Written on 14 September 2018 2 minutes of reading

Actualités

Recherche fondamentale

Hydrocarbures responsables | Carburants

Analyse et caractérisation | Analyse chimique | Expérimentation Haut Débit (EHD)
Sciences de l'ingénieur | Génie chimique et génie des procédés | Mathématiques et informatique
Traitement du signal / Science des données

L’introduction originale et prometteuse de modèles par krigeage pour la prédiction des propriétés physico-chimiques des distillats permet de tirer parti du bénéfice apporté par l’expérimentation à haut débit quant au développement accéléré de nouveaux catalyseurs d’hydrocraquage.

L’industrie pétrolière doit faire face à une demande croissante en distillats moyens[1] et l’hydrocraquage est un des procédés de conversion qui permet de les obtenir à partir de la fraction lourde du pétrole brut. Ce procédé a pour effet d’éliminer les impuretés (étape d’hydrotraitement HDT) et de rompre les longues chaînes moléculaires en présence d’hydrogène (étape d’hydrocraquage HCK), ce qui permet ensuite d’obtenir les distillats moyens recherchés et de l’huile (figure 1).

L’hydrocraquage est un procédé catalysé et les expérimentations (procédés et analyses) pour développer de nouveaux catalyseurs sont longues et coûteuses. Pour remédier à cet inconvénient, IFPEN souhaite recourir à des unités d’expérimentation haut débit (EHD). Ces systèmes, équipés de mini-réacteurs en parallèle, permettent ainsi de tester jusqu’à seize catalyseurs simultanément.

Cependant, la quantité d’effluent en sortie de chaque réacteur est très faible (quelques ml) et ne

permet pas d'effectuer ensuite une distillation conduisant aux coupes pétrolières d'intérêt (essence, gazole, huile, etc.) et encore moins d'en déterminer les propriétés physico-chimiques.

Par conséquent, utiliser ces équipements EHD pour optimiser les catalyseurs en fonction des propriétés des produits de sortie représentait un challenge qu'IFPEN a relevé dans le cadre d'un travail de thèse[2].

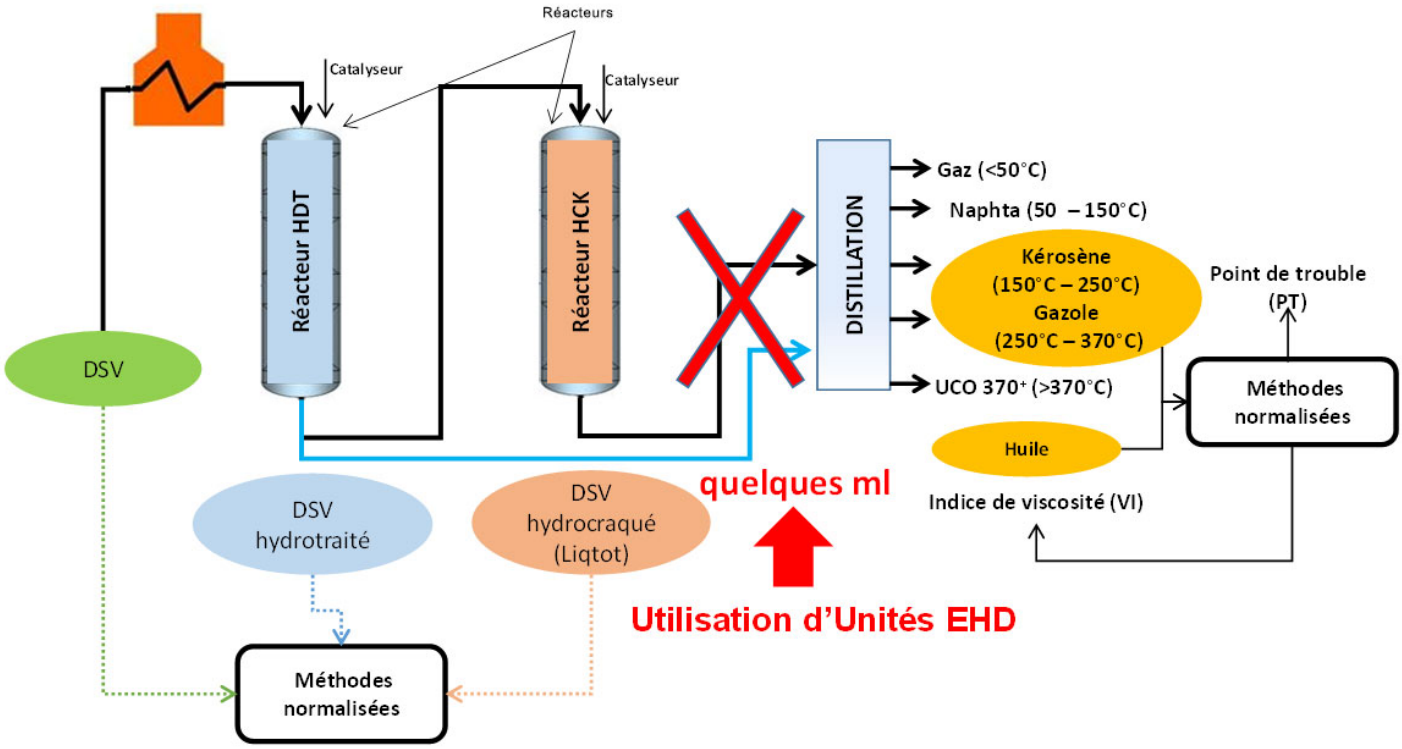

Figure 1 : Schéma du procédé d'hydrocraquage et mesure des propriétés physico-chimiques associées

Une méthodologie innovante de prédiction des propriétés a été développée à partir de résultats obtenus par des techniques analytiques de pointe - chromatographie gazeuse bidimensionnelle (GCxGC) et résonance magnétique nucléaire du carbone 13 (RMN du ^{13}C) - associés à des méthodes d'analyse de données.

La démarche qui repose sur des corrélations entre les propriétés recherchées et des descripteurs moléculaires s'est déroulée en deux temps :

1/ détermination de descripteurs pertinents (Features Selection)
À partir des données multivariées GCxGC et RMN du ^{13}C, l'impact des différents hydrocarbures (n-paraffines, isoparaffines, aromatiques, etc.) et de leur structure moléculaire (longueur de chaînes, degrés de branchements, etc.) sur les propriétés a été déterminé par régression multivariée parcimonieuse (s-PLS)[3]. Grâce à cette compréhension, des descripteurs de l'effluent total issu du réacteur HCK (densité d, température moyenne pondérée TMP, carbone aromatique Ca, etc.), aisément analysables, ont été identifiés.

2/ prédiction des propriétés d'usage par analyse des données à l'aide de méthodes de régression ou d'interpolation[1]

Plusieurs méthodes ont été testées. La méthode du krigeage[4], généralement utilisée en géostatistiques ou en analyse de sensibilité, a été sélectionnée et mise en place pour la première fois dans le domaine de l'industrie pétrolière[2]. Un exemple est donné sur la figure 2 pour une propriété y mesurée à 10 différentes observations dans l'espace à deux dimensions (x1, x2). Le krigeage permet de prédire la propriété y en un nouveau point donné, en effectuant une moyenne pondérée des observations au voisinage de ce point selon l'équation généralisée[1] :

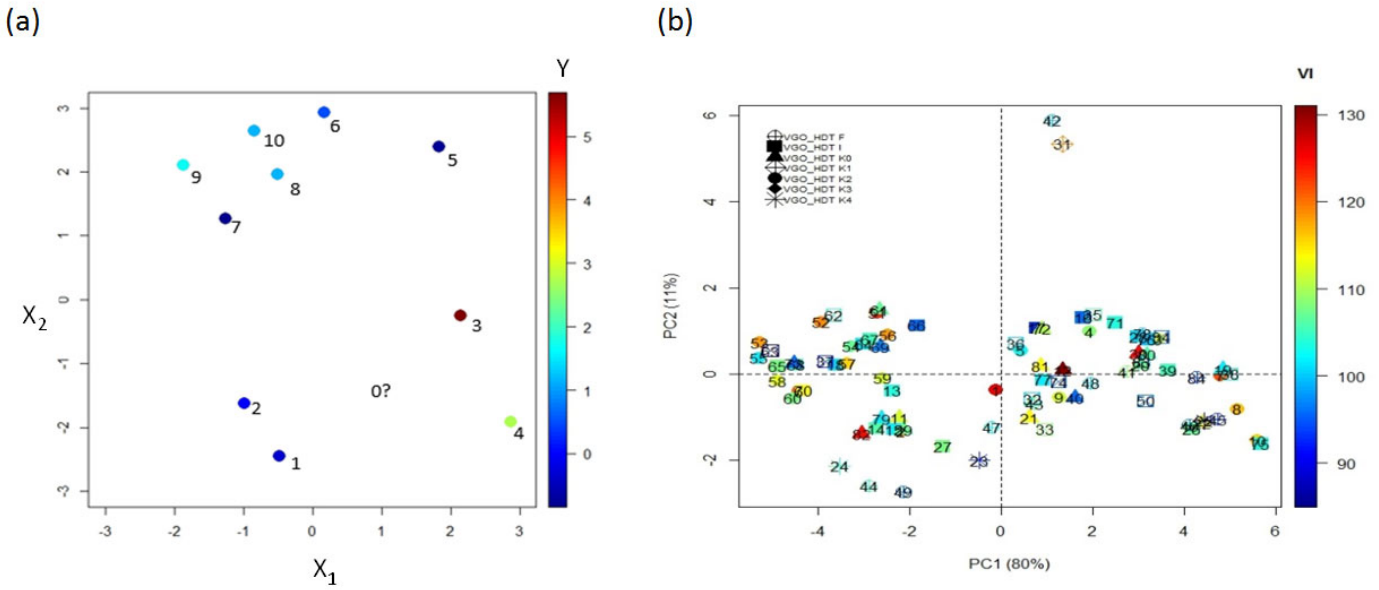

Figure 2 : (a) Représentation schématique du krigeage pour une propriété y en fonction des données d'entrée X1 et X2 ; b) Analyse en composantes principales des composantes 1 et 2 en fonction du VI et du DSV hydrotraité

La figure 3 présente une comparaison entre les résultats obtenus par des méthodes linéaires (RLM) et par krigeage : on observe que les prédictions sont nettement améliorées. De plus, un des points forts de la nouvelle méthode est l'accès à une incertitude de prédiction locale, contrairement à la RLM qui donne une incertitude constante pour tous les points prédits. Ceci permet d'alerter l'utilisateur si la prédiction est douteuse.

Le krigeage a également été appliqué avec le même succès à la prédiction du point de trouble des gazoles[2]. Désormais, lors du screening de catalyseurs, il est possible d'accéder directement à ces propriétés en sortie des unités EHD, à partir de l'analyse de l'effluent total issu du réacteur (laquelle donne accès aux descripteurs). Il n'est donc plus nécessaire de recourir à une étape de distillation ni à une mesure de propriété par une méthode normalisée.

Cette approche novatrice couplant analyse, compréhension moléculaire et analyses de données a permis un gain considérable en efficience expérimentale (analyse et procédés). Elle laisse entrevoir de belles perspectives pour les autres propriétés des produits raffinés car elle pourrait être appliquée à d'autres types de procédés dont les produits de sortie ne bénéficient pas encore de descripteurs de leurs propriétés. Une autre perspective est de coupler le krigeage à des techniques d'analyse multivariée pour étendre son utilisation à d'autres données spectroscopiques ou chromatographiques.

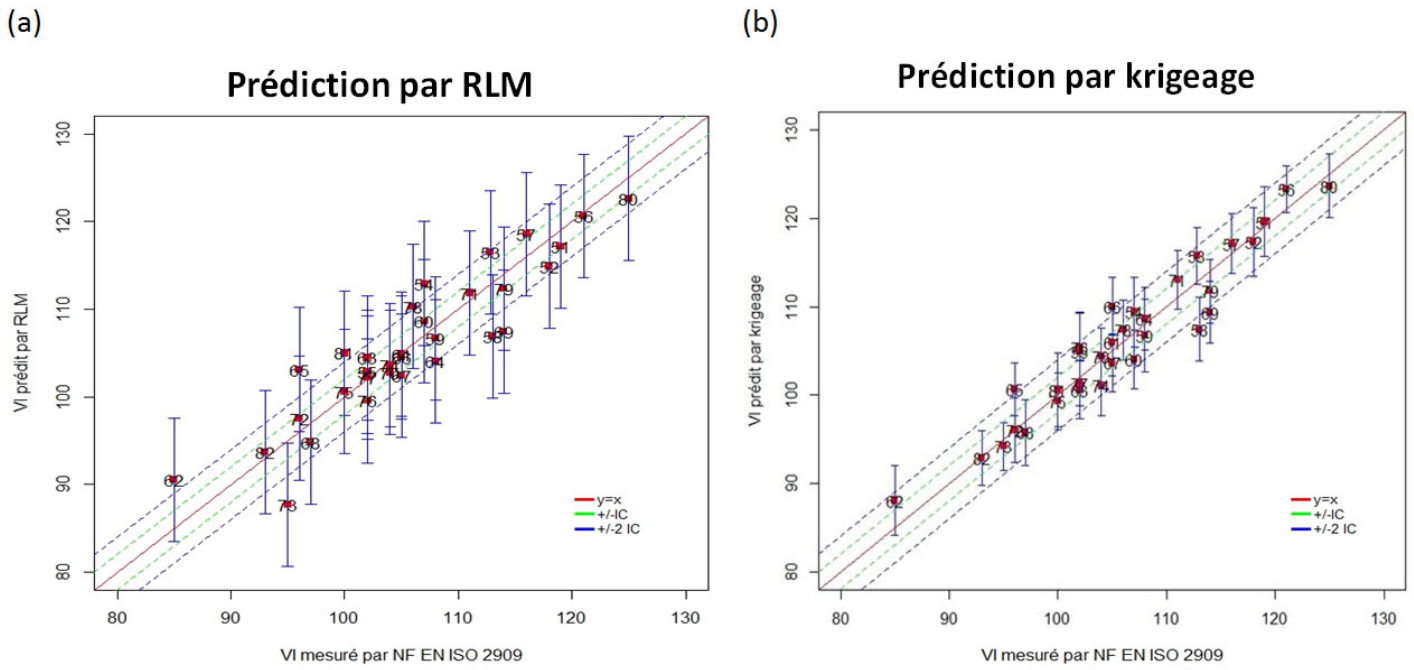

Figure 3 : Diagrammes de parité du VI prédit par régression linéaire multiple (RLM) (a) et par Krigeage (b) en fonction du VI expérimental (IC : intervalle de confiance de la méthode NF ISO 2909) sur la base de validation

Contacts scientifiques

benoit.celse@ifpen.fr - marion.lacoue-negre@ifpen.fr - fabien.chainet@ifpen.fr

1. Kérosène et gazole.

2. Thèse de Jean-Jérôme Da Costa Soares, réalisée en collaboration avec le laboratoire LASIR (Université de Lille).

3. Variante de la méthode de régression par les moindres carrés classique (PLS) qui permet de réduire le nombre de facteurs tout en privilégiant ceux qui sont les plus corrélés à une propriété d'intérêt donnée.

4. Méthode d'estimation linéaire garantissant le minimum de variance.

Publications

[1] Da Costa JJ, Chainet F, Celse B, Lacoue-Nègre M, Ruckebusch C, Caillol N et al. Kriging Modeling to Predict Viscosity Index of Base Oils. Energy Fuels 2018;32(2):2588–97
>> DOI : 10.1021/acs.energyfuels.7b03266

[2] Da Costa JJ, Chainet F, Celse B, Lacoue-Nègre M, Ruckebusch C, Espinat D. Comparing Kriging, Spline, and MLR in Product Properties Modelization: Application to Cloud Point Prediction. Energy Fuels 2018;32(4):5623–34
>> DOI : 10.1021/acs.energyfuels.7b04067

Des méthodes d'interpolation innovantes au service de l'efficience expérimentale

14 September 2018

Link to the web page :