plusieurs zones. Chaque zone comporte plusieurs couches, délimitées par des plaques. Une zone est définie par sa géométrie, le nombre des plaques et les propriétés du métal, incluant la conductivité thermique, la capacité calorifique et la densité des matériaux de construction des échangeurs.

Sur Aspen HYSYS, le solveur du modèle dynamique calcule le débit circulant dans l'échangeur en se basant sur une équation de résistance liant le débit aux pertes de charge :

$$F = k \sqrt{\rho \cdot \Delta p} \quad \text{Eq. 16}$$

Avec F, le débit circulant dans chaque zone, k le coefficient de résistance (en $\frac{\text{kg}}{\text{h} \sqrt{\frac{\text{kg}}{\text{m}^3} \text{kPa}}}$), ρ la masse volumique et Δp les pertes de charge dans la même section (Lee et al., 2016).

Pour caractériser le transfert de chaleur, le coefficient de transfert de chaleur UA doit être spécifié pour chaque couche. Pour simplifier les simulations, le même coefficient de chaleur est considéré. Une première estimation de cette valeur est effectuée en se basant sur les résultats de la simulation en régime stationnaire. Cette valeur est actualisée jusqu'à concordance des résultats de la simulation en régime dynamique et ceux en régime stationnaire.

Pour chaque couche le bilan énergétique est comme suit (He et Ju, 2016) :

Côté Flux chaud :

$$f_i \times M_i (h_{in} - h_{out}) - Q_{sl} = \rho_i \times M_i \frac{d(vhout)}{dt} \quad \text{Eq. 17}$$

Côté Flux froid :

$$f_i \times M_i (h_{in} - h_{out}) + Q_{sl} = \rho_i \times M_i \frac{d(vhout)}{dt} \quad \text{Eq. 18}$$

Avec

$$Q_{sl} = U_i A_i (T_h - T_C) \quad \text{Eq. 19}$$

Bilan énergétique côté paroi :

$$M_p \times C_p \times \frac{dT_p}{dt} = \frac{k}{x} \times A \times (T_{P1} - T_{P2}) \quad \text{Eq. 20}$$

Avec M la masse molaire, Q_{sl} la quantité de chaleur échangée entre le flux chaud et froid, v le volume de chaque couche, U le coefficient de transfert, A la surface d'échange, T_C température du courant froid, T_h température du courant chaud, T_p température de la paroi, k la conductivité thermique, x l'épaisseur de la paroi et C_p la capacité calorifique.

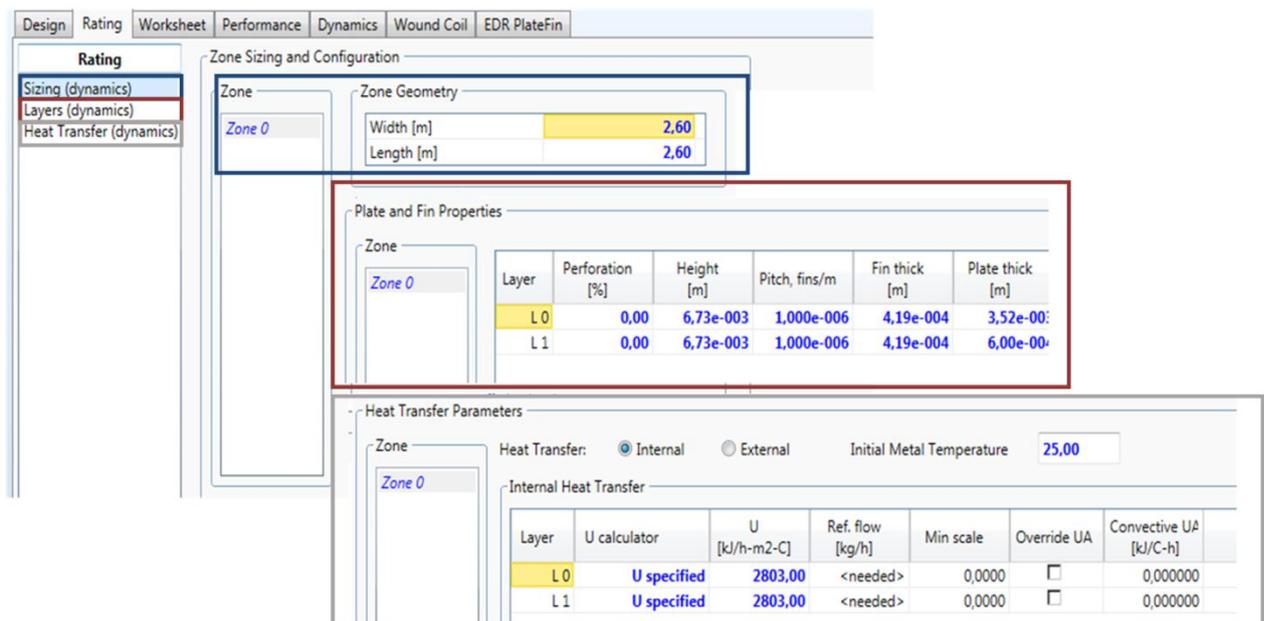


Figure 49 : Configuration des échangeurs de chaleur sur Aspen HYSYS DYNAMICS.

2.1.1.2. Compresseur, vannes et séparateurs Flash

Le modèle Dynamique du compresseur repose sur l'équation liant le travail fourni au compresseur et le débit massique. L'efficacité polytropique du compresseur est assumée constante (elle ne varie pas en fonction du débit massique du réfrigérant) (He et Ju, 2016).

$$W_C = f_{in} \times (h_{out} - h_{in}) = f_{in} \frac{P_{in} v_{in}}{n_p \left(\frac{n-1}{n} \right)} \left[\left(\frac{P_{out}}{P_{in}} \right)^{\frac{n-1}{n}} - 1 \right] \quad \text{Eq. 21}$$

$$n_p = \frac{\left(\frac{k-1}{k} \right)}{\left(\frac{n-1}{n} \right)} \quad \text{Eq. 22}$$

$$k = \frac{C_p}{C_v} \quad \text{Eq. 23}$$

Avec W_C la puissance fournie au compresseur, h l'enthalpie molaire, f le débit molaire, P la pression, n l'index polytropique, n_p l'efficacité polytropique, V volume molaire et k est le rapport entre la capacité calorifique à pression constant (C_p) et C_v la capacité calorifique à volume constant.

Pour le fonctionnement de la vanne en mode dynamique, les informations requises sont le type de la vanne et la conductance C_v (La conductance est définie comme étant la quantité d'eau traversant une vanne à 60°F avec une perte de charge de 1 PSI).

Le modèle dynamique de la vanne peut être caractérisé soit en spécifiant les pertes de charge ou en définissant l'équation reliant le débit aux pertes de charge :

$$F = C_v \sqrt{\rho \cdot \Delta p} \quad \text{Eq. 24}$$

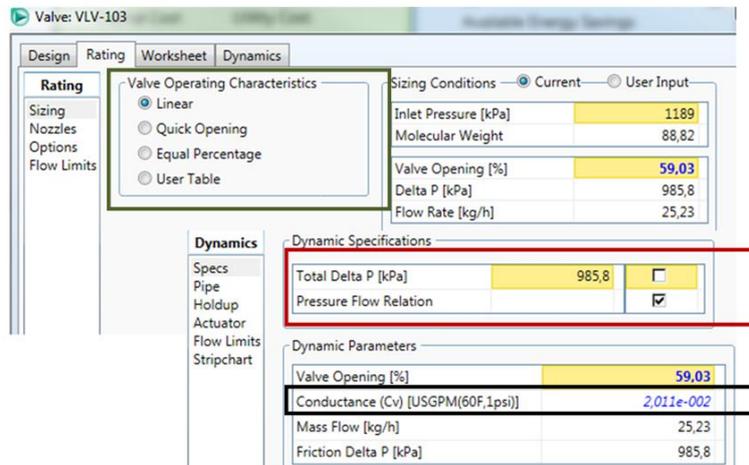


Figure 50 : Configuration de la vanne sur Aspen HYSYS DYNAMICS.

Concernant les séparateurs Flash, le volume de chacun doit être spécifié. Pour les mixeurs, il est recommandé d'égaliser les pressions des flux.

2.2.1. Dimensionnement et définition des frontières du système

Pour simplifier la simulation dynamique du procédé, nous avons opté pour la méthodologie suivante : répartir le procédé en deux blocs : Le premier bloc comporte le côté cascade incluant les échangeurs LNG-100, LNG-101, LNG-102 et qui produit l'utilité froide nécessaire pour la liquéfaction du biométhane (CUMR). Le deuxième c'est le côté biométhane incluant les échangeurs LNG-104 et LNG-105 et qui assure le pré-refroidissement et la condensation du flux du biométhane. La simulation en régime dynamique est restreinte au premier bloc. Une fois la simulation lancée, après stabilisation du système on note les résultats du flux CUMR (Température, pression, débit molaire et composition). Pour une visualisation prévisionnelle du comportement dynamique de tout le procédé, on considère quelques points des résultats dynamiques du flux CUMR et pour chaque point on lance une simulation du bloc deux.

2.2.1.1. Simulation du bloc cascade

A. Dimensionnement des équipements

Dans cette partie, les résultats du dimensionnement des différents équipements (comme expliqué précédemment) sont présentés. Pour les échangeurs, le dimensionnement a été effectué par Aspen EDR. Le UA a été ajusté pour assurer la concordance entre les résultats du régime stationnaire et ceux de la dynamique (une fois le régime permanent est atteint) (voir Tableau 32). Pour les vannes et les séparateurs les propositions de dimensionnements de Aspen HYSYS ont été retenues (voir Tableau 33 et Tableau 34).

Tableau 32 : Dimensions des échangeurs

Equipements	Géométrie		Propriétés des plaques	Transferts (kJ/h-m ² -C)	
	L	W		U _C	U _H
Echangeurs			Nombre de plaques		
LNG-100	0,45	0,45	18	2855	3495
LNG-101	2,35	2,35	4	2803	2803
LNG-102	1,5	1,5	2	5493	5493

Tableau 33 : Dimensions des vannes		Tableau 34 : Dimensions des Séparateurs Flash	
Vannes	Conductances	Séparateurs Flash	Volumes (m ³)
VLV-100	17,80	V-100	2 x10 ⁻³
VLV-101	2,647x10 ⁻²	V-101	2 x10 ⁻³
VLV-102	7,029 x10 ⁻²	V-102	1 x10 ⁻³
VLV-103	2,011 x10 ⁻²		
VLV-104	0,2226		
VLV-105	500		

Côté cascade

Côté Méthane

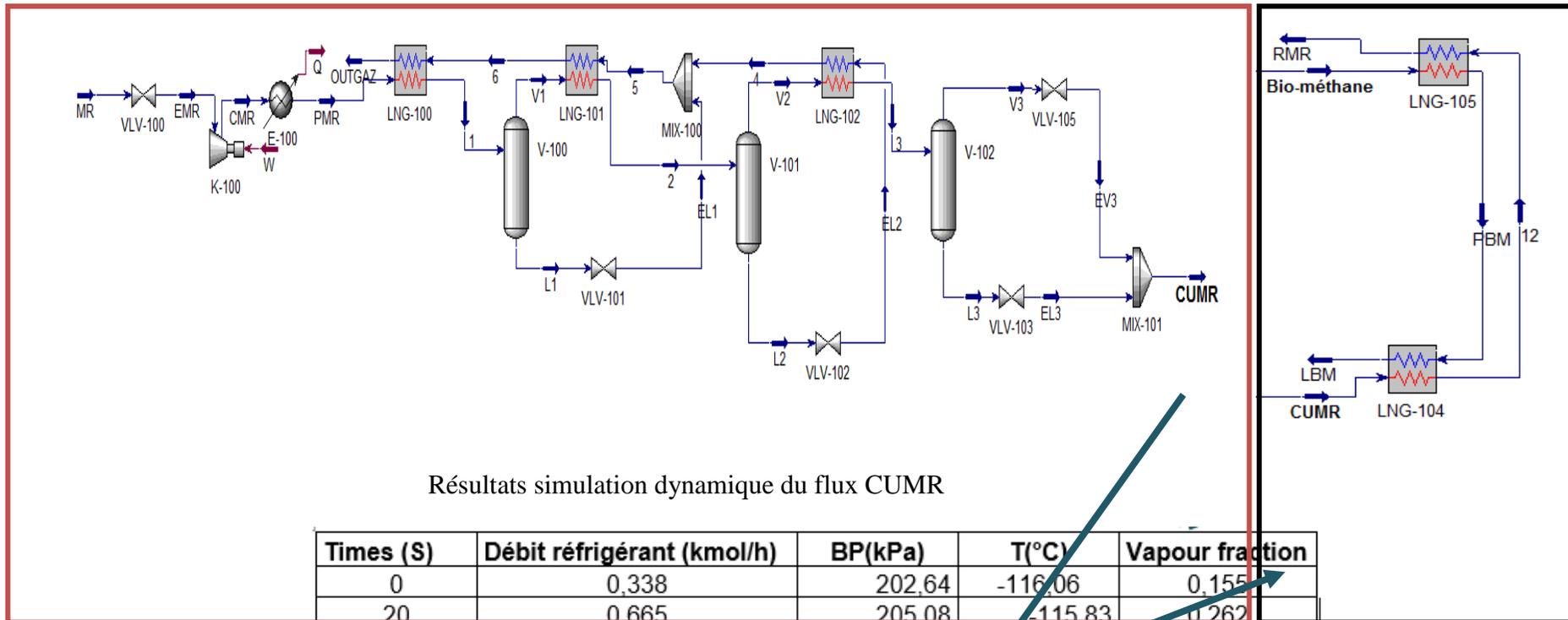


Figure 51 : Schématisation de la méthodologie adoptée pour la simulation dynamique du cycle.

B. L'instrumentation pour le contrôle du cycle

L'objectif du contrôle est de maintenir la stabilité du cycle par rapport aux différentes perturbations et d'assurer la production des frigories nécessaires à la liquéfaction du biométhane et le temps de mise en régime le plus court possible. Le type de contrôle utilisé est le PID (régulation Proportionnelle-Intégrale-Dérivée). Dans cette étude, le débit du mélange des réfrigérants est contrôlé en ajustant l'ouverture de la vanne VLV-100. Les pressions des flux EL1, EL2 et EV3 sont contrôlées en agissant respectivement et simultanément sur l'ouverture des vannes VLV-101, VLV-102 et VLV-103. Pour maintenir une condensation partielle à chaque étage du cycle, les températures du flux 1 et 2 doit être autour de -0,4 et -59,9°C. Pour ce faire, les températures du flux T_6 et T_4 ont été contrôlées en agissant sur les débits de retours aux échangeurs LNG-101 et LNG-102 par les biais des vannes VLV-101 et VLV-102. En augmentant l'ouverture des vannes les températures augmentent et inversement en réduisant l'ouverture, les flux de retours sont plus froids.

Les paramètres de réglages des différents contrôles ont été basés sur les recommandations d'Aspen HYSYS (Dissinger, 2012).

Tableau 35 : Paramètres de réglage des différents contrôles.

Variables à contrôler	Kc	τ_i (Minutes)	τ_d (Minutes)
Débit	0,1	0,2	0
Niveau de liquide	2	10	0
Pression	2	2	0
Température	1	20	0

C. Validation du modèle dynamique

La validation du modèle dynamique est effectuée en comparant les résultats des simulations statiques avec ceux de la dynamique (une fois le régime permanent est atteint). Pour les différentes simulations, les résultats des simulations stationnaires optimisées ont été considérés comme état de référence. Les résultats de cette comparaison sont présentés dans les Tableau 36.

En se basant sur les résultats du Tableau 36, on note une déviation des résultats des simulations statiques de 0-0,5% pour la majorité des variables. La comparaison indique que les résultats de la simulation dynamique (une fois le régime permanent est atteint) correspondent bien aux simulations du régime stationnaire. Par conséquent, le modèle dynamique peut être utilisé pour prédire les comportements dynamiques de ce procédé.

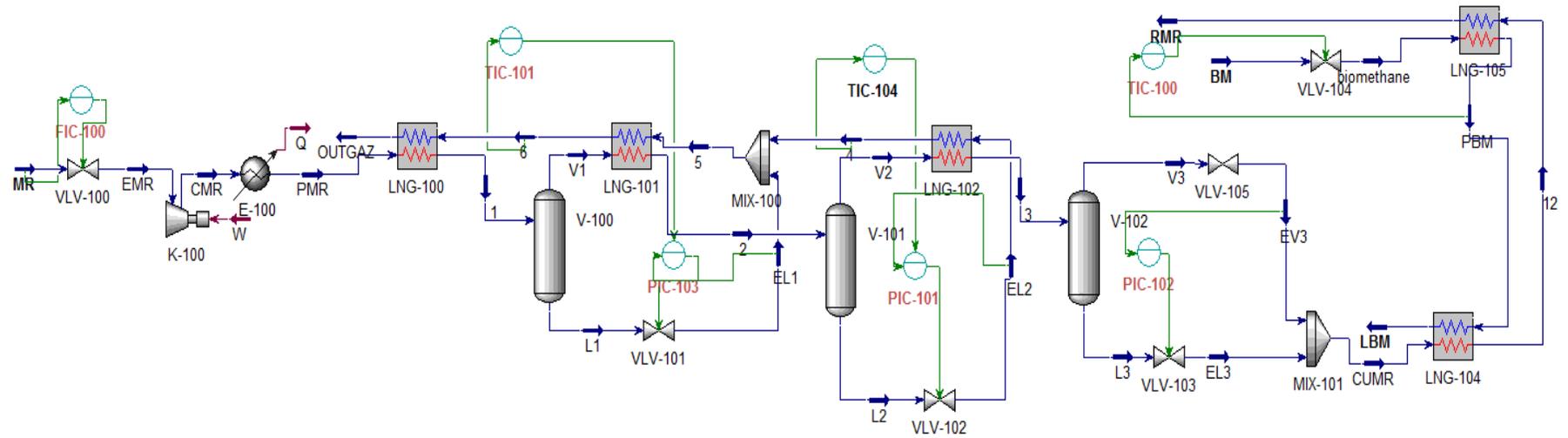


Figure 52 : Schéma de procédé du cycle avec l'implémentation des composants de contrôle.

Tableau 36 : Comparaison entre les résultats de la simulation statique et ceux de la dynamique.

Paramètres	Résultats des simulations		Déviation
	Régime stationnaire	Régime dynamique	
Débit MR (kmol/h)	1,805	1,805	0%
HP (bar)	11,25	11,90	0,5%
BP (kPa)	2,025	2,136	0,5%
Débit BM (kmol/h)	0,45	0,445	0,1%
T₂ (°C)	-59,5	-59,44	0,002%
T₃ (°C)	-82,48	-78,91	0,4%
T_{CUMR} (°C)	-116	-116,1	0,008%

Les échangeurs de la cascade (LNG-100, LNG-101, LNG-102) sont des échangeurs clés du procédé de liquéfaction du biométhane. Le bon fonctionnement du cycle requiert une condensation partielle à chaque étage et une condensation totale à la sortie de l'échangeur LNG-103. La vanne VLV-103 est ajoutée comme artifice de simulation et techniquement nécessaire, car justement en régime transitoire le risque de présence d'une fraction de vapeur dans le flux V3 est important.

Dans la section qui suit, les résultats des simulations en régime dynamique des échangeurs LNG-100, LNG-101 et LNG-102 sont présentés. Les Figure 53, Figure 54 et Figure 55 représentent respectivement les variations des températures T₁, T₂, T₃ en fonction du Temps. La Figure 56 représente la variation de la fraction liquide du flux trois en fonction du temps et la Figure 57 représente la variation du débit molaire CUMR en fonction du temps.

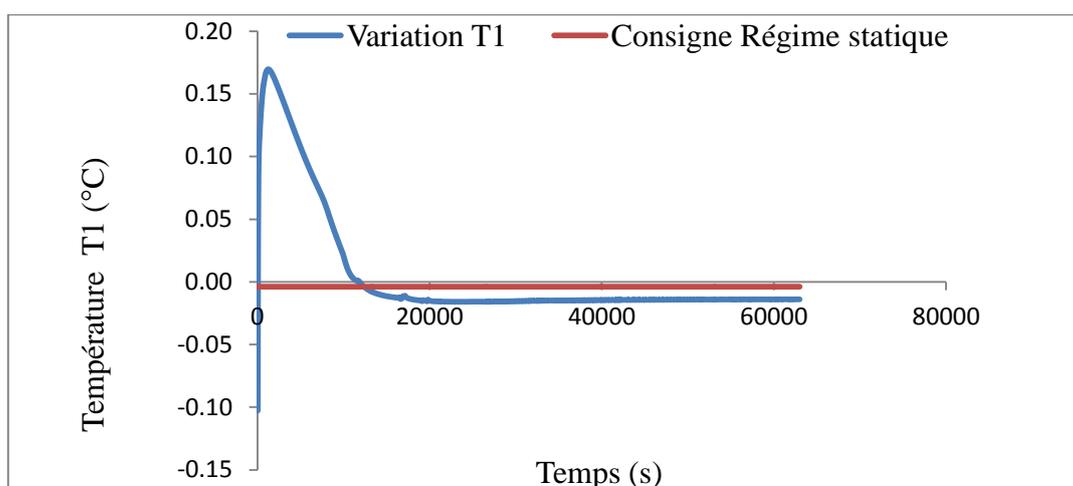


Figure 53 : Profil de la température T1 en fonction du temps et comparaison avec la consigne du régime statique.

Pour l'échangeur LNG-100, la température T1 en régime stationnaire est fixé à $-0,4\text{ °C}$ afin d'assurer une première condensation du mélange réfrigérant. En régime dynamique, au démarrage des simulations, la température augmente jusqu'à 16 °C puis au fur et à mesure de l'opération du cycle le refroidissement permet à la température T1 de diminuer et de se stabilise à une température de $-1,395\text{ °C}$. Le temps nécessaire pour la stabilisation de la température de ce flux est de 5h.

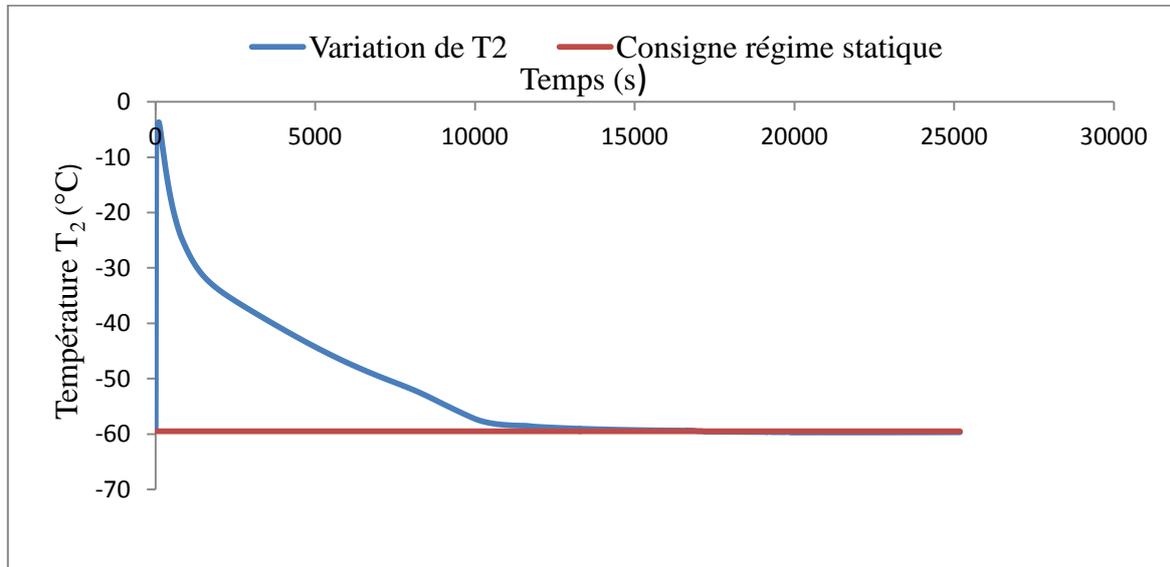


Figure 54 : Profil de la température T2 en fonction du temps et comparaison avec la consigne du régime statique.

Pour l'échangeur LNG-101, la température T2 en régime stationnaire est fixé à $-59,5\text{ °C}$. À ce stade, 53% du mélange réfrigérant est condensé. En dynamique la température de ce flux augmente à 0 °C et se stabilise à $-59,47\text{ °C}$. Le temps nécessaire pour atteindre le régime permanent est de 3,5h.

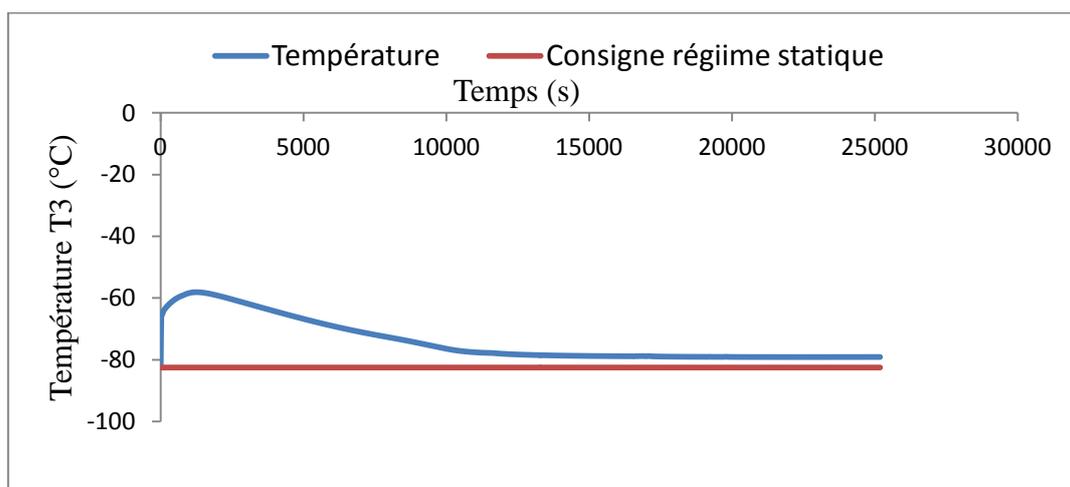


Figure 55 : Profil de la température T3 en fonction du temps et comparaison avec la consigne du régime statique.

Concernant l'échangeur LNG-102, la température T_3 en régime stationnaire est fixé à $-82,48^\circ\text{C}$. À ce niveau 100% du mélange réfrigérant est condensé. En régime dynamique la température de ce flux augmente à -63°C puis diminue pour se stabiliser à $-78,91^\circ\text{C}$. Le temps nécessaire pour la stabilisation de cet échangeur est de 4h.

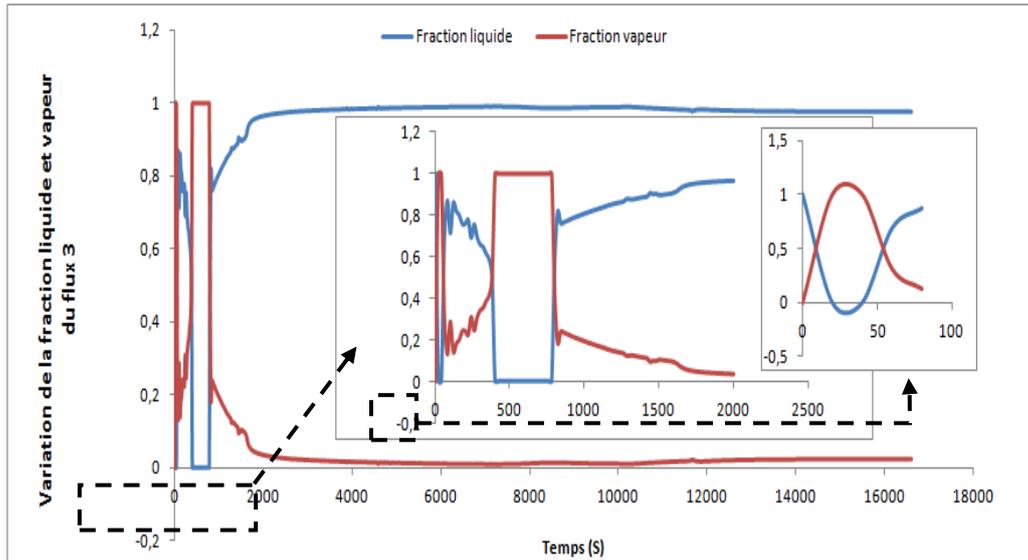


Figure 56 : Variation de la fraction liquide/vapeur du flux trois en fonction du temps.

Comme décrit précédemment, la condensation du flux trois est une contrainte imposée au système en régime stationnaire. En régime dynamique le maintien de cette contrainte nécessite un temps de stabilisation. Au démarrage des simulations, une condensation totale du flux est notée, étant donné que l'état de référence des simulations dynamiques est le résultat de la simulation statique. Ensuite la température augmente progressivement au niveau des échangeurs et une vaporisation progressive du flux trois se produit. Au fur et à mesure du refroidissement du cycle, le régime stationnaire s'établit et on a formation de 96% du liquide. Le temps nécessaire pour stabilisation du titre liquide est 3,5h.

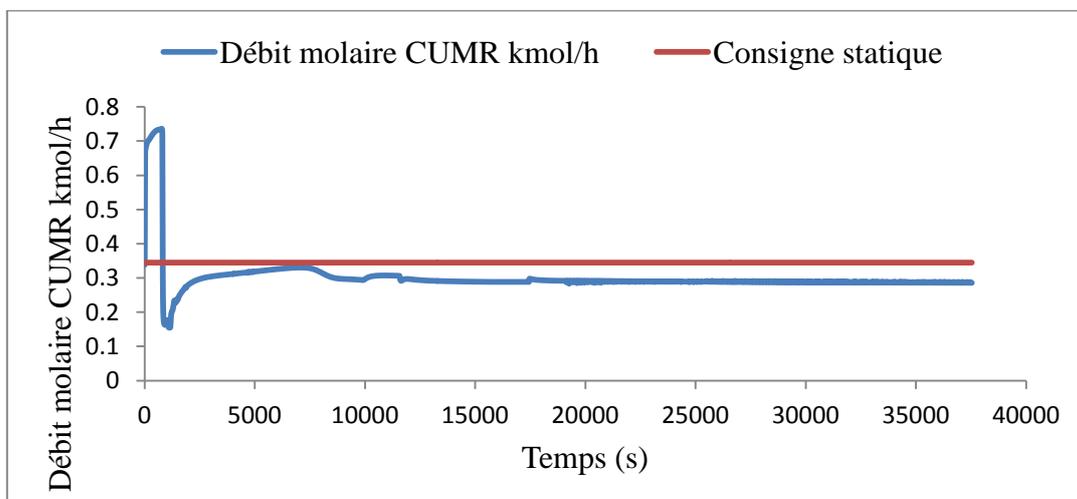


Figure 57 : Variation du débit molaire du flux CUMR alimentant le bloc biométhane.

Le flux CUMR représente l'utilité froide qui alimente le bloc biométhane et assure sa liquéfaction. En régime stationnaire ce flux a un débit de 0,3446 kmol/h et une température de -116°C. En se basant sur l'allure de la Figure 57, on remarque, qu'en régime transitoire le débit augmente puis décroît et se stabilise après un temps de réponse de 5h. En effet, au début de la simulation dynamique, le cycle s'échauffe progressivement et par conséquent la condensation est défavorisée, le débit de retour au compresseur est moindre et le flux de vapeur est important. Le système se refroidit, la condensation prend place, le débit du flux CUMR décroît et se stabilise à un débit de 0,28 kmol/h.

2.2.1.2. Simulation pseudo-transitoire du bloc biométhane

A. Influence de la variation du débit de biométhane à injecter dans le cycle et du débit total de MR

Pour évaluer le comportement pseudo-transitoire du bloc biométhane, les résultats dynamiques du flux CUMR sont considérés. Le but est de quantifier pour un débit donné de mélange de réfrigérant au point CUMR avec les conditions opératoires associées, le débit du biométhane à injecter dans le système pour avoir une liquéfaction totale du flux biométhane. Le débit associé correspond à un point de saturation. Cette façon de procéder a été adoptée afin de réduire les variables d'ajustement et de contrôle dans la modélisation dynamique de HYSYS, ainsi tout en un gain de temps de calcul, et en permettant d'évaluer l'évolution des performances du système lorsqu'il n'est pas en régime stationnaire. La Figure 60 représente la variation du débit du flux CUMR résultant de la simulation dynamique du bloc cascade et le débit de biométhane requis en fonction du temps.

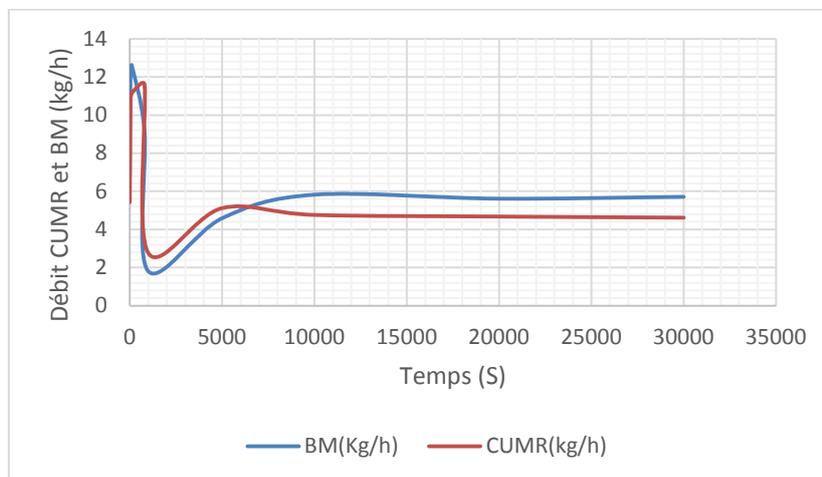


Figure 58 : Variation débit CUMR et BM à injecter en fonction du temps.

D'après les résultats de la Figure 58, on remarque une croissance du débit de biométhane à injecter dans le cycle durant les 13 premières minutes. Cela est dû au débit du mélange de réfrigérants important, disponible au début du lancement de la simulation dynamique. Cette utilité froide disponible entraîne un pincement au niveau de l'échangeur LNG-104, dû au sous-refroidissement du débit de biométhane initiale qui est de 7,219 kg/h. Les deux débits ensuite s'inversent, car le système devient plus chaud, le débit du biométhane à injecter est

par conséquent réduit. Etant donné que le débit du flux CUMR se stabilise à un débit 4,6 kg /h, le débit de biométhane requis est de 5,615 kg/h.

Le débit total du mélange réfrigérant alimentant tout le cycle en boucle fermée est de 1,805 kmol/h. En régime dynamique, ce débit se stabilise à 1,8047 kmol/h. Le temps de stabilisation est estimé à 4h. Les fluctuations du débit survenant au démarrage des simulations sont dues aux éventuelles pertes de masse régies lors des remplissages des colonnes flash (séparateur).

A. Variation des performances du cycle en régime dynamique

Les Figure 59, Figure 60 représentent respectivement la variation des performances du cycle en régime dynamique en fonction du temps, incluant la puissance fournie au compresseur et l'énergie spécifique (kWh/kg du biométhane liquéfié).

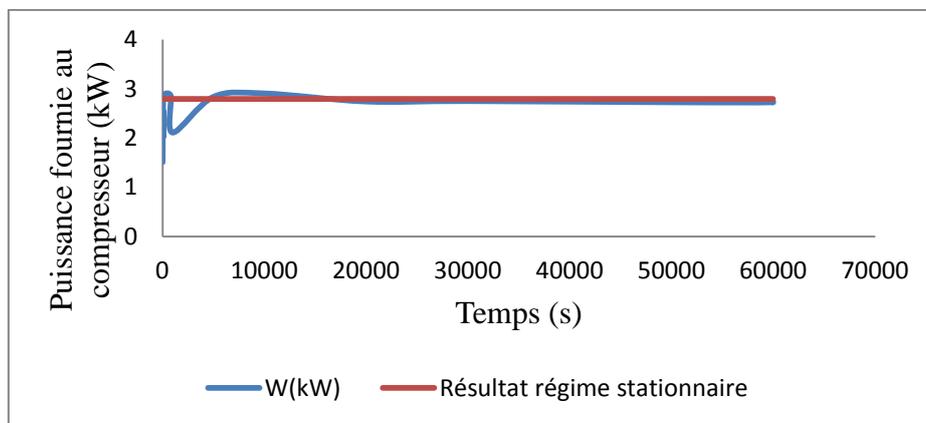


Figure 59 : Variation de la puissance fournie au compresseur en fonction du temps.

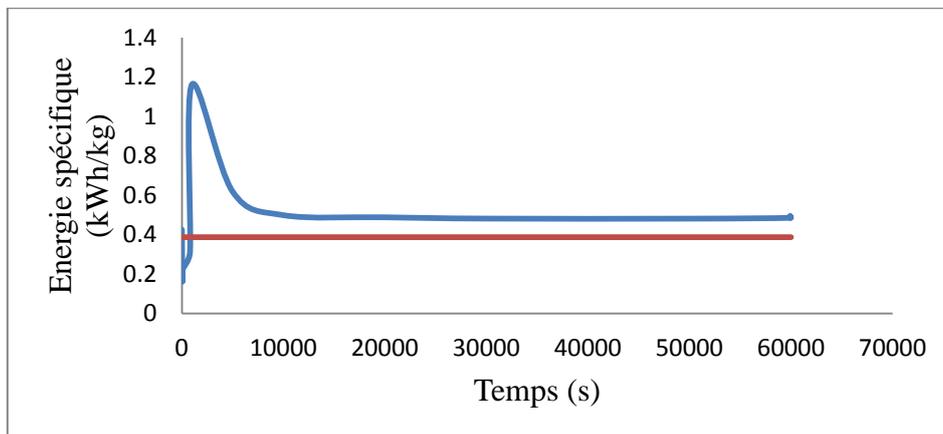


Figure 60 : Variation de l'énergie spécifique en fonction du temps.

En se basant sur les résultats de la Figure 59, on remarque que la puissance fournie au compresseur en régime dynamique est réduite en comparaison avec celle fournie en régime stationnaire. Au démarrage des simulations, le débit du flux CUMR est important, la température de retour au compresseur est plus basse, par conséquent, la puissance fournie au compresseur est plus basse. Quand le système se stabilise, la puissance fournie au compresseur est de l'ordre de 2,723 kW pour un débit de biométhane de 5,615 kg/h. le

système opérant à charge réduite du biométhane, la pression de décharge au niveau du compresseur doit être réduite pour palier le pincement au niveau de l'échangeur LNG-104. Par conséquent la condensation est favorisée à chaque étage, le retour au compresseur est plus froid, ce qui augmente sa densité volumétrique. En conséquence, la puissance requise au niveau du compresseur est réduite. Concernant l'énergie spécifique (Voir Figure 60), au démarrage des simulations, la puissance fournie au niveau du compresseur étant réduite alors que le débit du biométhane liquéfié est important (12,51 kg/h) (car débit CUMR plus grand, 67,16 kg/h) engendre une énergie spécifique très basse (0,16 kWh/kg de biométhane liquéfié). Cependant, après stabilisation du système, cette valeur augmente (0,48 kWh/kg) étant donné que le débit du biométhane liquéfié est réduit (5,615 kg/h).

Conclusion

La simulation en régime dynamique des cycles de liquéfaction du gaz naturel est une nécessité pour prévoir le comportement du cycle et apporter les améliorations nécessaires au dimensionnement avant construction de l'unité de liquéfaction.

Dans ce chapitre, la simulation dynamique du cycle à mélange de réfrigérants non inflammables pour la liquéfaction du biométhane a été développée afin d'évaluer le comportement dynamique de ce genre de système. Avant d'entamer les simulations dynamiques, une analyse de sensibilité paramétrique a été effectuée afin d'étudier la flexibilité du cycle à charge réduite du biométhane. Afin de faciliter la résolution en régime dynamique du cycle, le système a été réparti en deux blocs, le bloc cascade et le bloc biométhane.

Les simulations dynamiques ont été lancées au premier bloc et les résultats obtenus ont servi pour avoir une visualisation globale du comportement dynamique de tout le système. Ensuite une comparaison entre les résultats du régime stationnaire et transitoire a été établie. Cette comparaison a prouvé une concordance entre les résultats des deux régimes d'où la capacité du modèle dynamique à prédire le statique. Les conclusions principales à retenir de ce chapitre sont :

- La réduction partielle du débit du biométhane impacte positivement les performances du cycle. En effet, le travail à charge réduite du biométhane requière une augmentation de la pression pour palier le pincement au niveau des échangeurs. Cette augmentation de pression favorise la condensation du flux de réfrigérant à chaque étage du procédé proposé. Le débit de retour au compresseur devient plus froid, ce qui augmente sa densité volumétrique. Par conséquent, la puissance requise au niveau du compresseur est réduite ;
- Le dimensionnement du système et la structure de contrôle conditionnent la convergence des simulations en régime dynamique.
- La déviation des résultats du régime dynamique varie globalement entre 0%-0,05%.
- Au démarrage des simulations, l'utilité froide disponible peut assurer la liquéfaction d'un débit important de biométhane (12,51 kg/h). Par conséquent les performances du cycle sont meilleures.
- Le temps de mise en régime du système étudié requière est de 4h.

Chapitre 4 - Conception, réalisation du banc d'essai et étude technico-économique

Introduction

La conception d'une architecture de cascade représentative de la liquéfaction de biométhane, d'une capacité de liquéfaction de 10 Nm³/h est faite afin de mieux comprendre le fonctionnement du cycle et de suivre réellement le processus de liquéfaction du biométhane de la phase de démarrage du cycle jusqu'à l'arrêt. Il s'agit d'un banc d'essais pouvant atteindre des pressions de fonctionnement allant jusqu'à 30 bar dans la partie haute pression. Les résultats obtenus dans les chapitres précédents ont été pris en compte pour la définition des composants nécessaires à la construction du prototype. Celui-ci répond à un besoin spécifique d'un partenaire industriel, raison pour laquelle le banc a été conçu pour opérer actuellement avec un mélange de réfrigérants inflammables. Cette partie présente une description détaillée du cycle accompagnée d'une étude économique intégrant le calcul du CTA (coût total actualisé) et une comparaison entre l'architecture du banc d'essai et l'architecture hybride (couplage entre le cycle à mélange de réfrigérant et le groupe froid Stirling). Les partenariats établis dans la thèse permettront la future validation expérimentale de ce cycle.

Le banc d'essais est composé de quatre blocs : le bloc compresseur, le bloc cycle à mélange de réfrigérants, le bloc échangeurs de liquéfaction et le bloc pour le stockage du biométhane (voir 62). Les PID et PFD du cycle sont présentés en Annexe 4. La recherche des différents composants du banc d'essais est basée sur les caractéristiques représentées dans le Tableau 37 et le Tableau 38), mais prend en considération les équipements disponibles commercialement.

Tableau 37 : Composition des réfrigérants.

Réfrigérants	Composition (% Mol)
Méthane	47
Ethylène	33
Isobutane	11
Propylène	9

Tableau 38 : Spécifications opératoires.

HP (bar)	30
BP (bar)	3,5

1. Caractéristiques des composants du cycle à mélange de réfrigérant

1.1. Le bloc compresseur

Le bloc compresseur comporte trois éléments principaux : le compresseur, la bouteille anti coup de liquide et le séparateur d'huile. Un châssis, assurant l'isolation mécanique du bloc, a été fabriqué pour associer ces composants.

Chaque type de compresseur est caractérisé par ses propres performances incluant : le taux de compression, la vitesse de rotation, la puissance et le volume aspiré. Les caractéristiques du

compresseur choisi peuvent être par conséquent différentes de celles résultantes de la simulation.

Le taux de compression du cycle à mélange de réfrigérants non inflammables optimisé est de 10 et le débit massique est de 180,6 kg/h. En considérant le mélange de réfrigérant, la densité massique du mélange est de 13,52 kg/m³ ce qui donne un débit volumétrique de 13,35 m³/h. Le compresseur choisi est un compresseur piston à 4 cylindres de type BOCK EX-HGX4/465-4 ATEX, ayant un débit volumétrique aspiré de 24,66 m³/h, un taux de compression de 6,2 et une puissance de 11 kW.



Figure 61 : Vue d'ensemble du block compresseur.

La variation de la vitesse de rotation du compresseur est assurée par un variateur de fréquence installé hors zone. La plage de fréquence admissible pour l'utilisation du compresseur varie entre 30 et 70 Hz. Le variateur de fréquence permet d'acquérir les données nécessaires au calcul de la puissance électrique consommée par le compresseur. Pour assurer le bon fonctionnement du compresseur, quelques précautions sont à prendre en considération. Il s'agit de prévoir le retour du liquide au compresseur et le retour d'huile de lubrification par l'utilisation de la bouteille anti-coup de liquide et d'un filtre pour la séparation d'huile.

La **bouteille anti-coup de liquide** a pour rôle d'assurer la protection du compresseur d'une éventuelle migration du liquide par la conduite d'aspiration. Le bloc compresseur étant non isolé thermiquement, la bouteille piège le liquide et assure petit à petit sa ré-évaporation à température ambiante. Elle est installée à l'aspiration du compresseur. Cette bouteille de 9,5 l est de type LCY-ST 82203 Carly certifié pour la manipulation des fluides du groupe 1 ATEX.

La lubrification des paliers et des axes du piston est une étape importante pour limiter le frottement et évacuer la chaleur due à la compression. L'huile FUCHS RENISO Triton SE 55, à base de polyesters spéciaux est considérée comme huile de lubrification. Pour éviter le bouchage des canalisations à très basses températures, l'huile est séparée du flux des réfrigérants, par force centrifuge, et retournée à l'entrée du compresseur. Le séparateur d'huile est un Turboil 82207 Carly, certifié pour les fluides du groupe 1 à une pression de fonctionnement maximale de 41 bar et une température de 80°C.

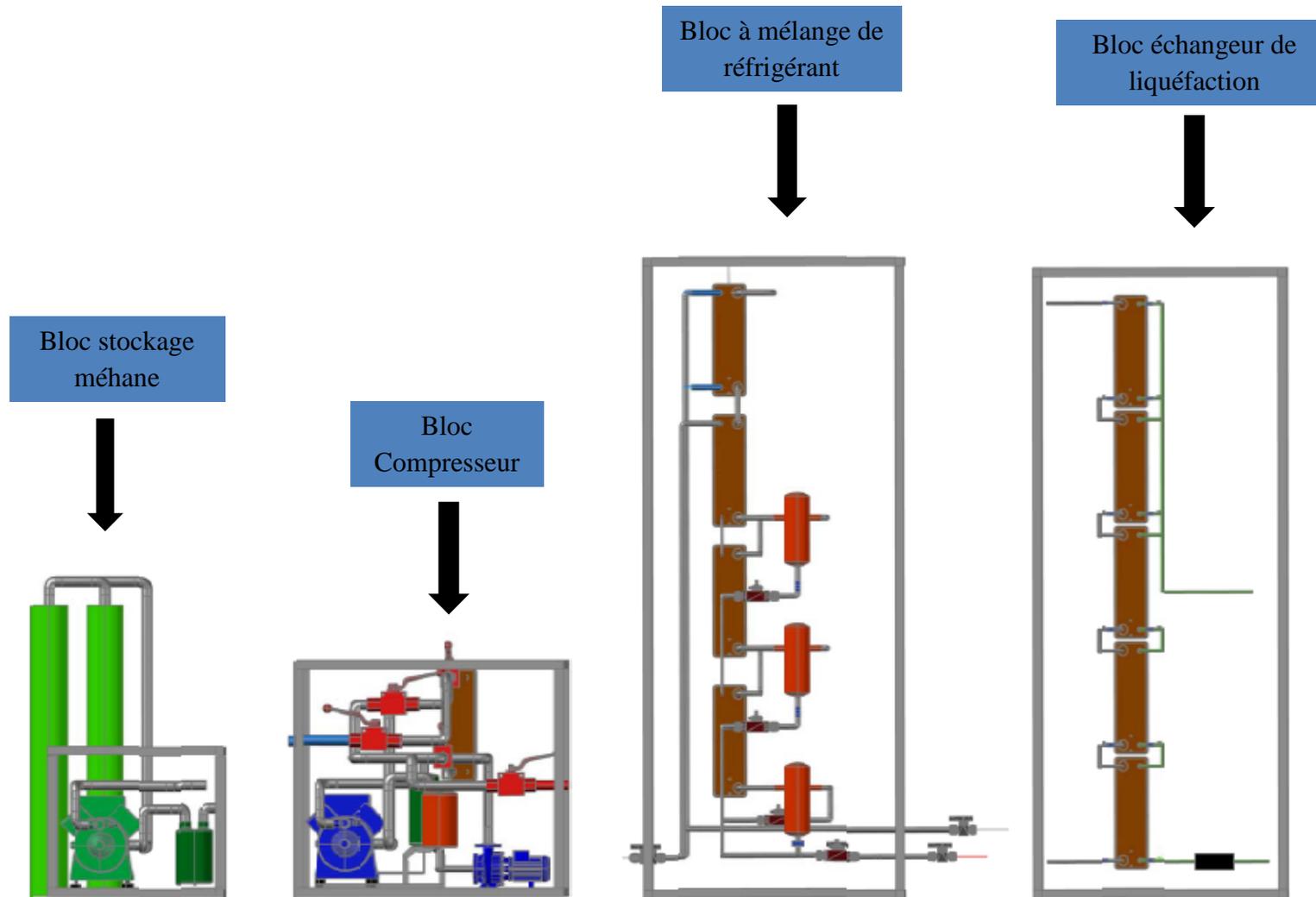


Figure 62 : Schéma en 3D des différents blocs du cycle à mélange de réfrigérant pour la liquéfaction du biométhane.



(a)

(b)

Figure 63 : Bouteille anti-coup liquide (a) et séparateur d'huile (b).

Le bloc compresseur est accompagné également des éliminateurs de vibration en Caoutchouc/Inox afin d'empêcher la transmission des vibrations au système. Ils sont placés à la section et à la décharge du compresseur. Le bloc dispose en plus de 3 vannes. Une vanne d'isolement avec raccord Swagelok intégrée à la sortie du bloc, manœuvrable avec une clé à molette. Une deuxième de service « Rotalock » permettant de réaliser l'appoint en huile, en cas de besoin, et une autre pour charger l'installation.

1.2. Le bloc cycle à mélange de réfrigérant

Le bloc est composé d'un condenseur partiel (réfrigérant/eau, E-100), de trois évapo-condenseurs (réfrigérant/réfrigérant, LNG-100, LNG-101 et LNG-102), de trois bouteilles séparatrices de phases (V-100, V-101 et V-102) et de trois vannes pneumatiques de détente (VLV-100, VLV-101 et VLV-102).

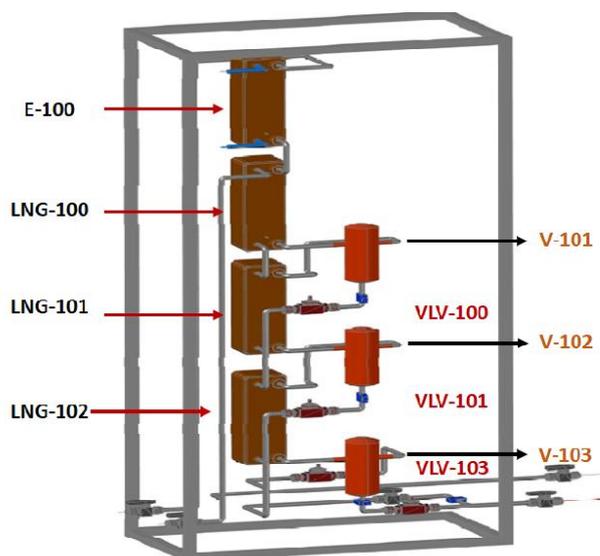


Figure 64 : Schéma 3D du bloc cycle à mélange de réfrigérant.

Les échangeurs de chaleur ont été dimensionnés par la société SWEP. Ce sont des échangeurs à plaques inox brasés cuivre de catégorie I (DESP) supportant une pression maximum de 34 bar et un gradient de température maximal de 50K. Les séparateurs de phase assurent la séparation de la phase liquide de la phase vapeur en utilisant la technologie dry-flow. Ce sont deux bouteilles d'environ 2l de type Turboil 3006S Carly. Chaque bouteille dispose de deux voyants de niveau visible sur la surface latérale des séparateurs. Les vannes de détente sont des micro-vannes de régulation à action pneumatique contrôlées automatiquement par un signal analogique 4-20 mA.

1.3. Dimensionnement SWEP des échangeurs

1.3.1. Principe des échangeurs à plaque

Le choix de la technologie des échangeurs à plaques offre plusieurs avantages : Compacité, coefficient thermique d'échange élevé et une durée de vie importante.

Les échangeurs de chaleur à plaques sont constitués de plaques en aluminium, en acier inoxydable ou en matériau synthétique. L'assemblage s'effectue soit par soudage ou par brasure. Les échangeurs de chaleur SWEP choisis sont des échangeurs à plaques en acier inoxydable brasés cuivre. Les échangeurs brasés sont en principe construits sous la forme d'un ensemble de plaques de canaux ondulées entre les boîtiers de couvercle avant et arrière. Les boîtiers de plaque de recouvrement sont constitués de plaques d'étanchéité, d'anneaux borgnes et de plaques de recouvrement. Pendant le processus de brasage sous vide, un joint brasé est formé à chaque point de contact entre la base et le matériau de remplissage. La conception crée un échangeur de chaleur compact composé de deux canaux ou circuits séparés qui bénéficient pratiquement de toute la surface mise en œuvre.

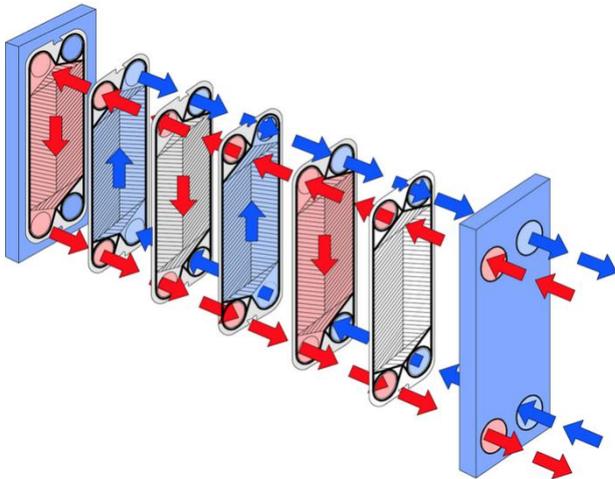


Figure 65 : Configuration des échangeurs à plaques.



Figure 66 : Echangeur à plaques SWEP.

Nous avons fourni des équations polynomiales représentant les propriétés thermophysiques des fluides, ainsi que les conditions d'entrée et de sortie attendues d'après les simulations des chapitres précédents. Le fournisseur a transmis les informations sur les échangeurs que sont à la fois comparés en masse aux résultats de dimensionnement obtenus dans le chapitre précédent.

1.3.2. Dimensionnement SWEP de l'échangeur réfrigérant/eau

L'échangeur réfrigérant/eau assure le pré-refroidissement du flux de refoulement du compresseur. Le dimensionnement SWEP a été effectué en se basant sur les données de l'architecture 1 avec mélange inflammable (Méthane, éthane, éthylène et isobutane). Pour répondre aux contraintes du logiciel de simulation, l'entreprise a fait usage d'un mélange binaire hypothétique pour le dimensionnement (50% méthane, 50% butane). Les caractéristiques de l'échangeur réfrigérant/eau choisi sont présentés dans le Tableau 39 et Tableau 40.

Tableau 39 : Dimensions de l'échangeur Réfrigérants/eau.

Géométrie	
Longueur (mm)	466
Épaisseur (mm)	74
Nombre de plaques	20
Surface d'échange (m ²)	0,612

Tableau 40 : Propriétés physiques de la phase vapeur du flux chaud dans l'échangeur Réfrigérants/eau.

Propriétés physiques	
Conductivités thermiques (W/m, °C)	0,01727
Capacité thermique (kJ/kg, °C)	1,867
Densité (kg/m ³)	8,248

Les résultats de simulation fournis par le constructeur sont présentés dans le Tableau 41.

Tableau 41 : Résultats de simulation SWEP de l'échangeur réfrigérant /eau.

	Côté mélange réfrigérant	Côté eau
Température d'entrée (°C)	126	15
Température de sortie (°C)	34,22	25
Pression opératoire (kPa)	3023	
Débit (kg/h)	89,28	420
Pertes de pression (bar)	17	3,01

1.3.3. Dimensionnement SWEP des évapo-condenseurs

A. Dimensionnement de l'échangeur LNG-100

L'échangeur LNG-100 assure une première condensation partielle du mélange réfrigérant au premier étage du cycle. Le dimensionnement de l'échangeur a été effectué par SWEP en considérant le mélange (Méthane/Ethane) côté chaud et du 100 % méthane côté froid.

L'échangeur LNG-100 a une hauteur de 526 mm et une épaisseur de 119 mm. Il comporte 30 plaques offrant une surface de transfert de chaleur totale de 1,68 m². Le poids de l'échangeur est de 6,48 kg. Ces propriétés physiques sont résumées dans le Tableau 42.

Tableau 42 : Propriétés physiques de la phase vapeur du côté froid de l'échangeur LNG-100.

Propriétés physiques	
Conductivités thermiques (W/m, °C)	0,01317
Capacité thermique (kJ/kg, °C)	1,606
Densité (kg/m ³)	5,551

Les résultats de simulation fournis par le constructeur sont présentés dans Tableau 43.

Tableau 43 : Résultats de simulation SWEP de l'échangeur LNG-100.

	Côté chaud	Côté froid
Température d'entrée (°C)	30	-18,41
Température de sortie (°C)	-11	27
Pression opératoire (kPa)	3000	245
Débit (kg/h)	82,728	420
Pertes de pression (kPa)	3,83	17,9

B. Dimensionnement de l'échangeur LNG-101

L'échangeur LNG-101 assure 50% de condensation du mélange de réfrigérant au deuxième étage du cycle. Le dimensionnement de l'échangeur a été effectué en considérant un mélange (CH₄/C₂H₆) avec la proportion (50%, 50%) côté froid et (60%, 40%) côté chaud.

L'échangeur LNG-101 a une hauteur de 468 mm et une épaisseur 76 mm. Il se compose de 18 plaques offrant une surface de transfert de chaleur totale de 0,96 m². Le poids de l'échangeur varie entre 3,91-3,96 kg. Les propriétés physiques de la phase vapeur du fluide sont résumées dans le Tableau 44.

Tableau 44 : Propriétés physiques de la phase vapeur du côté froid de l'échangeur LNG-101.

Propriétés physiques	
Conductivités thermiques (W/m, °C)	0,01317
Capacité thermique (kJ/kg, °C)	1,606
Densité (kg/m ³)	5,551

Le Tableau 45 représente les résultats de simulations fournis par le constructeur.

Tableau 45 : Résultats de simulation SWEP de l'échangeur LNG-101.

	Côté chaud	Côté froid
Température d'entrée (°C)	-11	-72
Température de sortie (°C)	-60,07	-47,25
Pression opératoire (kPa)	2920	338
Débit (kg/h)	43,81	81,65
Pertes de pression (kPa)	1,18	19,9

C. Dimensionnement de l'échangeur LNG-102

Au niveau de l'échangeur LNG-102, une condensation totale du fluide frigorigène se produit. Le dimensionnement de l'échangeur a été effectué en considérant le mélange (méthane/éthylène) avec la proportion (60 %, 40 %) côté chaud et du 100 % CH₄ côté froid.

L'échangeur LNG-102 a une hauteur de 526 mm et une épaisseur de 119 mm. Il est composé de 28 plaques offrant une surface de transfert de chaleur de 1,56 m². Le poids de l'échangeur est de 6,21 kg. Le Tableau 47 regroupe les propriétés physiques de la phase vapeur du fluide côté froid.

Tableau 46 : Propriétés physiques de la phase vapeur du côté froid l'échangeur LNG-102.

Propriétés physiques	
Conductivités thermiques (W/m, °C)	0,01931
Capacité thermique (kJ/kg, °C)	2,080
Densité (kg/m ³)	63,87

Le Tableau 47 représente les résultats de simulation fournis par le constructeur.

Tableau 47 : Résultats de simulation de l'échangeur LNG-102 établis par SWEP.

	Côté chaud	Côté froid
Température d'entrée (°C)	-60	-114
Température de sortie (°C)	-92	-91
Pression opératoire (kPa)	3010	350
Débit (kg/h, m ³ /h)	37,01	43,54
Pertes de pression (kPa)	0	23,6

1.4. Le bloc échangeurs de liquéfaction biométhane

Ce bloc a pour fonction d'assurer le pré-refroidissement et la condensation du biométhane à une pression de 17 bar. Il est composé de deux échangeurs HE5 et HE6 et de trois bouteilles de 1,255 L de type « Swagelok » dont la fonction est d'accueillir le méthane liquide. Ce bloc est raccordé au bloc stockage méthane par deux tubes flexibles en acier inoxydable. Un flexible d'entrée assurant la charge en méthane à une pression constante et un flexible de sortie, assurant le retour du biométhane liquide après accumulation dans les bouteilles.

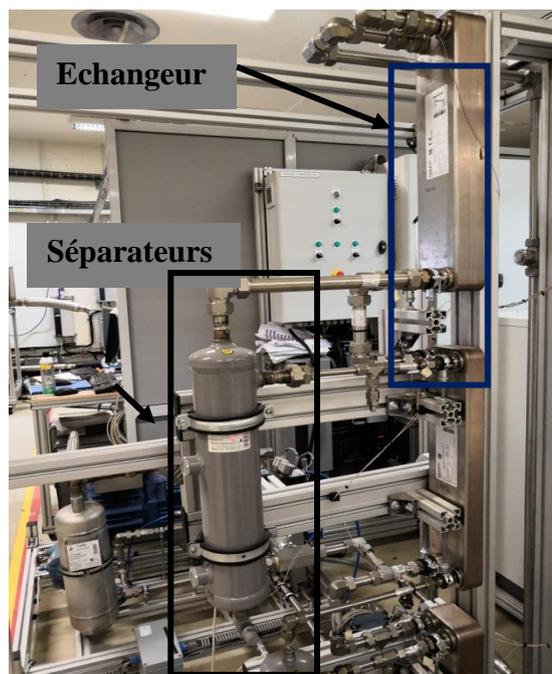


Figure 67 : Vue d'ensemble du bloc cycle à mélange de réfrigérant et noms des échangeurs.

1.4.1. Dimensionnement SWEP des deux échangeurs LNG-103 et LNG-104

A. Dimensionnement de l'échangeur LNG-103

L'échangeur LNG-103 procure de la chaleur sensible au flux du biométhane et assure son pré-refroidissement. Le dimensionnement de l'échangeur a été effectué en considérant du 100 % méthane côté chaud et côté froid. D'après le dimensionnement SWEP, l'échangeur a une longueur de 468 mm et une épaisseur de 76 mm. Il est composé de 25 plaques offrant une surface d'échange totale de 0,782 m². Le poids de l'échangeur varie entre 3.91-3.96 kg. Les propriétés physiques de la phase vapeur du fluide côté froid sont résumées dans le Tableau 50. Les résultats de simulation fournis par le constructeur sont présentés dans le Tableau 49.

Tableau 48 : Propriétés physiques de la phase vapeur du côté froid du fluide de l'échangeur LNG-103.

Propriétés physiques	
Conductivités thermiques (W/m, °C)	0,02348
Capacité thermique (kJ/kg, °C)	2,100
Densité (kg/m ³)	3,174

Tableau 49 : Résultats de simulation de l'échangeur LNG-103 fournis par SWEP.

	Côté chaud	Côté froid
Température d'entrée (°C)	30	-140
Température de sortie (°C)	-118	27
Pression opératoire (kPa)	1700	350
Débit (kg/h, m ³ /h)	7,16	6,77
Pertes de pression (kPa)	0,756	1,31

B. Dimensionnement de l'échangeur LNG-104

L'échangeur LNG-104 procure de la chaleur latente au flux du biométhane et assure sa condensation. Le dimensionnement de l'échangeur a été effectué en considérant le mélange (méthane/éthylène) avec la proportion (82 %, 18 %) côté froid et du 100 % méthane côté froid. D'après le dimensionnement SWEP, l'échangeur a une longueur de 466 mm et une épaisseur de 74 mm. Il est composé de 12 plaques offrant une surface d'échange totale de 0,34 m². Le poids de l'échangeur varie entre 1,88-2,61 kg. Les propriétés physiques de la phase vapeur côté froid sont résumées dans le Tableau 52. Les résultats de simulation fournis par le constructeur sont présentés dans le Tableau 51.

Tableau 50 : Propriétés physiques du côté froid du fluide de l'échangeur LNG-104.

Propriétés physiques	
Conductivités thermiques (W/m, °C)	0,01485
Capacité thermique (kJ/kg, °C)	2,475
Densité (kg/m ³)	7,149

Tableau 51 : Résultats de simulation de l'échangeur LNG-104 fournis par SWEP.

	Côté chaud	Côté froid
Température d'entrée (°C)	-118	-132,87
Température de sortie (°C)	-137	-140
Pression opératoire (kPa)	1753	373
Débit (kg/h, m ³ /h)	7,16	6,77
Pertes de pression (kPa)	0,322	3,47



Figure 68 : Vue d'ensemble du bloc de liquéfaction du biométhane.

1.5. Stockage du biométhane (centrale de transfert)

Le bloc réservé pour le stockage du méthane est composé d'un compresseur hermétique ATEX, d'une réserve de biométhane d'une capacité de 320L et d'un détendeur d'injection de type Swagelok (Figure 71). Le compresseur ATEX est un compresseur piston hermétique. Sa fonction est de comprimer le méthane issu dans les trois bouteilles d'échantillonnage, du bloc précédent, et le renvoyer dans la réserve de stockage. Ce compresseur est de la marque Bock EX-HGX22e/160-4S. En effet le méthane, à injecter dans le bloc de liquéfaction est contenu dans une bouteille Standard d'Air liquide à une pression maximale de 180 bar. Pour des raisons de sécurité, il est dépressurisé à une pression variant entre 5 à 10 bar via le détendeur, et renvoyé vers le réservoir tampon. La charge du bloc de liquéfaction en méthane se fait à partir de ce réservoir. Le méthane liquéfié issu des trois bouteilles d'échantillonnages est acheminé via le flexible de retour au dernier bloc de stockage du biométhane. Il est renvoyé vers un serpentin non hermétique. A température ambiante, le méthane est évaporé et renvoyé vers le compresseur hermétique puis acheminé vers le réservoir tampon.

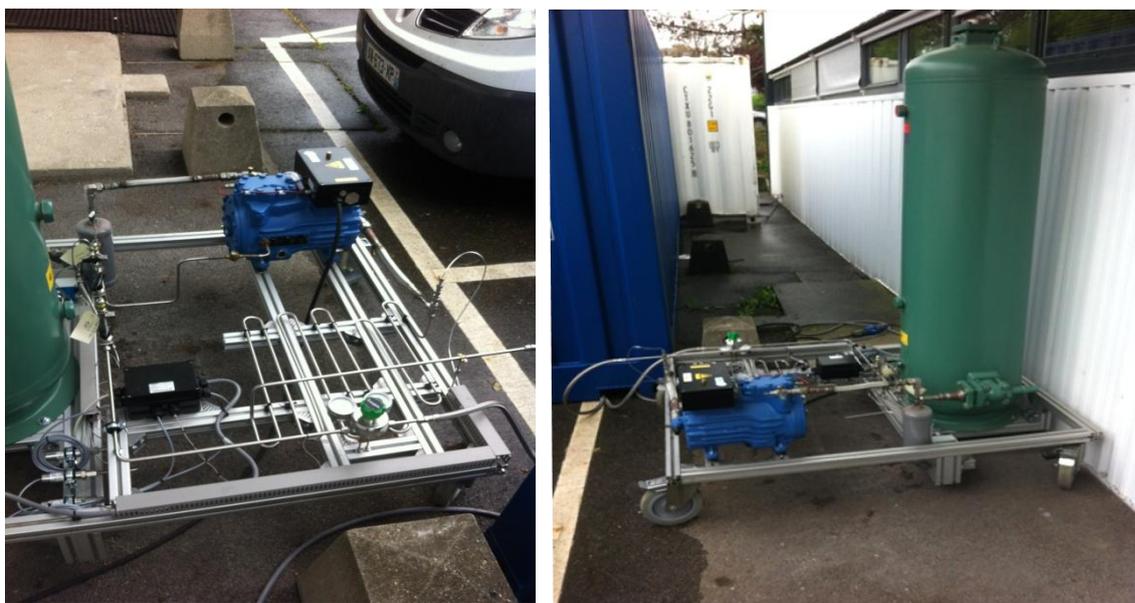


Figure 69 : Vue d'ensemble du bloc assurant le stockage de biométhane.

2. Instrumentation et acquisition des données

2.1. Capteurs de température

Les températures sont mesurées en utilisant des sondes de température extrusive PT100. C'est une sonde en platine ayant une résistance de 100 ohms à 0°C. C'est une seule tige de métal placée directement sur la surface extérieure de la tuyauterie. Comparativement aux thermocouples et aux sondes intrusives, la sonde PT100 permet d'éviter les fuites et des étincelles éventuelles liées au contact direct du capteur avec le fluide. Chaque bloc est accompagné de capteurs de température : Le bloc 1 dispose de deux sondes à l'aspiration et

au refoulement du compresseur. Le bloc 2 comporte 14 sondes situées à la sortie et à l'entrée de chaque échangeur et le bloc 3 en contient 8,

2.2. Transmetteurs de pression

Les transmetteurs de pressions utilisés sont des transmetteurs de pression piézorésistifs KELLER, à sortie analogique. Un convertisseur de pression, intégré au microprocesseur permet d'obtenir un signal de 4 à 20 mA. Ce processus de conversion entraîne une précision de 0,05% de l'échelle de mesure. Ces transmetteurs sont certifiés pour être utilisés dans une ambiance ATEX zone 2. Le bloc compresseur contient deux capteurs à l'aspirateur et au refoulement. Le bloc trois en contient 1, installé à l'entrée du biométhane et la centrale de transfère dispose de deux, également à l'aspiration et au refoulement. La pression mesurée est une pression absolue.

2.3. Débitmètres

Le banc d'essais dispose de deux débitmètres. Un débitmètre côté cycle à mélange de réfrigérants, mesurant le débit massique du fluide frigorigène, installé au refoulement du compresseur. C'est un débitmètre Emerson à effet Coriolis, alimenté en 230 V via une prise à l'extérieur de la zone ATEX. L'autre débitmètre est placé côté méthane, à l'entrée du bloc de liquéfaction. Il s'agit d'un débitmètre régulateur massique suivi d'un transmetteur de pression. Le rôle de débitmètre est de mesurer et contrôler le débit de biométhane alimentant le bloc de liquéfaction. Le débitmètre choisi est un Brooks ATEX SLA5853. Quant au transmetteur de pression, sa fonction est de détecter la chute de pression dans le bloc, résultat de la condensation progressive du biométhane. Pour maintenir cette pression constante, on régule le débit.

Tous les capteurs sont raliés à une boîte de jonction pour être raccordé à l'acquisition via un câble multipaires et une prise type Harting.



(a)

(b)

(c)

(d)

Figure 70 : Sonde de température (a), compresseur ATEX (b), débitmètre côté cascade (c), débitmètre côté méthane (d).

2.4. Mesures de sécurité

Le banc d'essai décrit dans la partie précédente, a été dimensionné pour opérer avec un mélange de fluides inflammables (méthane, éthylène, isobutane, propylène). Une fuite accidentelle de ce mélange d'hydrocarbures peut former une atmosphère explosive (ATEX). Compte tenu de ce risque potentiel, des mesures de sécurité ont été prises pour prévoir en sureté le bon fonctionnement du cycle.

2.5. Assemblage

Compte tenu des risques potentiels, l'ensemble de l'appareillage sensible est certifié ATEX (les deux compresseurs, les capteurs de pression, les boites d'acquisition et le débitmètre côté méthane). Les échangeurs choisis sont à plaques brasés cuivre, ce qui permet un assemblage à forte résistance mécanique. Les sondes de température sont des sondes de surface pour éviter des mesures intrusives et possibles fuites du fluide frigorigène. Les raccordements sont en double bague Swagelok ce qui assure plus d'étanchéité. Les vannes d'isolement sont cryogéniques en dessous de la température minimum de -40°C pour éviter les fuites internes. Les vibrations générées par le compresseur sont dissipées dans des éliminateurs de vibration et tous les tubes sont fixés sur des châssis rigides pour éviter leurs ruptures en fatigue, ainsi qu'une connexion à terre.

2.6. Contrôle de l'étanchéité du circuit

Afin de vérifier l'étanchéité du système, le cycle à mélange de réfrigérant a été mis sous un mélange de R134a et d'azote à 18 bar avec à la fois un enregistrement de la pression et de la température pour examiner l'absence de baisse de pression sur une durée de 5 semaines. Une variation de la pression est signe de fuite dans le cycle. Le R-134a contenu dans l'azote est utilisé comme gaz traceur. Les fuites constatées sont de l'ordre de 1 kg/an.

2.7. Zonage ATEX

Le zonage ATEX consiste à découper le volume du banc d'essai en zones qui peuvent présenter, en cas de fuites accidentelles, des atmosphères explosives. Le banc d'essai comporte 4 zones à risque de formation d'une atmosphère explosive. Ces zones, qui accueillent les différents composants du banc d'essai, incluent : le bloc compresseur, le bloc cycle à mélange de réfrigérant, le bloc des échangeurs de liquéfaction et le bloc stockage du biométhane. Les différentes zones sont délimitées par une cloison qui sépare la partie contrôle de la partie banc d'essai.

La présence d'une atmosphère explosive n'est pas susceptible de se présenter en fonctionnement normale du cycle, et si elle se présente néanmoins, elle n'est que de courte durée. D'après la norme NF EN 60079-10, les différents éléments à risque sont classés en zone ATEX 2.

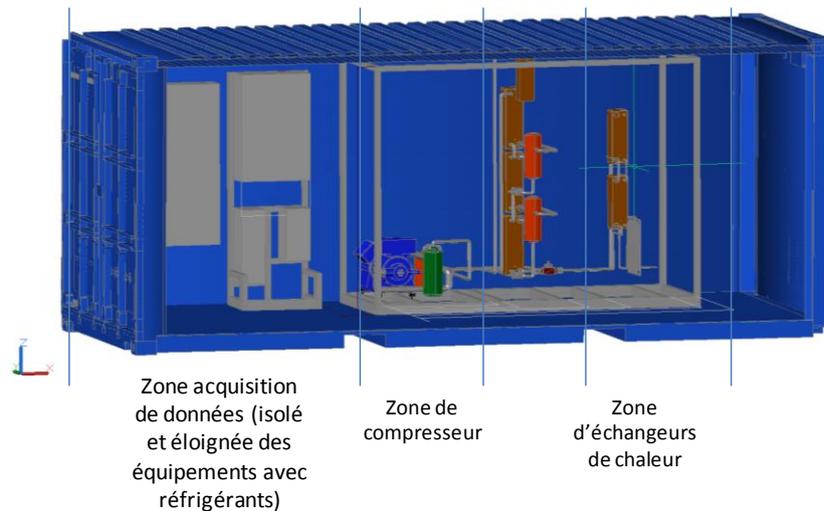


Figure 71 : Schéma 3D du banc d'essai, affichant les zones ATEX.

2.7.1. Calcul du débit de ventilation

La ventilation est une mesure de protection pour limiter le risque de la formation d'une zone ATEX. Les calculs suivants servent à prévoir le débit de ventilation sur les zones à risque dans le banc d'essai du cycle à mélange de réfrigérant en cas de fuites accidentelles d'hydrocarbures. Le tableau 52 présente le taux de renouvellement d'air correspondant aux débits de fuites éventuels pour une charge en fluide évaluée à environ 10kg.

Le débit de ventilation minimal est le débit d'air minimal requis pour diluer l'atmosphère explosive jusqu'à la concentration requise inférieure à la limite inférieure d'explosivité. Les différentes étapes de calcul sont comme suit :

Le taux de renouvellement d'air C par unité de temps peut être calculé selon l'équation :

$$C = \frac{\text{débit de fuite}}{LIE \text{ caisson}} \quad \text{Eq. 25}$$

La limite inférieure d'explosivité de tout le caisson est calculée d'après la formule :

$$LIE \text{ Caisson} = \frac{LIE \text{ du fluide}}{100} * V \quad \text{Eq. 26}$$

Le débit de ventilation minimal est calculé comme suit :

$$\dot{m} = k \times C \times V \quad \text{Eq. 27}$$

Avec k le coefficient de sécurité et V le volume du caisson

Tableau 52 : Calcul du taux de renouvellement d'air et du débit de ventilation minimal.

Fuite (kg/mn)	1	4	8	10	15	20
Densité (kg /dm ³)	0,6	0,6	0,6	0,6	0,6	0,6
Fuite (l/mn)	1,66	6,66	13,33	16,66	25	33,33
LIE méthane	5	5	5	5	5	5
Volume caisson	37,5	37,5	37,5	37,5	37,5	37,5
LIE caisson	1,875	1,875	1,875	1,875	1,875	1,875
Taux de renouvellement	0,888	3,555	7,111	8,888	13,333	17,777
Débit de ventilation (m ³ /h)	33,333	13,333	266,666	333,333	500	666,666
Coefficient de sécurité	3	3	3	3	3	3
Débit de ventilation (m ³ /h)	100	400	800	1000	1500	2000

Le débit de ventilation minimum choisi est de 2000 m³/h. Elle est assurée par une tourelle d'extraction modèle Xeta 355-4P (0,25kW) ATEX distribué par France Air. Cette tourelle est alimentée par un variateur de fréquence de type Danfoss 0,55kW. Elle a été dimensionnée de telle sorte que l'air ambiant permette de ne dépasser la LIE de 5% en cas d'une fuite totale de la charge (10 kg) en 10 secondes. Un coefficient de sécurité (k) de 3 a été pris. Les caractéristiques du ventilateur sont les suivantes : 2500 m³/h pour une ΔP de 200 Pa. La dépression dans le conteneur sera ajustée grâce au percement d'orifice de 80 mm dans le plancher afin de garantir le renouvellement de l'air. On considère une surface d'aspiration au plancher équivalente au diamètre d'aspiration du ventilateur soit environ 30 percements.

2.7.2. Quadrillage de la zone de ventilation

Le quadrillage est implanté afin d'assurer un renouvellement d'air optimal. Le nombre de trous est calculé pour correspondre au diamètre équivalent à l'aspiration du ventilateur. Nous avons estimé qu'un nombre de 30 trous de diamètre 80mm serait suffisant pour garantir le débit. Les trous sont placés de manière à balayer les zones que l'on peut considérer comme sensibles, à savoir les boîtes d'acquisition ou autre matériel de mesure nécessitant une connexion électrique (Figure 74).

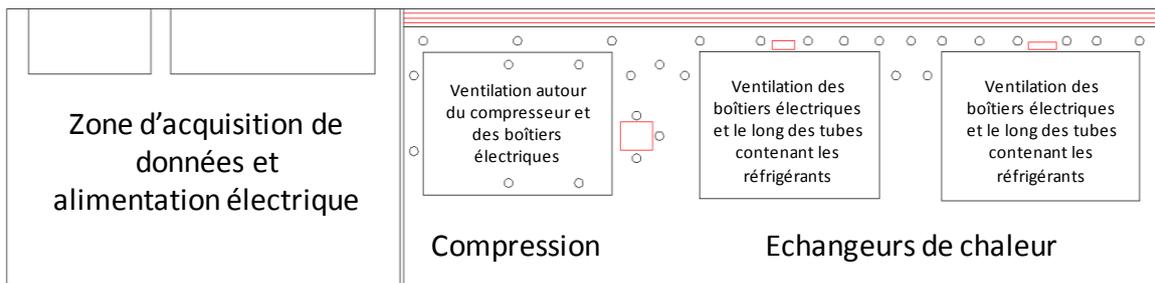


Figure 72 : Implantation des entrées d'air neuf par plancher de la cascade.

3. Etude technico-économique du cycle

Les procédés de liquéfaction étant des systèmes énergivores, une étude technico-économique s'impose afin d'évaluer le coût du cycle à mélange de réfrigérant et d'établir l'impact de l'optimisation sur lui. Cette étude a pour but également de comparer économiquement l'architecture choisie pour le banc d'essai et l'architecture hybride (combinaison de l'architecture 1 avec le groupe froid Stirling). Il a été choisi l'architecture 1 car les composants ne sont pas trop différents des autres architectures et ceux qui les différencient ne représentent pas des variations fortes d'investissement. L'estimation de ce coût a été effectuée en se basant sur l'équation 28, et sur les différents devis des équipements réalisés, lors du montage du banc d'essai.

$$CTA = \frac{\sum_{t=1}^T (C_{CAPEX,t} + C_{OPEX,t}) \times (1 + \tau)^{-t}}{\sum_{t=1}^T P_t \times (1 + \tau)^{-t}} \quad \text{Eq. 28}$$

Avec CTA Coût Total Actualisé

C_{CAPEX} coût d'investissement incluant le coût des équipements et le coût de la main d'œuvre pour une première construction et le coût de la matière première pour une charge initiale.

C_{OPEX} coût opératoire incluant le coût de l'électricité, le coût d'eau de refroidissement et le coût de maintenance

P Production annuelle (méthane liquide en kg/an)

t l'année où les dépenses et la production ont été exécutées

t Durée de vie de l'unité (années)

τ Taux d'actualisation

3.1. Le coût des utilités

Le coût des différentes formes d'utilités est :

- Energie électrique 80 €/MWh

- Utilité de refroidissement 30 €/MWh

3.2. Matière première et matière obtenue

Pour le pré-refroidissement du mélange réfrigérant, l'eau est utilisée comme utilité. Son tarif industriel est assumé à 3 €/tonne. Le produit dans notre cas est le biométhane liquéfié (7,219 kg/h).

3.3. Taux d'actualisation

Le taux d'actualisation est utilisé pour estimer le coût total des flux futurs. Dans notre cas, il permet d'escompter les dépenses futures, durant l'opérabilité de l'unité de liquéfaction, à la date du présent.

Le taux d'actualisation choisi dans cette étude est de 10% pour une durée de vie de l'unité de 15 ans (durée de subvention des unités de biogaz). Le nombre d'heures annuelles de fonctionnement de l'unité est estimé à 8000h. Le coût de maintenance est estimé à 3% du coût opératoire et la durée de construction de l'unité est estimée à 1 année. Le Tableau 53 représente le CAPEX pour chaque composant, la durée de vie associée et l'OPEX.

En se basant sur les valeurs du Tableau 53 et l'équation 28, le coût total de liquéfaction de biométhane a été calculé. Il est de l'ordre de 0,25 €/kg de biométhane liquide. En plus de ce résultat, cette étude nous permet de visualiser la variation du coût total au fil de la durée de vie de l'unité (Figure 73). Elle permet également de mettre l'accent sur les composants demandeurs de plus d'investissements dans ce type d'unité (voir Figure 74).

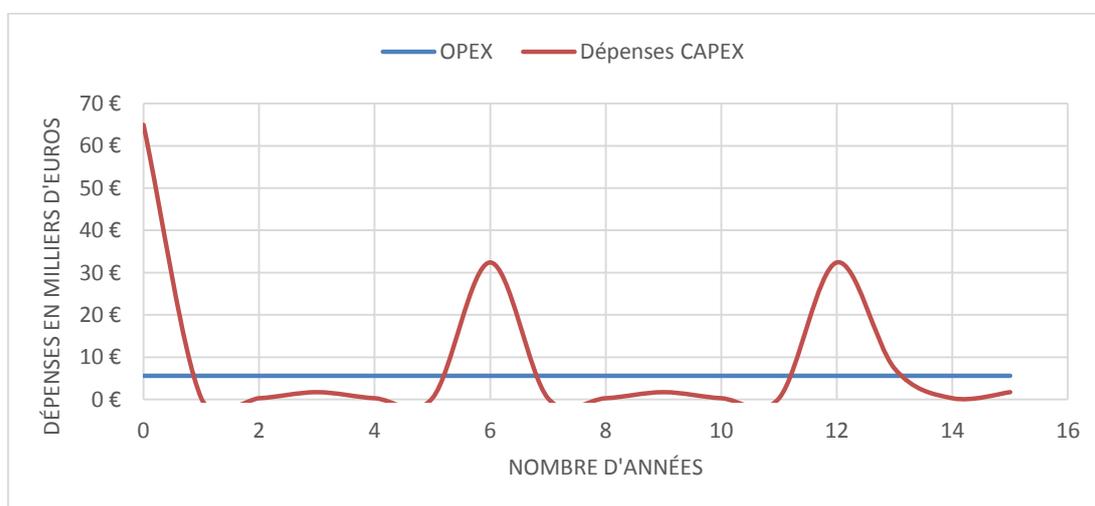


Figure 73 : CAPEX et OPEX (non actualisés) en milliers d'euros au fil de la durée de vie de l'unité de liquéfaction du biométhane.

Tableau 53 : Valeurs du CAPEX, OPEX, durée de vie et puissance requises des différents composants de l'unité de liquéfaction du biométhane.

Equipements	Puissance requise (kW)	CAPEX (€)	Durée de vie (h)	Nombre de remplacement	CAPEX remplacement (€)	OPEX (€)
Compresseur	2,81	5520	50000	2	11040	2240
Charge du MR		250	8000	14	3500	
Echangeur eau/MR	1	369	100000	1	369	640
Echangeur MR/MR		2470	100000	1	2470	
Séparateurs		1542,51	100000	1	1542,51	
Bouteille anti-coup liquide		1620	100000	1	1620	
Vannes		10000	5000	2	20000	
Tubes		1000	100000	1	1000	
Débitmètres		7000	50000	2	14000	
Contrôle et automatisation	0,035	3000	50000	2	6000	22,40
Sondes de température		3124	50000	2	6249,6	
Capteur de pression		2047	50000	2	4094	
Main d'œuvre		20000	200000	0	0	
Conteneur		5556	200000	0	0	
Tourelle		1432,98	20000	5	7164,9	

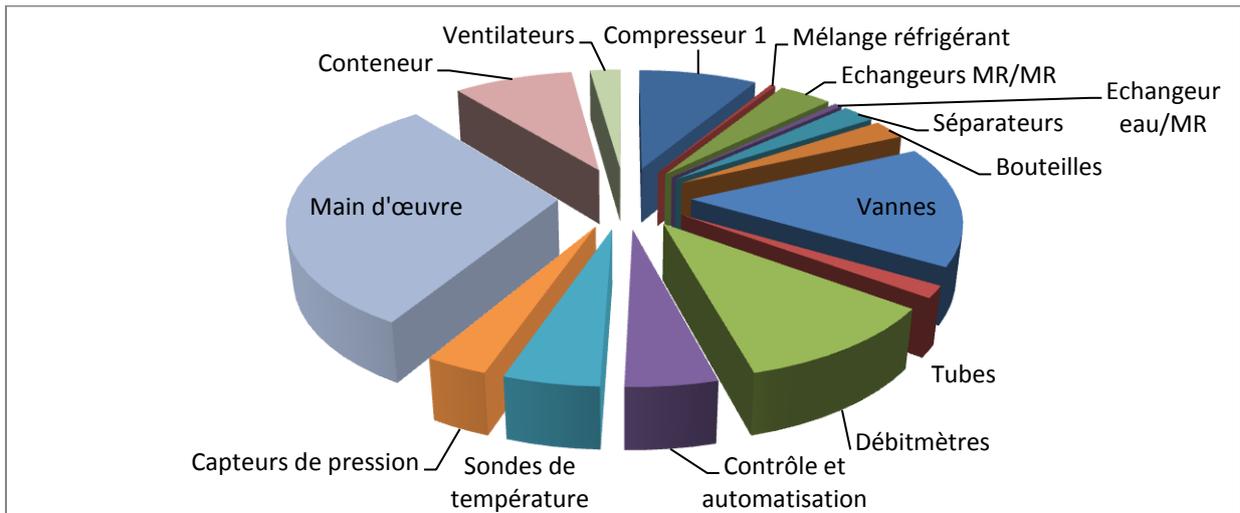


Figure 74 : CAPEX des équipements de l'unité de liquéfaction.

D'après la Figure 73, le coût d'investissement initial est de l'ordre de 64,932 milliers d'euros. Au fil de la durée de vie de l'unité, l'OPEX reste constant. Les dépenses additionnelles marquées par les différents pics dans le graphe concernent le CAPEX relatif au remplacement des équipements.

En se basant sur les résultats de la Figure 76, l'instrumentation représente 23% du CAPEX initial, suivi par les vannes (15%) et les autres équipements.

3.4. Comparaison avec l'architecture hybride

Dans le deuxième chapitre, il a été conclu que l'hybridation du cycle à mélange de réfrigérant avec le groupe froid Stirling améliore les performances de l'unité de liquéfaction et permet d'avoir une efficacité énergétique optimale. Cependant, notre choix n'a pas été porté sur cette configuration car c'est une option pénalisante économiquement. Cette section permettra de justifier ce choix. Pour l'évaluation économique de l'architecture hybride, on s'est basé sur les données du Tableau 53, sur l'équation 28, notre propre base de données et l'article de (Rivera-Tinoco et al., 2016). Les différences par rapport à l'architecture 1 résident au niveau de la puissance fournie au compresseur, le CAPEX et l'OPEX du groupe Stirling. Pour cette configuration le coût de maintenance est estimé à 10%. Le coût d'investissement d'un groupe Stirling est de l'ordre de 25000 €/kW. Le Tableau 54 présente les informations additionnelles à intégrer dans le calcul du coût total actualisé.

Tableau 54 : Valeurs du CAPEX, OPEX à intégrer dans le calcul du CTA.

Equipements	Puissance (kW)	CAPEX (€)	Durée de vie (h)	Remplacement (€)	CAPEX remplacement (€)	OPEX (€)
Compresseur	1,5	3588,41	50000	2	11040	960
Stirling	1,364	25000	50000	2	50000	872,96

Une première comparaison des deux configurations est visualisée sur la Figure 75.

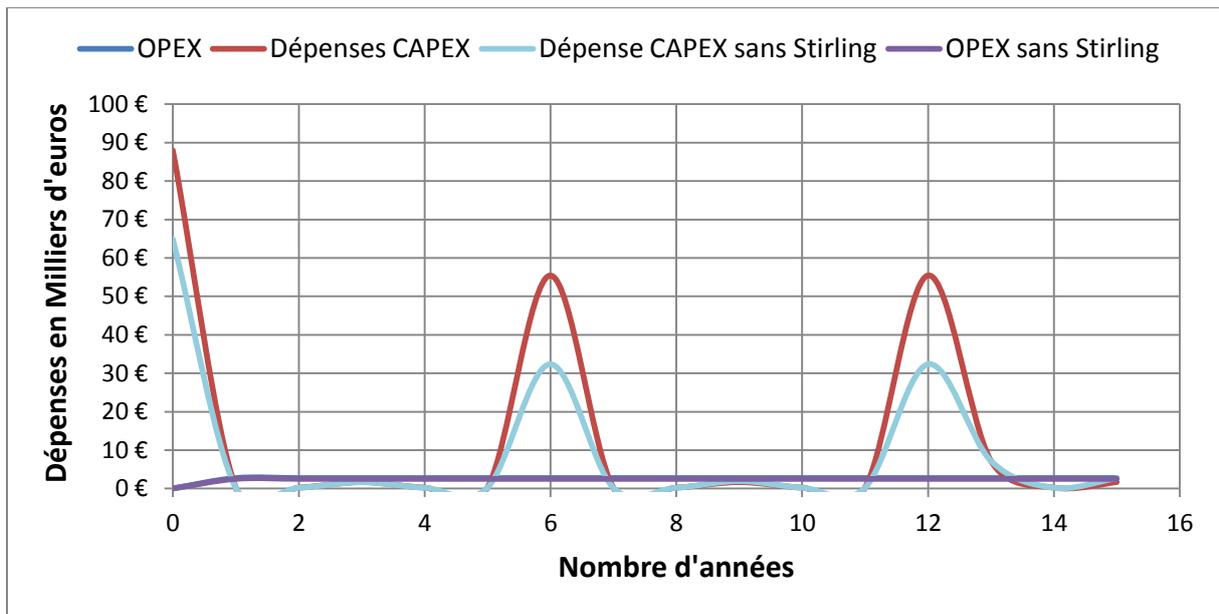


Figure 75 : Comparaison entre le CAPEX et OPEX en milliers d’euros des deux configurations.

Une dissemblance est surtout à noter au niveau du CAPEX. Il s’élève à 89,932 milliers d’euros pour la configuration hybride contre 64,932 milliers pour le cycle à mélange de réfrigérant. L’OPEX ne varie pas beaucoup d’une configuration à l’autre. Certes, il y’a la consommation électrique du groupe Stirling qui s’additionne, cependant la puissance requise au niveau du compresseur est faible. Le coût de remplacement de la machine Stirling est beaucoup plus important ce qui alourdit le CAPEX total de remplacement de la machine hybride. Le coût total actualisé pour la configuration hybride est de 0,38 €/kg de biométhane liquéfié. La Figure 76 donne plus de visibilité sur le poids de chaque coût sur le CTA.

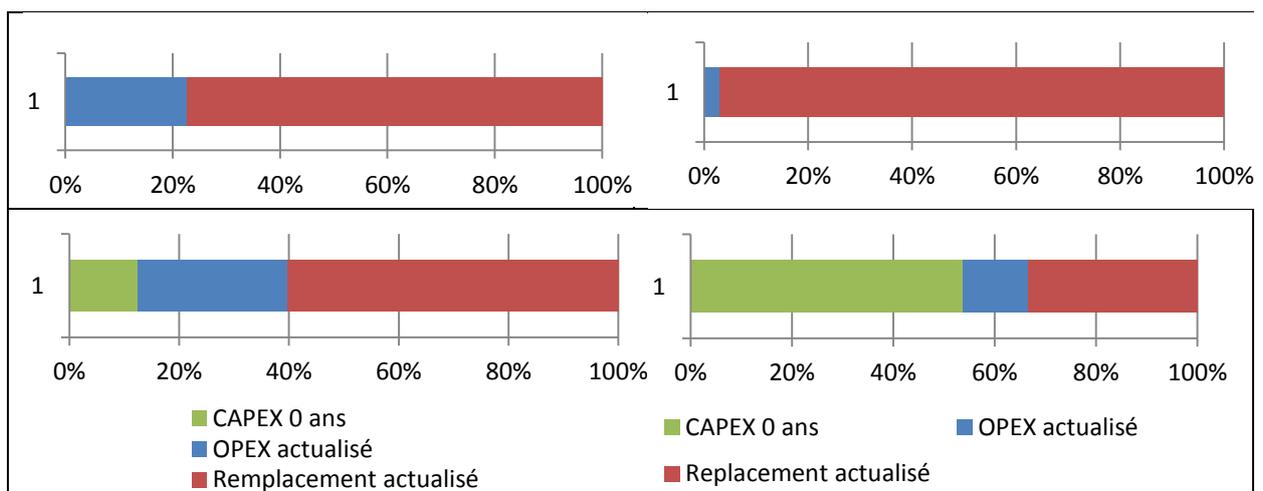


Figure 76 : Ventilation des coûts de l’unité de liquéfaction entre CAPEX, OPEX et le CAPEX de remplacement des équipements de l’architecture 1 (à gauche) et l’architecture hybride (à droite).

Durant la première année, la ventilation des coûts pour les deux configurations indique le poids des CAPEX sur le CTA. L'OPEX ne représente que 3% pour la première configuration et 4% pour l'architecture hybride. Le ratio OPEX/CAPEX est de l'ordre de 0,034.

Pour la durée de vie totale des deux unités de liquéfaction (15 ans), le remplacement des équipements représente environ 28,9% des dépenses totales pour l'architecture 1 et 33,5% pour l'architecture hybride. Le CAPEX et l'OPEX représentent respectivement 54,8% et 16,2 % pour l'architecture 1 et 53,81% et 12,7 % pour l'architecture hybride.

3.5. Analyse de sensibilité paramétrique

Afin d'avoir une meilleure visibilité sur l'impact d'autres indicateurs de coût et d'identifier les limites de rentabilité du projet de l'unité de liquéfaction, une étude de sensibilité a été établie. Cette étude permet d'évaluer le coût de liquéfaction du biométhane en fonction de :

- La variation du prix de l'énergie électrique et les heures d'exploitation annuelle (h) ;
- L'impact du taux d'actualisation et l'année d'opérabilité du cycle ;
- La variation du coût de maintenance.

Cette analyse a été effectuée pour l'architecture du banc d'essai décrit précédemment et l'architecture hybride.

3.5.1. Influence du prix de l'électricité et de la durée de vie

Le prix de l'énergie électrique est un indicateur clé, impactant le coût de liquéfaction du biométhane surtout que le prix du kWh électrique est en évolution constante mais continue depuis 2013. L'impact sur le coût de liquéfaction du biométhane a été évalué en considérant des valeurs supérieures et inférieures au scénario de référence (80 €/MWh) : 40 €/MWh, 100 €/MWh et 150 €/MWh.

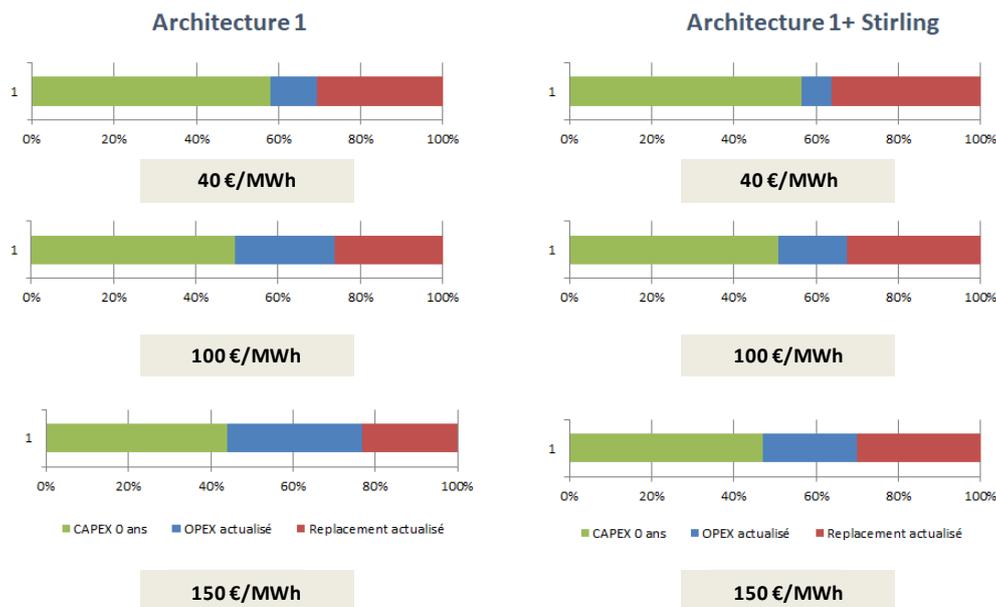


Figure 77 : Ventilation de l'APEX, OPEX et CAPEX de remplacement en fonction de la variation du prix du kWh électrique.

La Figure 77 montre que la baisse du tarif d'électricité à 40 €/MWh entraîne une réduction de l'OPEX actualisé de 50%, par rapport au cas de référence (80 €/MWh), pour les deux configurations. Par contre la hausse du tarif (150 €/MWh) entraîne une augmentation de l'OPEX de presque le double (46,6%) par rapport au cas de référence. Dans ce cas une amélioration de l'efficacité énergétique du système s'impose pour rééquilibrer les coûts.

L'étude économique de l'unité de liquéfaction a été évaluée pour une exploitation annuelle de 8000h (scénario de référence). La Figure 78 montre l'impact de la variation d'exploitation annuelle de l'unité sur le CAPEX et OPEX de l'architecture 1.

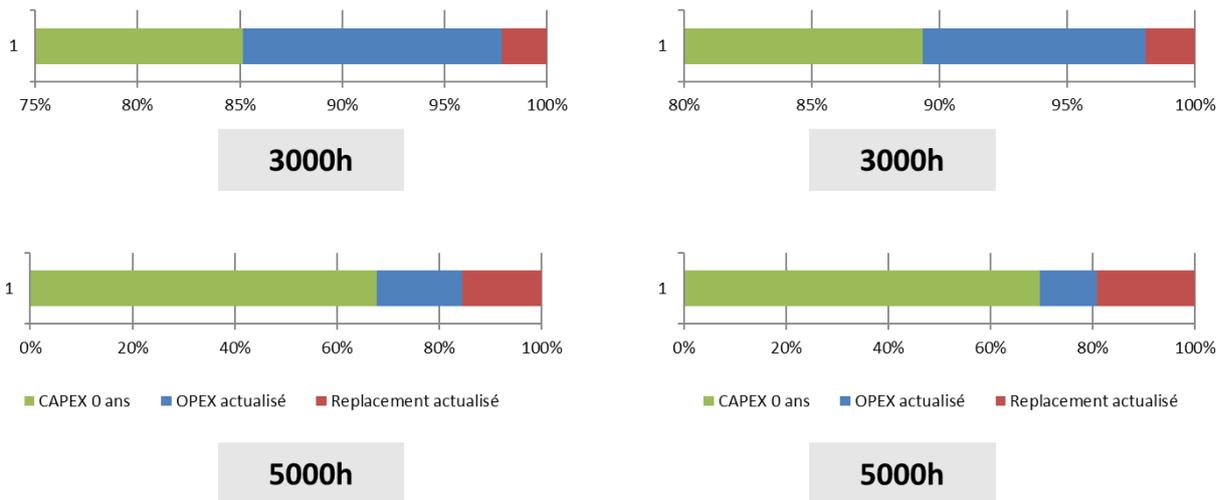


Figure 78 : Variation du CAPEX et OPEX de l'architecture 1 en fonction de l'exploitation annuelle (h).

D'après la Figure 78, on peut constater que la diminution de l'exploitation annuelle réduit le CAPEX de remplacement à 53% pour une durée de vie de 5000h contre 8000h. Une réduction significative à un niveau de 95% est remarquée lorsque la durée de vie est fixée à 3000h (par rapport au cas de référence, en vue de la baisse de la fréquence de remplacement des équipements endommagés). Pour une durée de vie minimale le CAPEX d'investissement initial devient dominant (85% pour une durée de vie de 3000h). L'OPEX connaît également une baisse importante de 42,41% avec 3000h de l'opérabilité de l'unité. Pour l'architecture hybride, le coût de remplacement du groupe Stirling est très coûteux, la restriction du temps d'opérabilité de l'unité a par conséquent un impact plus marquant sur le CAPEX de remplacement avec une baisse de 95% pour une durée e vie de 3000h (par rapport au scénario de référence 8000h).

Le CTA des deux unités a connu par contre une augmentation majeure, en dépit de la réduction du CAPEX de remplacement et de l'OPEX. L'accourcissement du temps annuel d'opérabilité de l'unité entraîne une baisse de la production du biométhane liquide de plus que la moitié du scénario de référence. La Figure 79 représente la variation du CTA des deux unités en fonction de la variation du temps d'opérabilité annuelle.

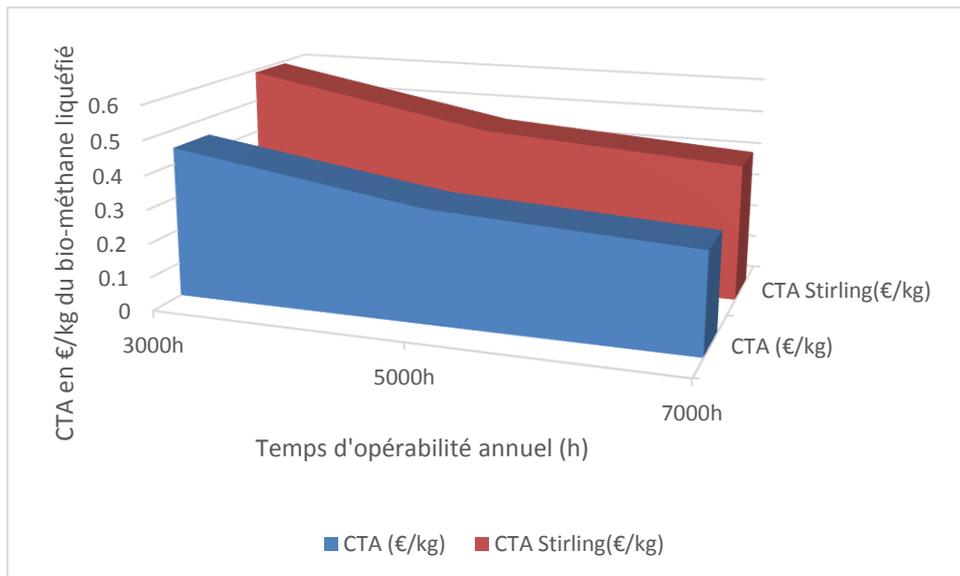


Figure 79 : Variation du CTA des deux unités en fonction du temps d'opérabilité annuel de l'unité.

Le CTA du scénario de référence est de 0,27 €/kWh (8000h). Pour une durée de vie de 5000h le CTA est de l'ordre 0,33 €/kWh pour l'architecture 1 et de 0,454 €/kWh pour l'architecture hybride. Une augmentation supplémentaire du CTA respective de 25% et 23% est observée lorsque l'exploitation annuelle est réduite à 3000 h. Le temps d'opérabilité annuel est par conséquent un facteur décisif de la rentabilité des projets de liquéfaction.

3.5.2. Influence du taux d'actualisation

Pour le scénario de référence, un taux d'actualisation de 10% a été considéré. Ce taux peut varier en fonction des projets d'injection du biométhane. Pour cette raison les taux de 5% et 15% seront étudiés pour évaluer l'impact de la variation du taux d'actualisation sur le coût de production du biométhane. Les résultats obtenus montrent que la considération d'un taux d'actualisation inférieur au scénario de référence (10%), entraîne une amélioration du CTA de 8%.

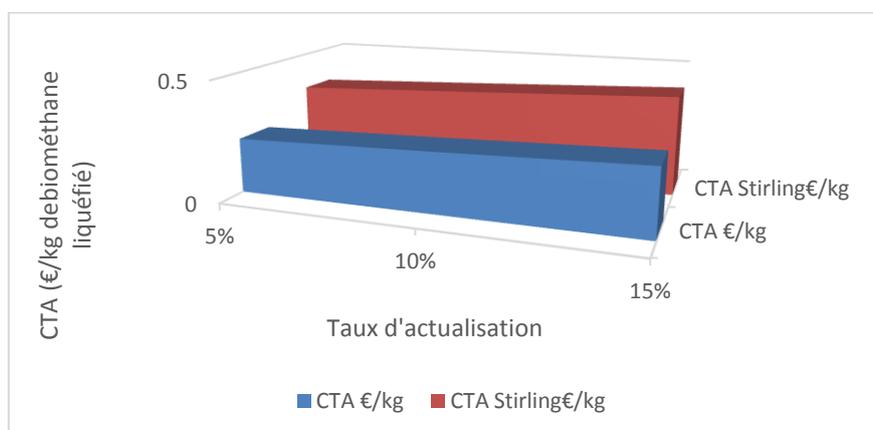


Figure 80 : Variation du CTA des deux unités en fonction du taux d'actualisation.

3.4. Conclusion

Ce chapitre comporte deux parties, le cahier des charges du banc d'essai de l'unité de liquéfaction du biométhane à micro-échelle et une étude technico-économique intégrant une comparaison entre l'architecture du banc d'essais et l'architecture hybride (couplage entre l'architecture 1 et le groupe froid Stirling).

L'étude technico-économique inclut le calcul du coût total actualisé des deux unités. Pour l'architecture 1, ce coût est estimé à 0,25 €/kg du biométhane liquéfié. Pour l'architecture hybride, ce coût s'élève à 0,34 €/kg du biométhane liquéfié. Le couplage entre le cycle à mélange de réfrigérants et le groupe froid Stirling est certes avantageux énergétiquement, cependant le groupe Stirling requière un remplacement de toute la machine 2 fois durant la durée de vie de l'unité, chose qui alourdit le CAPEX de remplacement. Il est à noter que l'évaluation de l'influence du coût de la maintenance a été faite et a montré qu'elle est négligeable sur le CTA de production du biométhane liquéfié.

Une analyse de sensibilité paramétrique a été effectuée afin d'évaluer l'impact de la variation du tarif d'électricité, du temps d'opérabilité et du coût de maintenance sur la ventilation des coûts et le CTA. Ainsi, nous avons montré que :

- La baisse du tarif d'électricité réduit l'OPEX actualisé de 0,8% pour les deux unités ;
- La réduction du temps d'opérabilité des deux unités à 3000h contre 8000h (Scénario de référence) génère une baisse du CAPEX de remplacement et de l'OPEX, par contre le CTA a connu une augmentation majeure en vue de la baisse significative de la production annuelle du biométhane liquéfié.
- L'impact du coût de maintenance reste négligeable par rapport aux CAPEX et OPEX.

Conclusion et perspectives

L'objectif de cette thèse a été de développer un cycle thermodynamique de réfrigération peu énergivore pour la liquéfaction du biométhane à micro-échelle ($\dot{m}_{\text{CH}_4} < 15 \text{ Nm}^3/\text{h}$), tout en développant des outils d'optimisation et de simulation des procédés. Il s'agit d'un travail de modélisation de plusieurs architectures en se basant sur le besoin de refroidissement et de l'inflammabilité du mélange réfrigérants afin d'obtenir des architectures énergétiquement optimales et potentiellement à caractère non-explosif. Le principal verrou au développement de ce genre de système étant leur pénalité énergétique élevée, l'enjeu principal a été de développer une méthode d'optimisation afin de minimiser la destruction d'exergie dans les différents composants des architectures proposées et de réduire au maximum les besoins énergétiques nécessaires à la liquéfaction du biométhane (kWh/kg de biométhane liquéfié). L'originalité de ce travail réside dans la conception de nouveaux cycles à mélange de réfrigérants pour la micro-liquéfaction du biométhane ainsi que dans l'élaboration d'une méthode d'optimisation basée sur la combinaison de la méthode d'analyse exergétique et l'utilisation des méthodes d'algorithmes génétiques.

L'état de l'art sur les procédés de liquéfaction du gaz naturel et du biométhane a conduit à identifier les procédés de liquéfaction extrapolables à l'échelle du biométhane obtenu des sites ruraux (micro-échelle), qui sont : les cycles à expansion de gaz, et les cycles à mélange de réfrigérants. Le procédé qui a été retenu dans notre cas est le cycle à mélange de réfrigérants en particulier la cascade intégrée. Comme point de départ, une architecture avec mélange de réfrigérants inflammables a été modélisée et simulée sous Aspen HYSYS. Un premier diagnostic du cycle a été établi en se basant sur l'analyse exergétique du procédé. Sur la base de ce premier système, trois nouvelles architectures ont été modélisées. La première opère également avec un mélange de réfrigérants inflammables (méthane, éthylène, isobutane et propylène) la deuxième est une combinaison de la première architecture et un groupe froid de type (machine de Stirling), et la dernière architecture proposée opère avec un mélange de réfrigérants non inflammables (R14, R125 et R134a). Pour chaque architecture, une analyse exergétique pour chaque opération unitaire a été établie afin de réaliser une cartographie des irréversibilités qui y interviennent.

Les procédés de liquéfaction, étant des systèmes énergivores, l'analyse exergétique reste insuffisante pour indiquer les pas à suivre pour améliorer leurs efficacités énergétiques. Par conséquent, une méthode d'optimisation basée sur l'hybridation entre une priorisation des variables opératoires par l'analyse exergétique et la méthode d'algorithme génétique a été développée : dans un premier temps, l'analyse exergétique nous a permis de détecter les variables de décision ayant un poids significatif sur l'optimisation. Ensuite, La bibliothèque d'algorithme génétique PIKAIA a été exploitée. L'environnement de cette librairie a été adapté à nos différents cas d'optimisation. A ce niveau, une connexion entre la bibliothèque d'algorithme génétique PIKAIA, Aspen HYSYS et Excel a été développée. L'objectif de cette méthode a été, indirectement, de minimiser la pénalité énergétique en maximisant la quantité du biométhane liquéfié par unité d'énergie électrique consommée. Ainsi, les performances

énergétiques des différentes architectures ont été établies. D'après les résultats des simulations, il s'est avéré que l'hybridation du cycle à mélange de réfrigérant non inflammable, opérant à une pression de 17 bar, avec un groupe froid Stirling est la configuration optimale pour la liquéfaction du biométhane à micro-échelle, (le COP est de 0,5 et la puissance spécifique de consommation est de 0,37 kWh/kg de biométhane liquéfié). Cependant, en considérant l'échelle de liquéfaction, l'hybridation des cycles à mélange de réfrigérant avec le groupe froid Stirling est pénalisante économiquement à micro-échelle ($\dot{m}_{\text{Bio-méthane}} < 15 \text{ Nm}^3/\text{h}$). Afin de quantifier cette pénalité économique, il est pertinent d'évaluer les coûts des équipements pour ce type de configuration pour différents débits de biométhane. Ce travail est fait dans le Chapitre 4.

En termes de performance énergétique, l'architecture 1 avec mélange de réfrigérant non inflammable a été retenue pour l'évaluation de son comportement en régime transitoire. Cette évaluation a pour objectif de déceler des verrous et limites opératoires lors des charges partielles. Plusieurs travaux ont fait objet de l'optimisation des procédés de liquéfaction du gaz naturel, mais moins d'intérêt a été porté sur l'étude du comportement dynamique de ce genre de cycle. Dans le cadre de cette thèse, l'évaluation de la réponse du cycle à certaines perturbations a été effectuée en deux temps : dans un premier temps une analyse de sensibilité paramétrique a été établie afin d'évaluer la flexibilité du cycle à charge réduite du biométhane. Les résultats montrent que la réduction partielle du débit du biométhane impacte positivement les performances du cycle. En effet, le travail de compression à charge réduite du biométhane requiert une augmentation de la pression pour palier le pincement au niveau des échangeurs. Cette augmentation de pression favorise la condensation du flux de réfrigérant à chaque étage du procédé proposé. Le débit de retour au compresseur devient plus froid, ce qui augmente sa densité volumétrique. Par conséquent, la puissance requise au niveau du compresseur est réduite. Dans un deuxième temps, un modèle dynamique du procédé a été développé en prenant en considération deux étapes essentielles : le dimensionnement des différents équipements et l'implémentation du système de contrôle. Ces deux facteurs indéniables conditionnent le pilotage de l'unité de liquéfaction vers un régime permanent. Les résultats de cette partie ont démontré la concordance entre les résultats de la simulation en régime dynamique, une fois le régime permanent est atteint, et ceux du régime stationnaire. Une déviation de 0%-0,05% a été observée.

La dernière partie de cette thèse a fait objet de l'élaboration du cahier de charge pour la réalisation du banc d'essai ainsi que l'étude technico-économique permettant le calcul du CTA (coût total actualisé) et une comparaison économique entre l'architecture du banc d'essai et l'architecture hybride (couplage entre le cycle à mélange de réfrigérant et le groupe Stirling). Les résultats de cette étude ont justifié le choix ultérieur de l'architecture 1 avec mélange non inflammable. Le CTA pour l'architecture 1 a été estimé à 0,253 €/kg de biométhane liquéfié contre 0,34 €/kg pour l'architecture hybride. En dépit des performances énergétiques de l'architecture hybride, le CAPEX de remplacement/maintenance de la machine Stirling alourdit le CAPEX d'investissement et pénalise par conséquent le choix de cette configuration à micro-échelle. Cette étude a traité également l'impact de la variation d'autres facteurs économiques (tarifs d'électricité, exploitation annuelle, taux d'actualisation)

sur la répartition des coûts (OPEX CAPEX) et sur le CTA. Il a été conclu que la production annuelle du biométhane liquéfié est un facteur décisif de la variation du CTA. Si on considère une réduction de l'exploitation annuelle de l'unité de liquéfaction, on observe une baisse du CAPEX et de l'OPEX, cependant le CTA augmente en vue de la baisse significative de la production annuelle du biométhane liquéfié. De même pour le taux d'actualisation, une réduction du taux entraîne une augmentation du CAPEX et de l'OPEX, par contre le CTA diminue car la production annuelle du biométhane liquéfiée augmente.

En perspective, les travaux conduits dans cette thèse doivent être poursuivis par :

- La validation des performances de la cascade par des tests expérimentaux du banc d'essais pour valider les résultats du système en régime dynamique ;
- L'étude économique détaillée de ce genre de cycle à l'échelle industrielle et lors de sa production en série ;
- L'optimisation de l'architecture physique en vue de l'amélioration de l'isolation thermique du banc d'essai ;
- Le suivi de l'évolution et la disponibilité des réfrigérants par rapport aux réglementations environnementales récentes et à venir ;
- La gestion dynamique des simulations dans Aspen est contraignante, essayer d'aller au de là de ce genre de simulateur tout en conservant la précision des équilibres entre les phases et en intégrant les modèles précis pour les propriétés thermodynamiques et de transport des fluides ;

Finalement cette étude a fourni une analyse complète des cycles à mélange de réfrigérants inflammables et non inflammables et a permis de développer une méthode d'optimisation applicable à tout type de procédé industriel. L'établissement du cahier des charges et la réalisation du banc d'essais du cycle offre une unité pilote répondant aux attentes des partenaires industriels.

Références

- ADEME 2016a. Connaissance des énergies. www.connaissancedesenrgies.org. Consulté le 23 novembre 2016.
- ADEME 2016b. S3D (Paul Laurent – Sophie Benchimol - David Guianvarc). Etude technique, économique et environnementale sur l'injection du biométhane porté dans le réseau du gaz. France. Rapport d'étude.
- Aile. 2017. Financer un projet de méthanisation, Guide de conseil. <https://www.aile.asso.fr/index.php/guide-financer-un-projet-de-methanisation/?lang=fr>. Consulté le 18 Juillet 2018.
- Alabdulkarem, A., Mortazavi, A., Hwang, Y., & Rodgers, P. 2011. Optimization of propane pre-cooled mixed refrigerant LNG plant. *Applied Thermal Engineering*, 1091-1098.
- Angelidaki, I., Treu, L., Tsapekos, P., Kougiyas, P. 2018. Biogas upgrading and utilization: Current status and perspectives. *Biotechnology Advances*, 452-466.
- ASHRAE34. 2001. Designation and Safety Classification of Réfrigérants.
- Aspelund, A., Gundersen, T., Myklebyst, J., Nowak, M., & Tomasgard, A. 2010. An optimization-simulation model for a simple LNG process. *Computers and Chemical Engineering*, 1606-1617.
- ATEE. 2013. Rouler au BioGNV-Inventaire du droit applicable. <http://atee.fr/biogaz/guide-rouler-au-biog-nv-inventaire-du-droit-applicable>. Consulté le 18 Juillet 2018.
- Austbo, B., Weidemann Lovseth, S., & Gundersen, T. 2014. Annotated bibliography-Use of optimization in LNG process design and operation. *Computers and Chemical Engineering*, 391-414.
- Baillon, L., Higne, J. 2012. Overview of biogas technologies for production of liquid transport fuels, Danish Technological Institute.
- Baguley, J. Gnanendran, N. 2008. LNG Limited. <http://www.lnglimited.com.au>
- Berger, E., Xiang, D., Jin, G.Q., Meffert, A., Atzinger, L. 2003. LNG Baseload Plant In Xinjiang, China-Commercialisation of Remote Gas Resources for an Eco-responsible Future. Paper presented at the 22nd World Gas Conference.
- Bosma, P., Nagelvoort, R.K. Liquefaction Technology ; Developments through History. Proceedings of 1st Annual Gas Symposium.
- Boubon, J.C. 2017. Il ne manque pas grand chose pour que la filière biogaz décolle. <https://www.la-croix.com/Economie/France/Il-manque-pas-grand-chose-filiere-biogaz-decolle-2017-10-10-1200883086> Consulté le 17 Juillet 2019.

- Bou Malham, C., Rivera-Tinoco, R., Zoughaib, A., Chretien, D., Riche, M., Guintrand, N. 2017. A novel Hybrid Exergy/Pinch Process Integration Methodology. *Energy*, 586-596.
- Boutelant, P. Organization of Arab Petroleum Exporting Countries' Institut français du pétrole joint seminar.
- Brethes. B, Blanchard. D. 2014. La liquéfaction se tourne aussi vers de petites unités, Journées annuelles des hydrocarbures, GEP/AFPT , Paris, 8 Octobre.
- CDIAC. 2017. Annual CO₂ emissions sources from gas. Carbon Dioxide Information Analysis Center, USA.
- CEGIBAT. 2017. Biométhane et injection sur le réseau de gaz naturel. <https://cegibat.grdf.fr/dossier-techniques/marche-energie/injection-biomethane-reseau-gaz-naturel>. Consulté le 19 Juillet 2019.
- Charbonneau, P. 2002. An introduction To Genetic algorithms For numerical Optimization. National Center for Atmospheric Research. Boulder, Colorado, USA.
- Clemente, J. 2017. Energy, The rapidly expanding Global Liquefied Natural gas market. <https://www.forbes.com/sites/judeclemente/2017/07/09/the-rapidly-expanding-global-liquefied-natural-gas-market/#27d0ee0a2213>. Consulté le 19 Juillet 2019.
- Collette, Y., Siarry, P. 2002. *Optimisation multiobjectif*. Paris: EYROLLES.
- ConocoPhillips. Optimized Cascade Process. Conoco Phillips LNG Technology and Licensing. <http://lnglicensing.conocophilips.com>. Consulté le 17 Juillet 2018.
- Cziesla, F., Tasatsaronis,G. 2002. Iterative exergoeconomic, evaluation and improvement of thermal power plants using fuzzy inference system. *Energy conversion and management*. 43. 1537-1548.
- Dewitte, P. 1995. Etude et modélisation d'une cascade intégrée à deux fluides. Paris: Ecole des Mines ParisTech.
- Dincer, I., Rosen, M.A. 2007. Exergy: Energy, Environnement and Sustainable Development.
- Dissinger, G. 2012. *Getting started Références with Aspen Hysys Dynamics*. AspenTech.
- EBA. 2011. Biogas, simply the best. European Biogas Association.
- E-CUBE. 2015. Etat des lieux de la filière biogaz. E-Cube strategie Consultants, Paris.
- EIA. 2017. Today in energy.
- Escudie, R., Cresson, R. 2017. Méthanisation de la biomasse. Techniques de l'Ingénieur.
- EurObsrv'ER. 2017. Baromètre biogaz. www.eurobserv'ER.org.
- EurObserv'er. 2016. Baromètre biogaz. www.eurobserv-er.org.

- Favrat, D., Staine, F. 1994. Intégration énergétique de procédés industriels par la méthode de pincement. Collection Ravel Industrie. Office Fédéral des questions conjoncturelles.
- Fazlollahi, F., Bown, A., Ebrahimzadeh, E., Baxter, L. L. 2016b. Transient natural gas liquefaction and its application to CCC-ES (energy storage with cryogenic carbon capture). *Energy*, 369-384.
- Fazlollahi, F., Bown, A., Saeidi, S., Ebrahimzadeh, E., Baxter, L. L. 2016a. Transient natural gas liquefaction process comparison-dynamic heat exchanger under transient changes in flow. *Applied Thermal Engineering*, 775-788.
- Finn, A.J., Johnson, G.L., Tomlinson, T.R. 1999. Developments in natural gas processing. *Hydrocarbon Processing* (April).
- FTV. 2016. Quelle est l'importance des énergies fossiles aujourd'hui ? Quatre cinquièmes des besoins mondiaux. <https://education.francetv.fr/matiere/developpement-durable/premiere/article/quelle-est-l-importance-des-energies-fossiles-aujourd-hui> Consulté le 19 Juillet 2018.
- Ha, S., Lee, K.Y. 2014. Representing and constructing liquefaction cycle alternatives for FLNG Feed using system entity structure concepts. *International journal of Naval Architecture and Ocean Engineering* 6, 598-625.
- He, T., & Ju, Y. 2016 . Dynamic simulation of mixed refrigerant process for small-scale LNG plant in skid mount packages. *Energy*, 350-358.
- He, T., Iftekhhar K.A., Ju, Y. 2018. Review on the design and optimization of natural gas processes for onshore and offshore applications. *Chemical Engineering Research and Design*, 89-114.
- Husnil, Y. A., Yeo, G., & Lee, M. 2014. Plant-wide control for the economic operation of modified single mixed refrigerant process for an offshore natural gas liquefaction plant. *Chemical Engineering Research and Design*, 679-691.
- Hwang, J.-H., Ku, N.-K., Roh, M.-I., Lee, K.-Y. 2013a Optimal design of liquefaction cycles of liquefied natural gas floating, production, storage, and offloading unit considering optimal synthesis. *Ind. Eng.Chem.Res.*52, 5341-5356.
- Hwang, J.-H., Roh, M.-I., Lee, K.-Y. 2013b. Determination of the optimal operating conditions of the dual mixed refrigerant cycle for the LNG FPSO topside liquefaction process. *Computer chemical Engineering*. 49, 25-36.
- IEA. 2017a. CO₂ emissions from fuel combustion. International Energy Agency/ OECD.
- IEA. 2017b. Global gas security review, How is LNG Market Flexibility Evolving?. International Energy Agency/ OECD.

- IPCC. 2014. Climate Change : Mitigation of Climate Change. Contributions of Working Group III to the Fifth Assessment Report Of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge, UK: Cambridge University Press.
- Johansson, N. 2008. Production of liquid biogas, LBG, With cryogenic and conventional upgrading technology. Environmental and Energy Systems Studies. Lund University Libraries, Sweden.
- Kamath, R.S., Biegler, L.T., and Grossmann, I.E. 2012. Modeling multistream heat exchangers with and without phase changes for simultaneous optimization and heat integration. *AIChE Journal*, 58(1), 190–204.
- Kanoglu, M. 2002. Exergy analysis of multistage cascade refrigeration cycle used for natural gas liquefaction. *Internationnal Journal of Energy Research*, 26, 8; 763-774.
- Khalipour, R., Abbas, A., Wang, M. 2013. Operation optimization of propane precooled mixed refrigerant processes. *Natural Gas and Science Enginnering*, 93-105.
- Khan, Y., Wang, J., Wang, W., & Wang, R. 2018. Dynamic simulation of a single nitrogen expansion Cycle for natural gas liquefaction under refrigerant inventory operation. *Applied Thermal Enginnering*, 747-761.
- Khan, M. S., Lee, S., Rangaiah, G., Moonyong, L. 2013. Knowledge based decision making method for the selection of mixed refrigerant systems for energy efficient LNG processes. *Applied Energy*, 1018-1031.
- Kondo, S., Takizawana, k., Takahashi, A., Tokuhashi, K. 2006. Extended le Chatelier's formula for carbon dioxide dilution effect flammability limits. *Journal of Hazardous Material*, 138(1):1-8.
- Lee, S., Long, N.V.D., Lee, M. 2012. Design and optimization of natural gas liquefaction and recovery processes for offshore floating liquefied natural gas plants. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 51, 10021-10030.
- Lee, C.-J., Song, K., Lee, Y., & Han, C. 2016. A decomposition methodology for dynamic modeling of cold box in offshore natural gas liquefaction process. *Computers and Chemical Engineering*, 546-557.
- Lee, S. 2017. Multi-parameter optimization of cold energy recovery in cascade Rankine cycle for LNG regasification using genetic algorithm. *Energy* 118. 776-786.
- Flesch, E., Raillard, J.C. 1998, CII Liquefaction Process: 2 Cascades Into 1, Cryogenic Studies Section, Research Division, Gaz de France.
- Li, Y., Wang, X., Ding, Y. 2012. An optimal design methodology for large scale liquefaction. *Applied Energy*, 484-490.

- Lim, W., Lee, I., Tak, K., Cho, J., Ko, D., Moon, I. 2014. Efficient Configuration of Natural Gas Liquefaction Process for Energy Recovery. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 1973–1985.
- Lim, W., Choi, K., Moon, I. 2012. Current Status and Perspectives of Liquefied Natural Gas (LNG) Plant Design. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 52, 3065- 3088.
- Lin, W., Xiaojun, X., Anzhong, G. 2015. Natural gas pressurized liquefaction process adopting MR refrigeration and CO₂ removal by anti-sublimation. *Gas Technology Training*.
- Lutton, E. 2006. Algorithmes génétiques et Algorithmes évolutionnaires. *Techniques de l'Ingénieur*.
- Luyben. 2002. Plantwide dynamic simulators in chemical processing and control. CRC Press. Taylor and Francis Group. ISBN 9781482275803.
- Marmolejo-Correa D, Gundersen T. 2013. New Graphical Representation of Exergy Applied to Low Temperature Process Design. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 52(22):7145-7156.
- Martin, P.Y., Pigourier, J., Boutelant, P. 2003. Liquefin: An Innovative Process to Reduce LNG Costs. 22nd World Gas conference, Japan.
- Michelson, F.A., Halvorsen, I.J., Lund, B.F., Wahl, P.E. Modeling and Simulation for Control of the TEALARC Liquefied Natural Gas Process. 2010. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 49, 7389-7397.
- Moein, P., Sarmada, M., Ebrahimi, H., Zare, M. 2015. APCI- LNG single mixed refrigerant process for natural gas liquefaction cycle. *Natural Gas Science and Engineering*, 470-479.
- Morin, A., Wahl, P.E., Molnvik, M., 2011. Using evolutionary search to optimise the energy consumption for natural gas liquefaction. *Chemical Engineering Research and Design* 89, 2428-2525.
- Mokhatab, S., Mak, Valappil, & Wood. 2014. *Handbook of liquefied natural gas*. Gulf Professional Publishing, El Sevier.
- Neveu, P. 2002. Apports thermodynamique pour la conception et l'intégration des procédés. HDR, Université de Perpignan.
- Observ'ER. 2017. Le baromètre 2017 des énergies renouvelables électriques en France.
- Paul, D., Harries, J.L., Thomas, E.J., Sapp, G. 2014. Use of alternate refrigerants in optimized cascade process. Brevet n° PCT/US2013/067814.
- Pellen, C.M. 2006 Contribution à l'optimisation technico-économique de systèmes énergétiques. Ecole Centrale de Paris, Thèse de doctorat.

Pitiot, C. 1996. Cascade intégrée basse température (-150°C) à mélanges de travail Zeotropes. Ecole des Mines de Paris, Thèse de doctorat.

Planète-énergie. 2016. Planète énergie. planète-énergie.com.

Remelje, C., Hoadley, A., 2006. An exergy analysis of small liquefied natural gas (LNG) liquefaction processes. *Energy* 31, 2005-2019.

Rivera-Tinoco, Rodrigo. 2012. Comparaison énergétique et économique des voies de purification du biogaz. Rapport de Chaire Nouvelles Stratégies Energétiques.

Rivera-Tinoco, R., Farran, M., Bouallou, C., Auprêtre, F., Valentin, S., Millet, P., Ngameni, J. R. 2016. Investigation of power-to-methanol processes coupling electrolytic hydrogen. *International Journal of Hydrogen Energy*, 4546 – 4559.

Sanvandi, H., Ziabasharhgh, M. 2016. Design and comprehensive optimization of C3MR liquefaction natural gas cycle by considering operational constraints. *Journal of Natural Gas Science and Engineering* 29, 176-187.

Schroeder, V. 2016. Calculation of flammability and Lower flammability limits of Gas Mixtures for classification Purposes. Berlin : s.n., 09 septembre 2016.

Schwoerer, P. 2017. LNG blue corridor, le succès est au rendez vous. Gaz-MOBILITE.FR. 22 MARS 2017.

Siapartners. 2016. Observatoire du biométhane. Think tank du biogaz. <https://france-biomethane.fr/observatoire-sia-partners-2/>. Consulté le 17 Juillet 2018.

Skaugen, G., Gjøvåg, G. A., Nekså, P., Wahl, P.E. 2010. Use of sophisticated heat exchanger simulation models for investigation of possible design and operational pitfalls in LNG processes. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*.

Smil, V. 2016. Energy Transitions; Global and National Perspectives. 2nd Edition, ABC CLIO.

Stebbing, R., O'Brien, J. 1975. An updated report on the PRICO (TM) process for LNG plants, in 'GASTECH, LNG, Natural Gas, LPG international conference, Paris.

Szargut, J. 1987. Analysis of cumulative exergy consumption.. *International Journal of Energy Research* 541-547.

Szargut, J., Morris D.R., Stewart F.R., Exergy Analysis of Thermal, Chemical and Metallurgical Processes. New York: Hemisphere Publ. Corps; 1988.

Tilagone, R., Lecointe, B. 2014. Gaz naturel- Energie fossile. Techniques de l'ingénieur. 2014.

Pham, T.N., Khan, M.S., Husmil, Y.A., Bahadori ,A., Lee, S., Lee, M., 2016. Optimization of modified single mixed refrigerant process of natural gas liquefaction using multivariate

Coggin's algorithm combined with process knowledge. *Journal of Natural Gas Science and Engineering* 731-741.

Toubassy, J. 2012. Etude et modélisation du givrage du CO₂ sur évaporateur à glissement de température. Ecole des Mines ParisTech, Thèse de doctorat.

Vatani, A., Mehrpooya, M., Palizdar, A. 2014. Energy and exergy analyses of five conventional liquefied natural gas processes. *International Journal of Energy Research*, 38, 1843-1863.

Venkatarathnam, G. 2010. Cryogenic Mixed refrigerant processes. Springer.

Verdesis. 2012. Montages financiers-Projets agricoles. Chambre d'agriculture du Bas-Rhin.

Wood, D., Mokhatab, S. 2009. Where are the opportunities to construct liquefaction facilities at the Arctic Circle. *Hydrocarbon Processing*.

Xiong, X., Lin, W., Gu, A. 2016. Design and optimization of offshore natural gas liquefaction processes adopting PLNG (pressurized liquefied natural gas) technology. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*.30. 379-387.

Xu, X., Jinping, L., Chuanshuo, J., Lee, C. 2012. The correlation between mixed refrigerant composition and ambient conditions in the PRICO LNG process. *Applied Energy*, 1127-1136.

Younes, M. 2003. Capture du CO₂ par anti-sublimation; Conception, simulation et Réalisation d'un prototype. Ecole des Mines ParisTech, Thèse de doctorat.

Zabetakis. 1965a. Flammability Characteristics of Combustible Gases and Vapours. Washington, US: US Bureau of Mines.

Zabetakis. 1965b. Flammability Characteristics of Combustible Gases and Vapours, Washington, US : US Bureau of Mines.

Zoughaib, A. 2015. Méthode de pincement. Technique de l'ingénieur.

Yuan, Z., Cui, M., Xie , Y., Li , C. 2014. Design and analysis of a small-scale natural gas liquefaction process adopting single nitrogen expansion with carbon dioxide pre-cooling. *Applied Thermal Engineering* 64.139-146.

ANNEXES

ANNEXE 1

1.1. Modèles thermodynamiques

Le choix du modèle thermodynamique a été effectué en se basant sur l'organigramme de Figure A.81 **Source spécifiée non valide.** Le modèle choisi doit représenter à la fois la phase liquide et la phase vapeur, étant donné que les mélanges utilisés sont non azéotropes. Pour les mélanges inflammables, composés des hydrocarbures non polaires, notre choix a été porté sur le Peng Robinson.

L'équation d'état de Peng Robinson est devenue l'équation la plus utilisée dans l'industrie gazière. Le modèle thermodynamique représente mieux la phase liquide et permet d'avoir des résultats meilleurs dans les régions critiques, chose qui le rend le plus adapté aux systèmes gaz/condensats.

Pour le mélange non inflammable, le R125 et le R134a sont des fluides polaires. Les modèles thermodynamiques à retenir d'après la Figure 1 sont PSRK et le RKSMHV2. Cependant la répartition des charges au niveau des deux molécules représentent une certaine symétrie et leurs moments dipolaires est faible. Pour cette raison et en se basant sur les résultats de la thèse Dewitte (1995), le modèle thermodynamique choisi pour le calcul des propriétés thermodynamique des deux mélanges est le Peng Robinson.

L'équation d'état du modèle est une variante de l'équation de Van der Waals pour les mélanges non polaires. Elle est exprimée comme suit :

$$p = \frac{RT}{V(V+b)} - \frac{a}{V(V+b)+b(V-b)} \quad \text{Eq. 29}$$

Avec V le volume molaire, a et b les paramètres du mélange qui s'expriment comme suit :

$$a = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N x_i x_j (a_i a_j)^{0.5} (1 - k_{ij}) \quad \text{Eq. 30}$$

$$b = \sum_{i=1}^N x_i b_i \quad \text{Eq. 31}$$

$$b_i = 0.77796 \frac{RT_{ci}}{P_{ci}} \quad \text{Eq. 32}$$

$$a_i = a_{ci} \alpha_i \quad \text{Eq. 33}$$

$$a_{ci} = 0.457235 \frac{(RT_{ci})^2}{P_{ci}} \quad \text{Eq. 34}$$

$$\alpha_i = 1 + m_i (1 - T_{ri}^{0.5}) \quad \text{Eq. 35}$$

$$m_i = 0.37464 + 1.54226 \omega_i - 0.2699 \omega_i^2 \quad \text{Eq. 36}$$

Avec :

- X Fraction molaire
- k_{ij} Paramètre d'interaction moléculaire
- α L'écart par rapport au point critique
- T_c Température critique
- P_c Pression critique
- T_r Température réduite ($T_r = \frac{T}{T_c}$)
- ω Facteur acentrique
- R Constante des gaz parfaits

1.2. Propriétés thermodynamiques des fluides

Fluides	Masse molaire (kg/kmol)	T_c (K)	P_c (Pa)	V_c (m ³ /kmol)	Facteur acentrique
CH ₄	16,043	190,58	4604300	0,0993	0,0108
C ₂ H ₄	28,054	282,36	5031800	0,1291	0,0852
C ₃ H ₆	42,081	364,76	4612600	0,181	0,1424
C ₄ H ₁₀	58,123	408,18	3796900	0,2549	0,1993
R125	120,022	342	3440000	0,216	0,2587
R134a	102,031	374,21	405600	0,231	0,2368
R14	88,005	227,5	3738900	0,14	0,1855

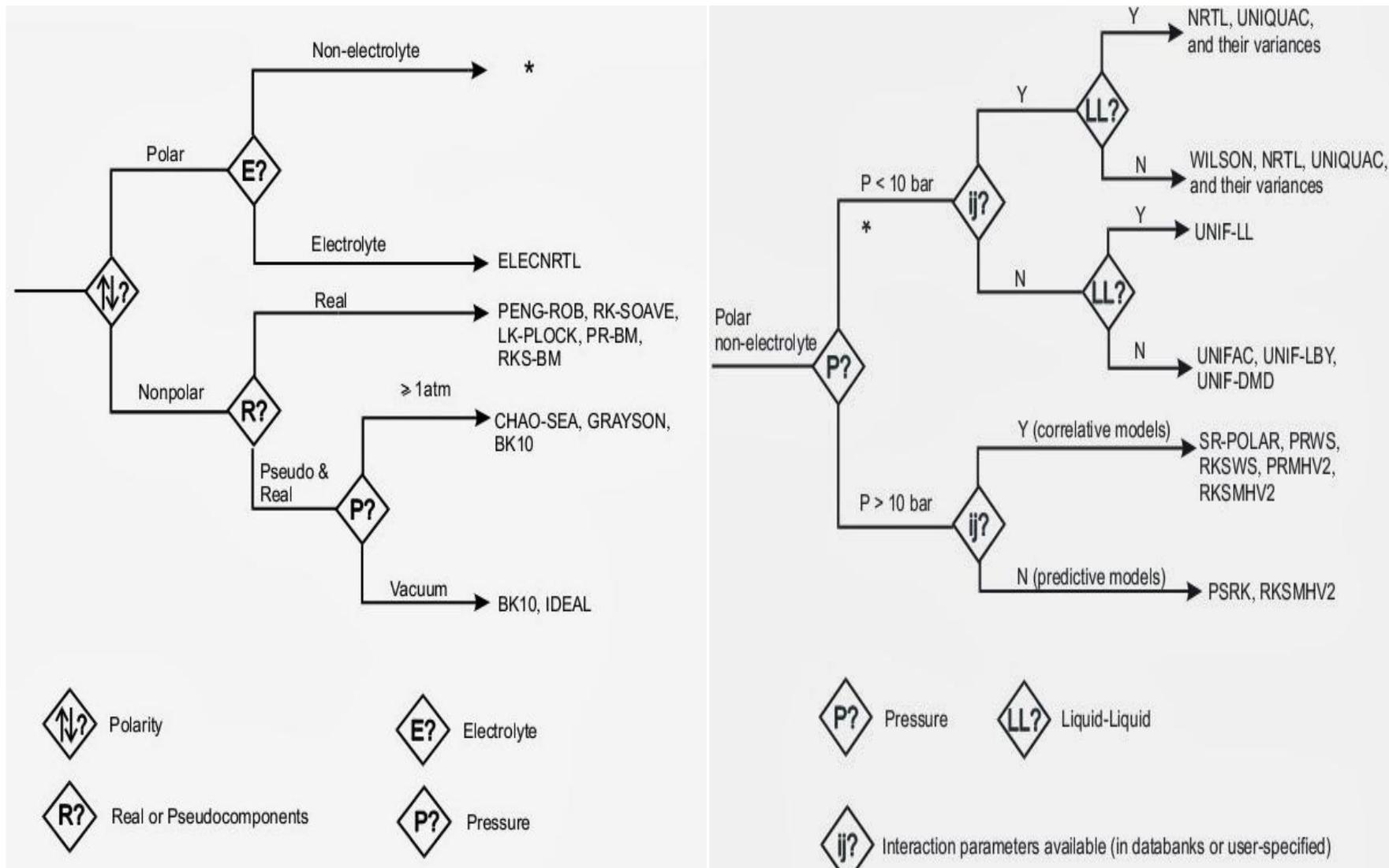


Figure A.81 : Choix du modèle thermodynamique

ANNEXE 2

2.1. Résultats de la simulation des différentes architectures à différentes pressions

Tableau 55 : Impact de la variation de la pression du bio-méthane sur les performances de l'architecture 1 optimisée

Méthane			ARCHITECTURE 1			
P (bar)	T (°C)	\dot{m} (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,41	25,36	0,4	3,240	0,49
10	25	0,39	25	0,28	4,8	0,76
5	25	0,25	24,35	0,2	4,813	1,19

Tableau 56 : Impact de la variation de la pression du bio-méthane sur les performances de l'architecture 2 optimisée

Méthane			ARCHITECTURE 2			
P (bar)	T (°C)	\dot{m} (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,45	25,22	0,35	4,324	0,59
10	25	0,42	27	0,33	4,410	0,64
5	25	0,26	32	0,19	5,059	1,21

Tableau 33 : Impact de la variation de la pression du bio-méthane sur les performances de l'architecture 1/ Stirling

Méthane			ARCHITECTURE 1/Stirling			
P (bar)	T (°C)	\dot{m} (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,45	23,53	0,423	1,976	0,46
10	25	0,45	27,36	0,39	1,926	0,5
5	25	0,45	32,49	0,29	3,069	0,78

Tableau 34: Impact de la variation de la pression du bio-méthane sur les performances de l'architecture 2/Stirling

Méthane			ARCHITECTURE 2/Stirling			
P (bar)	T (°C)	\dot{m} (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,515	22,21	0,496	1,832	0,39
10	25	0,515	18,87	0,41	2,01	0,51
5	25	0,515	18,16	0,38	1,651	0,47

Tableau 35 : Impact de la variation de la pression du bio-méthane sur les performances de l'architecture 1/Stirling forcée

Méthane			ARCHITECTURE 1/Stirling forcée			
P (bar)	T (°C)	\dot{m} (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,818	25,36	0,446	3,255	0,439
10	25	0,949	26,5	0,38	4,603	0,56
5	25	1,065	27	0,35	5,334	0,65

Tableau 36 : Impact de la variation de la pression du bio-méthane sur les performances de l'architecture 2/Stirling forcée

Méthane			ARCHITECTURE 2/Stirling forcée			
P (bar)	T (°C)	\dot{m} (kgmole/h)	HP (bar)	COP	W (kW)	kWh/kg de CH ₄ liquéfié
17	25	0,94	25,22	0,41	4,324	0,51
10	25	0,94	25,22	0,387	4,410	0,55
5	25	0,6	25,22	0,26	5,059	0,87

ANNEXE 3

3.1. Impression d'écran : Excel PIKAIA

The screenshot displays the Excel PIKAIA interface with several key sections highlighted:

- Parameters Table (rows 5-18):** A table with columns 'value' and 'name'. A red box highlights this table, with an arrow pointing to the label 'Paramètres de l'Algorithme génétique'.
- Decision Variables Table (rows 22-24):** A table with columns x(1) through x(9) and rows for 'parameter name (optional)', 'minimum value', and 'maximum value'. A red box highlights this table, with an arrow pointing to the label 'Variables de décisions'.
- Objective Function (row 28):** A text box containing the formula '-9,92358285' and the label 'Fonction objectif'.
- Solution Table (rows 32-33):** A table showing the optimal values for parameters x(1) through x(9).
- Run Button (row 36):** A button labeled 'run pikaia'.
- Status Bar (rows 38-39):** Displays 'Calculations max: 2940', 'Current population: 490', and 'Current iteration: 6 Closing 3'.

Excel/VBA translation of pikaia.f (version 1.2)
 by
 Greg Pelletier
 Department of Ecology
 P.O. Box 47710
 Olympia, WA 98504-7710
 e-mail: gpei461@ecy.wa.gov
 Translated from the original Fortran 77 code of pikaia.f (version

	value	name
random number seed:	123456	seed
number of individuals in the population (<=512)	490	np
number of generations in the evolution	6	ngen
number of digits to encode the genotype (<=6)	5	nd
crossover probability (0-1)	0,85	pcross
mutation mode (1, 2, 3, 4, 5, or 6)	2	imut
initial mutation rate (0-1):	0,005	pmut
minimum mutation rate (0-1):	0,0005	pmutmn
maximum mutation rate (0-1):	0,25	pmutmx
relative fitness differential (0-1):	1	fdif
reproduction plan (1, 2, or 3):	1	irep
elitism (0 or 1):	1	ielite
crossover mode (1,2,3,4,5,6, or 7)	3	icross
shuffle probability (0-1)	0	pshuffle

parameter name (optional)	x(1)	x(2)	x(3)	x(4)	x(5)	x(6)	x(7)	x(8)	x(9)
minimum value	0	0	0	0	0	0	0	0	0
maximum value	1	1	1	1	1	1	1	1	1

parameter name	x(1)	x(2)	x(3)	x(4)	x(5)	x(6)	x(7)	x(8)	x(9)
optimum value	0,56359	0,2402	0,04875	0,71586	0,84881	0,11698	0,72358	0,26246	0,31098

ANNEXE 4

4.1. PID bloc compresseur

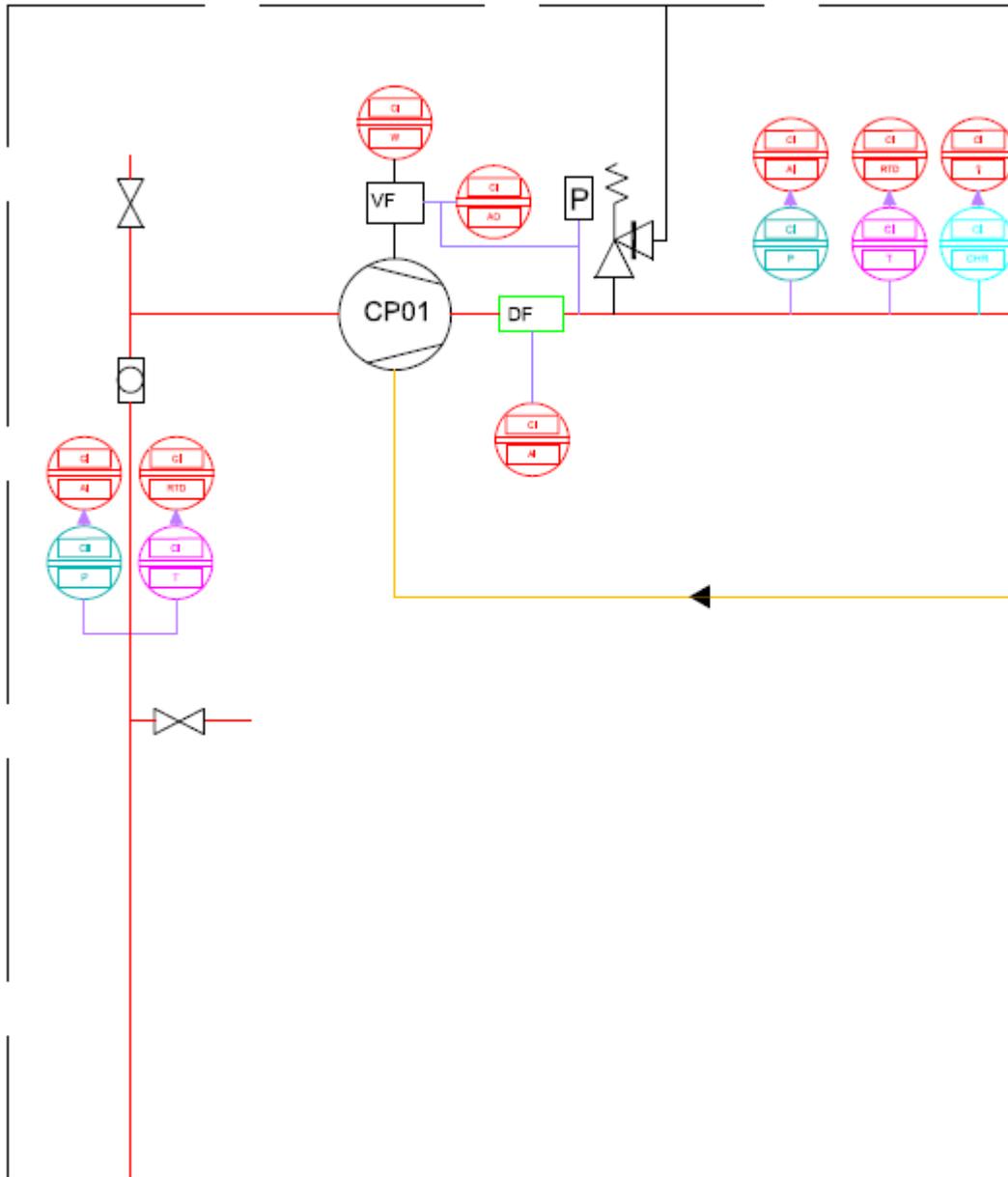


Figure 82 : PID du bloc compresseur

4.2. PID échangeurs cascade

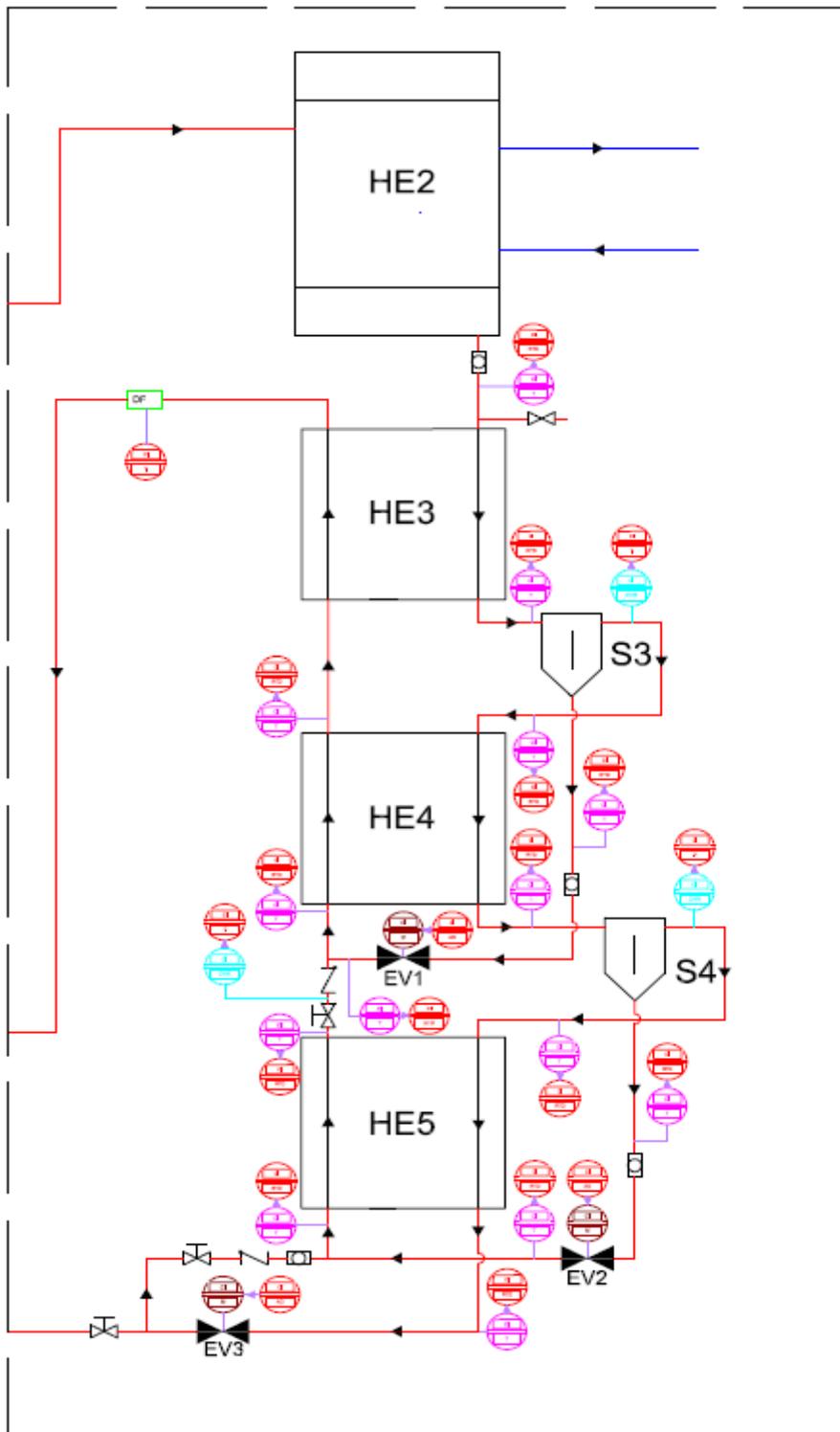


Figure 83 : PID du bloc échangeurs cascade

Résumé

L'objectif principal de ce travail de thèse est de développer un cycle thermodynamique de réfrigération peu énergivore et éventuellement, fonctionnant avec des réfrigérants non-inflammables, pour la liquéfaction du biométhane à micro-échelle (débit inférieur à $15 \text{ Nm}^3/\text{h}$). Plusieurs architectures ont été développées. Les deux premières opèrent avec un mélange de réfrigérants inflammable. La troisième architecture est une combinaison de la première et un groupe froid de type machine de Stirling. La dernière architecture proposée opère avec un mélange de réfrigérant non-inflammable. Chaque architecture est simulée sous Aspen HYSYS, et chaque simulation est accompagnée d'une analyse exergetique pour évaluer l'efficacité du procédé et d'identifier les causes principales des irréversibilités thermodynamiques dans ces systèmes.

Pour améliorer les performances de chaque cycle de liquéfaction, et pour identifier la meilleure configuration, l'optimisation par algorithmes génétiques a été choisie. Le processus d'optimisation repose sur la connexion entre Excel, Aspen HYSYS et PIKAIA. Les conditions du biométhane disponible et à liquéfier sont une pression initiale de 17 bar et une température de 25°C . Une étude de l'impact de la variation de cette pression sur la performance de liquéfaction a été faite. Pour étudier le comportement du système en régime transitoire, une simulation dynamique de l'architecture énergétiquement optimale a été effectuée pour évaluer la flexibilité du procédé à charge réduite du biométhane. La conception d'une architecture adaptée à la liquéfaction d'une capacité de $10 \text{ Nm}^3/\text{h}$ a été faite. Une étude technico-économique de ce banc a été élaborée afin d'évaluer le coût total actualisé pour la liquéfaction du biométhane.

Mots Clés

Biométhane, micro-liquéfaction, analyse exergetique, Optimisation, algorithme génétique, simulation dynamique, évaluation technico-économique

Abstract

The growing fossil fuel consumption is leading to depletion of natural gas reserves. Hence, a considerable interest is given to the use of biogas as substitute for natural gas. However, for certain applications, biogas must be liquefied to facilitate its transport and storage. Many studies have focused on large and mid-scale natural gas liquefaction processes with a lack of literature studies on biogas micro-liquefaction. Due to the similarities between biomethane and natural gas, mixed refrigerant (MR) cycles for natural gas liquefaction are considered to liquefy the biomethane. The prime objective of this doctoral work is to develop a thermodynamic refrigeration cycle with low energy consumption and eventually nonflammable refrigeration for micro-scale biomethane liquefaction. In order to procure the needed cooling of biomethane liquefaction processes, different configurations are proposed. The first two architectures are mixed refrigerant cycles carrying out both sensible (pre-cooling) and latent (condensation) heat removal. The latest architecture, mixed refrigerants are nonflammable. All configurations are simulated in Aspen HYSYS and assessed considering the exergy analysis method. In order to find the optimum operating parameters and the best design, a tool integrating PIKAIA genetic algorithm and Microsoft Visual Basic (VBA) was developed. Once the steady state simulation and optimization are achieved, a study of the dynamic behavior of the process at partial load operating mode is conducted. The design of an architecture suitable for liquefaction with a capacity of $10 \text{ Nm}^3 / \text{h}$ was made. A techno-economic study of this bench was developed to evaluate the total updated cost for the liquefaction of biomethane.

Keywords

Biomethane, micro-liquefaction, exergy analysis, optimization, genetic algorithm, transient simulation mode, economic-study.