

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE



ECOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE
DEPARTEMENT DE GENIE CHIMIQUE
Laboratoire de Valorisation des Energies Fossiles

Projet de Fin d'Etudes
En vue de l'obtention du diplôme d'Ingénieur d'Etat en Génie
Chimique

**Conception d'un logiciel pour le calcul des
propriétés physico-chimiques des corps purs et des
fractions pétrolières**

Dirigé par :

Pr émérite. Chems Eddine Chitour.

Présenté par :

Sid-Ahmed Gabbour.
Ryad Bousbia-Salah.

Membres du jury

Mme R. DERRICHE, Professeur (E.N.P), Présidente.
Mr C.E. CHITOUR, Professeur émérite (E.N.P), Rapporteur.
Mr T. AHMED ZAID, Professeur (E.N.P), Examineur.
Mme A. MEFTI, Maitre de conférences (A) (E.N.P), Examinatrice.
Melle N.SKANDER, Docteur en Génie Chimique, Invitée.
Melle O.REBAS, Chercheur (E.N.P), Invitée.

Promotion Juin 2013

10, Avenue Hassen Badi BP 182 El-Harrach – Alger
Tél : 213 21 52 53 01 _ Fax : 213 21 52 29 73

REMERCIEMENTS

Ce travail a été réalisé sous la direction de Monsieur le Professeur Chems Eddine Chitour au Laboratoire de Valorisation des Energies Fossiles du département Génie Chimique de l'Ecole Nationale Polytechnique d'Alger.

Nous tenons d'abord à exprimer nos remerciements, les plus sincères, envers notre promoteur Monsieur le Professeur Chems Eddine CHITOUR pour son encadrement, sa disponibilité, sa compréhension et son aide précieuse.

Nous adressons, également, nos remerciements à Mme R.DERRICHE, Professeur à l'ENP, pour avoir accepté de présider le jury, ainsi qu'à Mme A.MEFTI, Maître de conférences (A) à l'ENP et à Mr T. AHMED ZAID, Professeur à l'ENP, pour avoir accepté d'examiner notre travail.

Nous exprimons notre reconnaissance à Mlle N.SKANDER, Docteur d'Etat en Génie Chimique ainsi qu'à Mlle O.REBBAS, Magister en Génie Chimique pour nous avoir honorés de leur présence.

Nous remercions aussi les enseignants qui ont participé à notre formation, plus particulièrement, nos enseignants du département Génie Chimique.

A decorative scroll graphic with a black outline and rounded corners. The top-left and bottom-left corners are rolled up, with the inner surface shaded in light gray. The text is centered within the scroll.

Nous dédions ce travail

A nos merveilleux parents,

A nos familles respectives,

A nos frères et sœurs,

A tous nos amis.

Sid-Ahmed & Riadh

ملخص

يهدف هذا العمل إلى تصميم برنامج لحساب مختلف الخصائص الفيزيائية والكيميائية والحرارية للبترول ذو كثافة خفيفة أو متوسطة، يعتمد على طرق الحساب التجريبي المتمثلة في الارتباطات و أسلوب مساهمة المجاميع الموجودة في الأعمال السابقة، والشبكات العصبية التي اقترحناها و ذلك من أجل مقارنتها مع القيم التجريبية

هذا البرنامج يقوم بحساب عدة خصائص فيزيائية للبترول عن طريق إدخال الكثافة ودرجة الغليان فقط

كلمات مفتاحية:

الهيدروكربونات، خصائص، شبكات عصبية، مساهمة المجاميع، ارتباطات

Résumé

Ce travail a pour but la conception d'un logiciel de calcul de plusieurs propriétés physico-chimiques et thermodynamiques de fractions pétrolières issues de pétroles léger et moyen. Il se base sur des méthodes de calcul empiriques qui sont les corrélations et la contribution de groupe déjà présentes dans la littérature, et par réseaux de neurones artificiels que nous avons établis, afin de les comparer entre elles et avec les valeurs expérimentales.

Ce logiciel permettra le calcul d'une dizaine de propriétés des fractions pétrolières, en introduisant comme entrée uniquement leur densité et leur température d'ébullition.

Mots clés :

Hydrocarbures, propriétés, réseaux de neurones, contribution de groupes, corrélations.

Abstract

The purpose of this work is to conceive a software which can calculate different physicochemical and thermodynamic properties of oil fractions from light and average oil. It's based on empirical calculation methods such as correlations and group contribution presented in the literature and by using artificial neuron networks, in order to make comparisons between them and experimental values for each property.

This software allow calculation of dozen of oil fractions properties, using, as inputs, their density and boiling temperature.

Keywords:

Hydrocarbons, properties, neural networks, groupe contribution, correlations.

Liste des figures

Figure 1.1 : Principaux flux pétroliers dans le monde (doc. IFP Training d'après BP Statistical Review, CEG et AIE).

Figure 1.2 : Ensemble des hydrocarbures présents dans les pétroles bruts.

Figure 1.3 : Différentes coupes pétrolières.

Figure 1.4 : Rendements en coupes pétrolières de quelques bruts.

Figure 1.5 : Schéma simplifié de raffinage.

Figure 2.1 : Représentation graphique d'un neurone.

Figure 2.2 : Un Perceptron multicouche.

Figure 2.3 : Forme canonique d'un réseau de neurones bouclé.

Figure 2.4 : Un réseau de neurones bouclé. Les nombres dans les carrés sont les retards (exprimés en nombre de périodes d'échantillonnage) associés à chaque connexion.

Figure 2.5 : La forme canonique du réseau de la figure 2.4.

Figure 2.6 : Le « sur ajustement » : le réseau le plus parcimonieux (4 neurones cachés, soit 13 coefficients) produit un bien meilleur ajustement qu'un réseau trop riche en coefficient (8 neurones cachés, soit 25 coefficients).

Figure 4.1 : Appareil de mesure de la tension de vapeur.

Figure 4.2.1 : Relation TVV-TVR pour les fractions pétrolières.

Figure 4.2.2 : Relation TVV-TVR pour les pétroles bruts.

Figure 4.3 : variation de la tension de vapeur en fonction de la température d'ébullition.

Figure 4.4 : variation du facteur de compressibilité critique en fonction de la température d'ébullition.

Figure 4.5 : variation de l'indice d'octane en fonction de la température d'ébullition.

Figure 4.6 : variation de l'indice de cétane en fonction de la température d'ébullition.

Figure 4.7 : variation de l'indice de cétane en fonction de la température d'ébullition.

Figure 4.8 : variation du ECN en fonction de la température d'ébullition.

Figure 4.9 : variation du facteur de corrélation en fonction de la température d'ébullition.

Figure 4.10 : variation du rapport C/H en fonction de la température d'ébullition.

Figure 4.11 : variation du point éclair en fonction de la température d'ébullition.

Figure 5.1 : Schéma du graphical user interface du logiciel.

Liste des tableaux

Tableau 1.1 : Composition massique atomique d'un pétrole brut.

Tableau 3.1 : Fractions pétrolières pour l'apprentissage des réseaux de neurone des propriétés étudiées.

Tableau 4.1 : Comparaison entre les méthodes de calcul de la tension de vapeur.

Tableau 4.2 : Comparaison entre les méthodes de calcul du facteur de compressibilité critique.

Tableau 4.3 : Comparaison entre les méthodes de calcul de l'indice d'octane.

Tableau 4.4 : Comparaison entre les méthodes de calcul du nombre de cétane.

Tableau 4.5 : Comparaison entre les méthodes de calcul du nombre de cétane.

Tableau 4.6 : Comparaison entre les méthodes de calcul du nombre de carbone équivalent.

Tableau 4.7 : Comparaison entre les méthodes de calcul du point d'aniline.

Tableau 4.8 : Comparaison entre les méthodes de calcul de l'indice de corrélation BMCI.

Tableau 4.9 : Comparaison entre les méthodes de calcul du rapport C/H.

Tableau 4.10 : Méthodes expérimentales de détermination du point d'éclair.

Tableau 4.11 : Valeurs du point d'éclair de quelques coupes pétrolières.

Tableau 4.12 : Comparaison entre les méthodes de calcul du point d'éclair.

Notations :

RNA : réseau de neurones artificiels.

PMC : perceptron multicouches.

Teb : température d'ébullition.

SpGr : specific-gravity.

n : indice de refraction a 20 °C.

MM : masse molaire.

ECN : equivalent carbon number

Kuop : facteur de caractérisation de Watson.

Z : facteur de compressibilité.

R : la constante des gaz parfaits.

BMCI : indice de corrélation de Smith.

C/H : le rapport carbone sur hydrogène.

NO : indice d'octane.

P : la pression.

Pc : pression critique.

T : la température.

Tc : température critique.

Tr : température réduite.

Vc : volume molaire critique.

T_f : température du point d'éclair.

PA : point d'aniline.

R : la constante des gaz parfaits.

PV : tension de vapeur.

TVR : tension de vapeur reid.

Xi : la fraction molaire du constituant i.

ΔH_v : chaleur latente de vaporisation.

I.D : indice diesel.

I.C : indice de cétane.

S:specific gravity 60°F/60°F.

H_v : chaleur de vaporisation molaire.

P_a : pression atmosphérique.

W_H : teneur massique en hydrogène.

d_A¹⁵ : densité à 15°C.

C : nombre d'atomes de carbone dans la molécule.

ΔNi : facteurs de corrections pour les groupements fonctionnels et les chaînes branchés.

Lettres grecques :

ω: facteur acentrique.

Indice :

A : aromatique.

N : naphtène.

P : paraffine.

eb : ébullition.

c : critique.

i : un constituant dans le mélange.

mav :meanaverage.

f: point éclair.

mél : mélange.

mol : molaire



Sommaire

Introduction générale	1
-----------------------	---

CHAPITRE 1 : PETROLE – GENERALITES

1. Généralités	3
2. Exploration et production	3
2.1.Prospection	3
2.2.Forage	4
2.3.Production	4
3. Transport et distribution	4
3.1.Transport par pipeline	6
4. Raffinage	7
4.1.Composition des pétroles bruts	7
4.1.1. Hydrocarbures	7
4.1.2. Composés soufrés	9
4.1.3. Autres composés	10
4.1.4. Bruts de référence	10
4.2.Produits pétroliers	10
4.3.Fractionnement initial des pétroles bruts	12
4.3.1. Dessalage des pétroles bruts	12
4.3.2. Distillation	13
4.4.Obtention d'essences à haut indice d'octane	14
4.4.1. Procédé de reformage catalytique	15
4.5.Conversion des coupes lourdes en coupes plus légères	16
4.5.1. Craquage catalytique	16
4.5.2. Hydrocraquage	17
4.5.3. Viscoréduction	19

CHAPITRE 2 : LES RÉSEAUX DE NEURONES ARTIFICIELS

1. Introduction	20
2. Les neurones formels	20
i. Les réseaux de neurones non bouclés	21

ii.	Les réseaux de neurones bouclés	22
3.	Propriété fondamentale des réseaux de neurones formels	24
3.1.	L'approximation parcimonieuse	24
3.2.	Réseaux de neurones et régression non linéaire	25
4.	Mise en œuvre des réseaux de neurones et domaine d'applications	26
5.	Domaines d'application des réseaux de neurones	28
6.	L'apprentissage des réseaux de neurones formels	28

CHAPITRE 3 : ARCHITECTURE DES RESEAUX DE NEURONES

1.	Choix de l'architecture	30
1.1.	Choix du type de réseau	30
1.2.	Choix de la structure du réseau	30
1.3.	Choix des fonctions d'activation	31
1.4.	Choix de l'algorithme d'apprentissage	31
2.	Entraînement des réseaux de neurones pour le logiciel de calcul	32

CHAPITRE 4 : LES PROPRIETES PHYSIQUES ET THERMODYNAMIQUES DES HYDROCARBURES

i.	Introduction	36
ii.	Méthodes de calcul des propriétés des hydrocarbures	36
ii.1.	Les équations d'état	36
ii.2.	Loi des états correspondants	36
ii.3.	Méthodes de contributions de groupes	36
1.	La tension de vapeur	37
2.	Le facteur de compressibilité critique « Z_c »	44
3.	L'indice d'octane	46
4.	Le nombre de Cétane	48
5.	Le nombre de carbone équivalent	52
6.	Le point d'aniline	53
7.	L'indice de corrélation « BMCI »	56
8.	Le rapport « C/H »	58

9. Le point d'éclair (flash point)	60
------------------------------------	----

CHAPITRE 5 : MISE AU POINT DU LOGICIEL DE CALCUL

Présentation du logiciel	65
--------------------------	----

Conclusion générale	67
---------------------	----



Introduction Générale

La détermination des propriétés physico-chimiques du pétrole et des fractions pétrolières a toujours été une obligation pour un traitement optimum dans une raffinerie. Plusieurs méthodes de calculs sont venues répondre à ce besoin. Elles donnent toutes des valeurs plus ou moins en accord avec l'expérience. Par souci de précision et de facilité, des corrélations empiriques sont devenues un outil, pour l'ingénieur, d'approximation de grandeurs telles que les propriétés critiques dont la mesure expérimentale est délicate. Tout cela dans le but de faciliter et d'optimiser le stockage, la séparation et la transformation des produits pétroliers.

Des méthodes d'analyse ont été développées et normalisées pour déterminer les principales propriétés physico-chimiques. Ces spécifications correspondent à des normes (ASTM, AFNOR, ...).

Dans le but de déterminer les propriétés physiques notamment en absence d'équipements souvent onéreux, le Laboratoire de Valorisation des Energies Fossiles s'est intéressé depuis une quinzaine d'années à la détermination des propriétés physiques sur la base de la connaissance des données des banques pour les corps purs (API, TRC, DIPPR, Hand book of chemistry and physics). Les corrélations sont basées sur la loi des états correspondants et les méthodes de contributions de groupes et récemment sur les réseaux de neurones artificiels. Le point de départ est de partir d'une seule analyse, la TBP (True Boiling Point : Distillation vraie du pétrole). Notre logiciel a été fait sur la base de la courbe de distillation. En d'autres termes : il suffit de connaître la température d'ébullition et la densité d'une fraction pétrolière pour calculer toutes les autres propriétés et ceci grâce à l'utilisation de la corrélation et des réseaux de neurones.

Notre travail est une suite du PFE [Projet de Fin d'Etudes - Outayeb-Taibi (2012)] de la spécialité Génie Chimique, qui consistait à la mise au point d'un logiciel pour le calcul des propriétés physiques et thermodynamiques des corps purs et des pétroles légers, appliqué sur les propriétés, classées en six grandes familles comme suit :

- Les propriétés de transport : densité, masse molaire, volume molaire, tension superficielle, viscosité à 100 et 210 °F.
- Les propriétés optiques : indice de réfraction.
- Les propriétés thermodynamiques : capacité calorifique.
- Les propriétés critiques : température critique, pression critique, volume critique.
- Les propriétés spécifiques au pétrole brut : facteur de caractérisation de Watson Kuop.
- Les propriétés thermiques : température d'ébullition, température de congélation, chaleur de vaporisation, facteur acentrique.

Chaque propriété sera traitée en adoptant la démarche suivante :

- En premier lieu, nous donnerons une définition de la propriété. Nous décrirons ensuite, brièvement, les méthodes de mesure expérimentales. Enfin, nous présenterons, les méthodes de calcul disponibles dans la littérature et qui permettent d'estimer cette propriété dans le cas des corps purs, puis dans le cas des mélanges simples et enfin dans le cas des fractions pétrolières.
- En second lieu, nous présenterons les résultats de l'application de ces corrélations sur nos fractions pétrolières, ainsi que les valeurs calculées par nos réseaux de neurones,

tout cela dans le même tableau afin de pouvoir directement comparer entre les différentes méthodes d'approximation nécessaire au logiciel.

Nous parlerons dans le premier chapitre de quelques généralités sur le pétrole comme son exploitation et son transport et l'importance de connaître toutes ses spécificités.

Dans le deuxième et troisième chapitre, nous parlerons des réseaux de neurones artificiels, et de leurs types ainsi que de l'architecture retenue pour le logiciel.

Dans le quatrième chapitre, nous aborderons successivement les différentes propriétés traitées en donnant un tableau récapitulatif dans lequel figure les valeurs calculées à l'aide des différentes méthodes ainsi que l'erreur par rapport à celles expérimentales.



Chapitre 1 :
Pétrole brut – généralités

1. Généralités :

Énergie fossile "redécouverte" au XIX^e siècle, le pétrole est en fait présent dans la nature depuis toujours. Dans l'antiquité, les textes bibliques en parlent sous le nom de "bitume" ayant longtemps servi à rendre étanche la coque des bateaux.

Le pétrole doit son existence à l'enfouissement puis à la transformation de la matière organique issue de végétaux et de micro-organismes. Sa formation peut être décrite au travers de plusieurs étapes et dure des millions d'années.

Techniquement parlons, le pétrole est un mélange d'hydrocarbures (molécules formées d'atomes de carbone et d'hydrogène) et de molécules, appelées résines et asphaltènes, contenant également d'autres atomes, principalement du soufre, de l'azote et de l'oxygène. Certains de ces constituants sont, à température et à pression ambiantes, gazeux (méthane, propane, etc.), liquides (hexane, heptane, octane, benzène etc.) et parfois solides (paraffines, asphaltes, etc.). Le pétrole contient des millions de molécules différentes qu'il va falloir fractionner et transformer chimiquement pour obtenir des produits utilisables.

Le pétrole est devenu, à partir des années 50, la première source d'énergie dans le monde. Sa forte densité énergétique en fait la matière première des carburants qui alimentent les transports (voitures, camions, avions, etc.). C'est aussi une matière première irremplaçable utilisée par l'industrie de la pétrochimie pour un certain nombre de produits de la vie quotidienne : matières plastiques, peintures, colorants, cosmétiques, etc. Le pétrole sert aussi comme combustible dans le chauffage domestique et comme source de chaleur dans l'industrie, mais dans une moindre mesure, en raison des chocs pétroliers de 73 et 79 et de la montée en puissance du nucléaire, et du gaz naturel, pour la production d'électricité. On assiste également aujourd'hui à un recours accru au charbon pour la production d'électricité.

2. Exploration et production :

2.1. Prospection :

En exploration, les géologues pétroliers recherchent les composantes nécessaires à la formation d'un gisement, c'est-à-dire, une roche mère, une roche réservoir et un piège.

L'exploration débute par l'étude géologique d'une région avant de mener des études plus détaillées des structures. Différentes techniques sont utilisées, certaines anciennes, d'autres très sophistiquées. Malgré les avancées technologiques récentes, aucune méthode ne garantit le succès et l'exploration reste incertaine tant que des puits n'ont pas été forés et testés.

2.2. Forage :

Lorsque les études concluent à la présence probable d'hydrocarbures, des forages de prospections sont réalisés. C'est une décision lourde de conséquences économiques pour une entreprise pétrolière, surtout lorsque les cibles se trouvent à des profondeurs importantes ou dans des zones très inhospitalières (Sibérie, zones arctiques ou désertiques, offshore profond et ultra profond). Les forages constituent l'investissement le plus conséquent dans la recherche d'un gisement d'hydrocarbures. Le coût du forage peut aller de 1 million d'euros à 100 millions de dollars pour des opérations se déroulant par 2 000 m de fond au large de l'Angola. Pour cette raison, la prise de décision d'un forage doit être réalisée avec le maximum d'informations favorables, même si une part de chance demeure : le pourcentage de succès était d'environ un puits productif sur sept puits forés en 1990, il est en 2008 d'environ un sur trois à l'échelle mondiale (il existe une grande disparité entre les régions). Le ou les forages permettent :

- de vérifier les hypothèses des géologues et des géophysiciens quant à la présence d'hydrocarbures;
- de préciser la stratigraphie (succession exacte des couches sédimentaires) ;
- de réaliser des observations capitales pour comprendre la géologie exacte de la zone et optimiser l'emplacement d'autres sondages.

2.3. Production :

Les différences entre les gisements sont conséquentes. Ainsi, les États-Unis produisent 350 millions de tonnes par an avec 500 000 puits alors que le Moyen-Orient en produit 3 fois plus avec environ 3000 puits. Tout cela montre combien la gestion d'un gisement est délicate. Elle est confiée aux « ingénieurs de réservoir » qui ont à leur disposition des outils puissants de simulation du déplacement des fluides.

3. Transport et distribution

À la fin du XXe siècle, l'énergie paraissait abondante et donc bon marché. La demande augmentait lentement et les ressources paraissaient très suffisantes. Des excédents de capacité réels ou potentiels permettaient aux consommateurs de bénéficier de prix relativement bas. Le prix du pétrole oscillait entre 15 et 25 dollars par baril – avec des chutes à des niveaux très faibles ; le prix du gaz, indexé sur celui du pétrole, restait modéré ; le prix du charbon était plutôt orienté à la baisse, suivant la diminution des coûts de production.

Depuis 2000, on assiste à une transformation totale du paysage énergétique : prix du pétrole à un niveau élevé (le prix moyen du baril en 2007 était de 72 \$) ; prix du gaz aux États-Unis et en Europe à des valeurs inconnues auparavant ; prix du charbon en forte hausse. La très forte augmentation de la demande dans les pays émergents, des capacités de production

insuffisantes, des crises géopolitiques, la déréglementation du secteur énergétique expliquent cette situation

- **Principaux pays producteurs et pays consommateurs**

Les zones géographiques de production de pétrole et de gaz sont le plus souvent distinctes et éloignées des zones de consommation [2]. Ce déséquilibre engendre le transfert de très importantes quantités de pétroles bruts, de produits pétroliers et de gaz naturel depuis les zones de production vers les zones de consommation. Pour équilibrer l'offre et la demande, d'énormes quantités de pétroles bruts et de produits pétroliers sont ainsi échangées chaque année et transitent à travers la planète.

Le Moyen-Orient, qui détient les deux tiers des réserves de brut – pour l'essentiel situées en Arabie Saoudite, Iran, Irak, Koweït et Émirats Arabes-Unis – et plus de 40 % des réserves de gaz de la planète est au centre des enjeux géopolitiques de l'énergie. Cette région ne produit qu'un tiers du pétrole extrait chaque année de notre planète. La part du Moyen-Orient dans l'approvisionnement mondial pourrait mécaniquement s'accroître dans les prochaines années.

La Russie était, dans les années 1980, le premier producteur mondial de pétrole. Mais cette production a diminué de moitié après le démantèlement de l'URSS. Il faudra attendre 1998, la dévaluation du rouble (qui redonne toute sa compétitivité à l'industrie russe) et les prix élevés du pétrole pour que l'extraction commence à augmenter. La production a quasiment doublé mais elle semble atteindre un plateau. La Russie joue également, de par ses positions historiques et géographiques, un rôle clé dans le développement de la Caspienne. Trois pays sont riches en hydrocarbures : le Kazakhstan, l'Azerbaïdjan et le Turkménistan. Le problème majeur pour ces trois pays – dont les exportations vont augmenter – est celui de l'évacuation de leur production vers les marchés consommateurs. Des canalisations existent et de très nombreux projets ont été envisagés. Mais, les contraintes sont multiples car la Russie et les États-Unis veulent contrôler le transport.

Les États-Unis restent, de très loin, le plus important consommateur d'énergie dans le monde. Disposant de réserves importantes de pétrole, de gaz et de charbon, ils figurent parmi les principaux producteurs mondiaux de chacune de ces énergies. Mais, leur consommation de pétrole représente le quart de la consommation mondiale. Les États-Unis sont très dépendants de leurs importations pétrolières. Chaque jour, ils utilisent plus de 20 millions de barils de pétrole mais doivent en importer plus de la moitié. Quatre pays sont les principaux fournisseurs des États-Unis en brut et produits : le Canada et le Mexique, voisins immédiats et fournisseurs naturels, mais également le Venezuela et l'Arabie Saoudite.

La situation de l'Europe reste caractérisée par une consommation d'énergie très importante et une forte dépendance par rapport à l'étranger. L'Europe consomme 800 millions de tonnes de pétrole – dont 70 % importés – et 600 milliards de mètres cubes de gaz (600 millions de tonnes équivalent pétrole) – importés à 40 %.

L'Asie est désormais la zone qui consomme le plus d'énergie dans le monde. C'est également la zone où la consommation augmentera le plus vite dans les prochaines années. Mais les ressources – sauf en charbon – sont limitées. La dépendance par rapport aux importations d'hydrocarbures, en particulier depuis le Moyen-Orient est un point clé de la région. La taille du continent, l'ampleur des besoins, le manque de ressources en hydrocarbures posent des problèmes majeurs pour la région.

L'axe traditionnel de la politique pétrolière, donc énergétique, qui relie Riyad et Washington pourrait se déplacer vers Pékin.

En Afrique, la consommation d'énergie par habitant est très faible. La moyenne du continent est d'ailleurs trompeuse car l'Afrique du Sud, à elle seule, consomme 40 % de l'énergie utilisée en Afrique et le niveau de développement supérieur de l'Afrique du Nord fait que la consommation en Afrique sub-saharienne est extrêmement faible. À titre d'exemple, la consommation d'énergie – commerciale – par tête dans le Sahel est de l'ordre de 1 % de la consommation d'énergie par habitant aux États-Unis (moins de 100 kg d'équivalent pétrole contre 8 t). L'Afrique ne possède qu'une fraction limitée des réserves mondiales de pétrole (7 %) et de gaz (7 % également). Mais elle produit près de 10 % du pétrole mondial (Lybie, Nigéria, Algérie, Angola, Égypte....) et est un important exportateur car la consommation locale reste faible.

L'essentiel du transport des pétroles bruts et des produits pétroliers s'effectue :

- soit dans des canalisations dédiées, les pipelines;
- soit dans des navires citerne spécifiques, les pétroliers.

Les principaux flux pétroliers dans le monde sont présentés sur la figure 1. Les quantités transportées sont exprimées soit en barils (1 baril US = 42 gallons US = 158,984 L) soit en tonnes. Selon la nature et l'origine des différents pétroles bruts, 1 tonne de pétrole brut représente un volume variant de 6,5 à 7,9 barils.

3.1. Transport par pipeline :

Les pipelines permettent le transport des pétroles bruts et des produits pétroliers depuis les régions de production jusqu'aux zones de consommation. Les pipelines sont composés de tubes, soudés les uns aux autres, d'un diamètre de quelques dizaines de centimètres à plus de 1 m. Une canalisation enterrée est la solution la plus adaptée pour le transport massif d'hydrocarbures et limite les risques de pollution par rapport aux transports maritimes. Les hydrocarbures sont transportés sous pression, maintenue par des stations de pompage installées à intervalles réguliers.

Ce type de transport est privilégié dans les pays où les distances sont importantes tels que les États-Unis ou la Russie. Il existe plusieurs centaines de milliers de kilomètres d'oléoducs dans le monde. Il existe aussi des pipelines sous-marins comme ceux traversant la Méditerranée entre l'Afrique du Nord et l'Europe. C'est un mode de transport très sûr mais on sait mal lui faire franchir les mers profondes, et lorsque les profondeurs sont faibles, la construction demeure difficile et coûteuse. La lourdeur de l'investissement nécessite par

ailleurs l'assurance que le flux sera constant sur plusieurs dizaines d'années. Ce moyen de transport traverse des zones pétrolifères qui sont épisodiquement sujettes à des troubles politiques. Aussi, il arrive que l'utilisation de certains oléoducs soit paralysée, voire leur construction inachevée. Le transport par pipeline offre moins de souplesse que le transport maritime qui permet à tout moment et selon les circonstances de dérouter un navire et de profiter ainsi d'opportunités plus favorables pour la valorisation de sa cargaison.

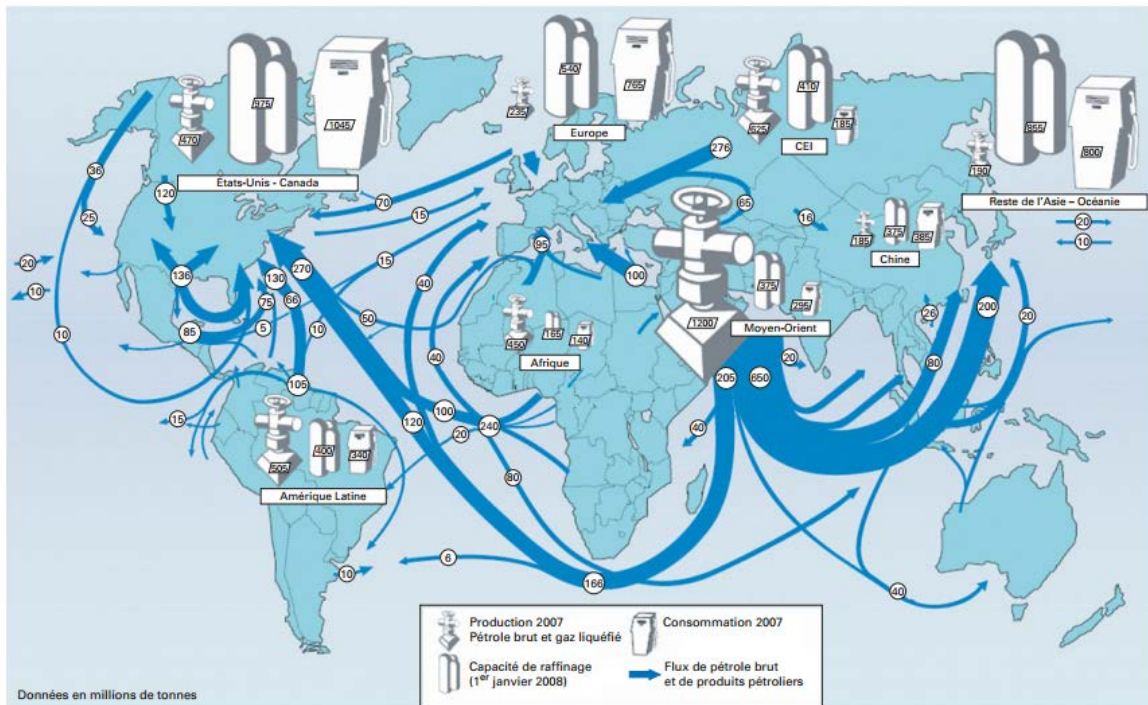


Figure 1.1 : Principaux flux pétroliers dans le monde (doc. IFP Training d'après BP StatisticalReview, CEG et AIE).

4. Raffinage :

Le raffinage est l'ensemble des opérations qui permettent de transformer le pétrole brut en produits pétroliers d'utilisation courante.

La connaissance de la composition d'un pétrole brut est importante pour le raffineur car elle lui permet d'optimiser le choix du pétrole brut ou du cocktail de pétroles bruts qu'il utilisera afin de produire, de manière la plus économique possible, les produits pétroliers demandés par le marché, avec l'outil de raffinage dont il dispose.

4.1. Composition des pétroles bruts :

Les pétroles bruts se présentent sous la forme de liquides plus ou moins visqueux qui sont essentiellement constitués d'hydrocarbures de volatilité et de nature chimique variées (figure 1.2). La composition des pétroles est très variable et dépend du type de matière organique présente au moment du dépôt ainsi que de la maturité de l'huile et de son histoire géologique.

4.1.1. Hydrocarbures :

Les hydrocarbures contenus dans le pétrole brut renferment de 1 à plus de 50 atomes de carbone et présentent une large gamme de volatilité. À pression et température ambiantes, ils sont :

- à l'état gazeux quand la chaîne carbonée contient 4 atomes au plus (C1 à C4) ;
- à l'état liquide de C5 à C16;
- à l'état solide au-delà.

On peut les regrouper par « familles » :

- les hydrocarbures saturés ;
- les hydrocarbures naphthéniques ;
- les hydrocarbures aromatiques.

Ces familles présentent des structures moléculaires bien identifiées qui leur confèrent un certain nombre de propriétés mises à profit lors de leur utilisation en tant que produits pétroliers.

Les hydrocarbures saturés sont constitués de paraffines ou alcanes. Les paraffines normales ou n-paraffines forment des chaînes linéaires. Les iso-paraffines renferment des chaînes branchées. Les paraffines qu'elles soient normales ou iso sont largement représentées dans les gaz naturels, les pétroles bruts et les produits pétroliers commerciaux. La structure de la chaîne des atomes de carbone leur confère toutefois des propriétés assez différentes. Les iso-paraffines se distinguent des n-paraffines par leur tenue au froid et par leur comportement à la combustion dans un moteur essence ou diesel.

Les hydrocarbures naphthéniques ou cyclo-alcanes se caractérisent par la présence dans leur molécule de cycles saturés qui comportent le plus souvent 5 ou 6 atomes de carbone.

Les hydrocarbures aromatiques constituent la troisième grande famille d'hydrocarbures présents dans les pétroles bruts. Ces composés contiennent un ou plusieurs cycles benzéniques. Très appréciés dans les carburants pour moteur à essence, les aromatiques sont au contraire très néfastes à la qualité des carburants pour moteurs diesel et pour réacteurs d'avions.

À noter que les acétyléniques (composés avec des triples liaisons) et les oléfines (alcènes), autres hydrocarbures insaturés, ne sont pas présents dans les pétroles bruts.

Tous ces hydrocarbures renferment en plus du carbone et de l'hydrogène (ratio hydrogène/carbone voisin de 1,85 dans l'huile brute), d'autres éléments tels que le soufre, l'oxygène, l'azote, les métaux (Ni et V) considérés comme des impuretés.

Les éléments mineurs (S, N, O), constituent en général moins de 3 % de la plupart des pétroles, ils sont dans la plupart des cas contenus dans les fractions lourdes : résines et asphaltènes.

Le tableau 1.1 présente, à quelques exceptions près, la composition atomique type d'un pétrole brut.

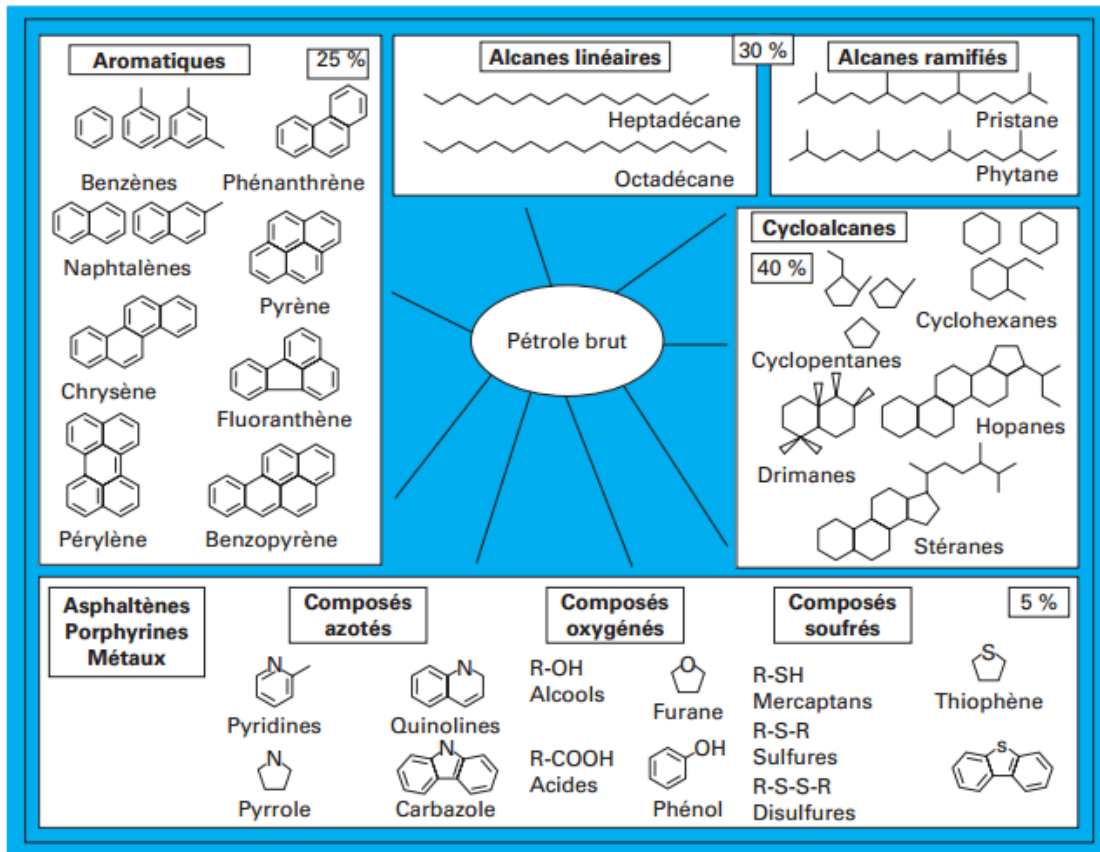


Figure 1.2 : Ensemble des hydrocarbures présents dans les pétroles bruts [13].

Tableau 1 - Composition massique atomique d'un pétrole brut (doc. IFP)

C (%)	H (%)	S (%)	N (%)	O (%)	Métaux (%)	Eaux et sédiments (%) (1)	Sels minéraux (%)
83 à 87	10 à 14	0,05 à 6	0,1 à 2,0	0,05 à 1,5	0,005 à 0,015 (dont 75 % nickel et vanadium)	0,1 à 0,6	0,002 à 0,02

(1) Pourcentage volumique.

Tableau 1.1 : Composition massique atomique d'un pétrole brut (doc. IFP).

4.1.2. Composés soufrés :

Les composés soufrés sont présents sous forme :

- d'hydrogène sulfuré (H₂S) en faible quantité ;
- de mercaptans, acides et malodorants ;
- de sulfures non acides donc non corrosifs et peu odorants ;
- de composés thiocycliques, tels que le thiophène (C₄H₄S), et le benzothiophène (C₈H₆S).

Les pétroles bruts, avec une teneur en soufre inférieure à 0,5 % en masse, sont qualifiés de doux (BTS). Au-delà de cette teneur, les pétroles bruts sont qualifiés de sulfurés (HTS).

4.1.3. Autres composés :

Les autres composés présents dans les bruts sont :

- les composés oxygénés tels que les acides naphthéniques ;
- les composés azotés essentiellement présents dans les fractions lourdes en faibles quantités;
- les composés organométalliques, qui conduisent après agglomération aux asphaltènes riches en aromatiques et en impuretés.

Les pétroles bruts renferment également des impuretés en provenance du gisement ou consécutives au transport. Il s'agit de sédiments (sables, débris divers, eau) et de sels minéraux dont l'essentiel est sous forme de chlorures.

4.1.4. Bruts de référence :

Plus de 130 types de pétroles bruts sont commercialisés à travers le monde, sur un total de 400 types de bruts connus. Leur prix est établi par différentiel à partir de bruts de référence dont la qualité standard est connue. Ces bruts de référence sont :

- le WTI (West Texas Intermediate) pour les USA (38 à 40 °API et 0,3 % S) ;
- le Brent qui est un brut de mer du Nord (38 °API et 0,3 % S) pour l'Europe ;
- le Oman/Dubaï (environ 32 °API et 2 % S) pour le Moyen-Orient et l'Asie.

Notons que :
$$^{\circ}API = \frac{141.5}{d_A^{15}} - 131.5 \quad (1)$$

Avec d_A^{15} : densité à 15 °C.

4.2. Produits pétroliers :

Chaque produit pétrolier doit répondre à un intervalle de volatilité qui est généralement imposé par ses conditions d'utilisation. À chaque produit pétrolier correspond une gamme de volatilité des hydrocarbures qui le composent comme le montre la figure 1.3.

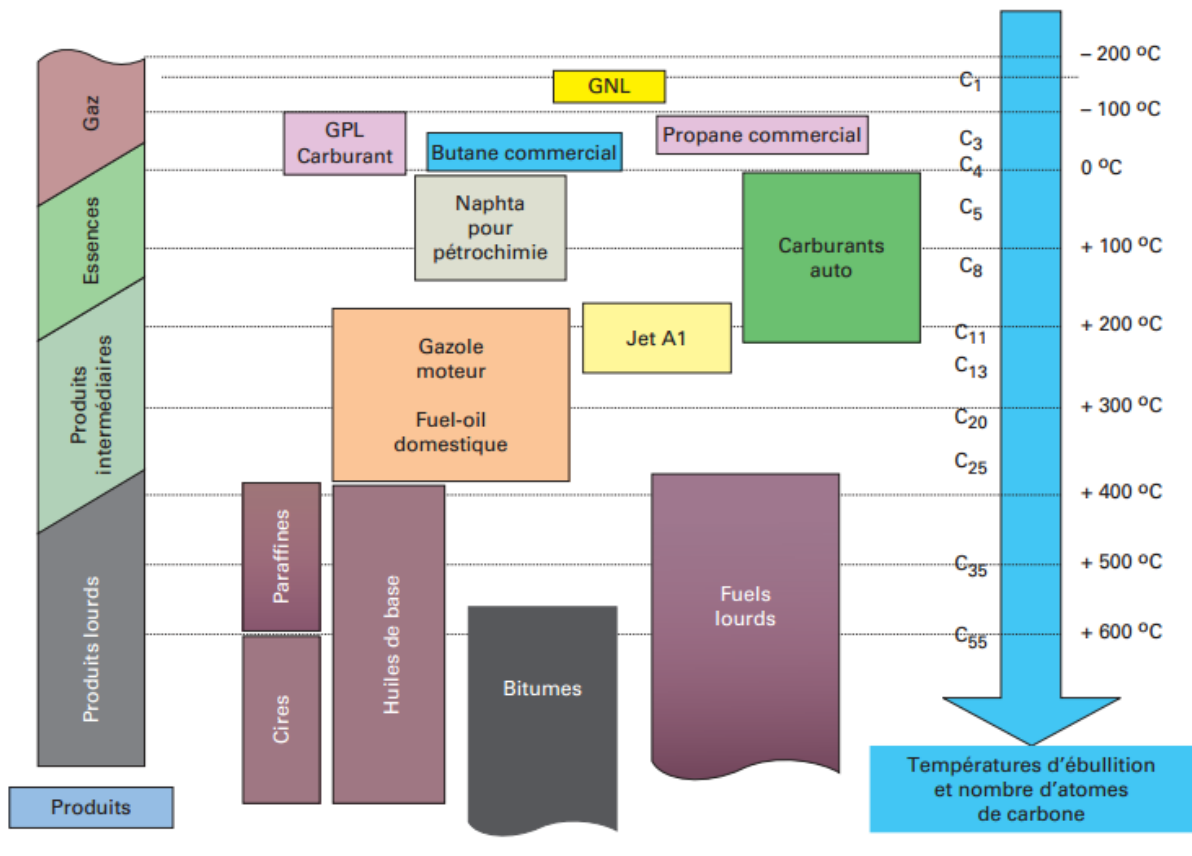


Figure 1.3 : Différentes coupes pétrolières (doc. IFP Training)

On regroupe les produits pétroliers en trois grandes catégories :

- les produits légers ; gaz de pétrole liquéfiés (GPL : butane et propane), carburants auto (essences) et naphta pour la pétrochimie ;
- les produits intermédiaires : Jet A1 (aviation), gasoil moteur et fuel-oil domestique (FOD) ;
- les produits lourds : fuels lourds industriels, bitumes, bases pour lubrifiants.

Les produits pétroliers commerciaux sont caractérisés par des spécifications qui vont déterminer leur mise en œuvre optimale dans leurs conditions d'utilisation. Chaque produit pétrolier doit satisfaire à un grand nombre de spécifications, les plus connues étant par exemple pour l'essence SP95, l'indice d'octane, la teneur en soufre et la teneur en plomb.

Le premier traitement des pétroles bruts en raffinerie, après le dessalage, consiste en un fractionnement par distillation permettant d'obtenir des coupes pétrolières dont les volatilités sont proches de celles requises pour les produits commerciaux.

Suivant la nature des pétroles bruts, les structures de rendement obtenues après cette distillation sont très différentes comme le montre la figure 1.4.

Il apparaît clairement qu'un brut léger conduit à un fort rendement en essences et distillat moyen alors qu'un brut lourd conduit essentiellement à des produits lourds.

Les structures de rendements des pétroles bruts ne correspondent pas à la demande du marché des produits pétroliers, en termes de qualité et de quantité. En effet, actuellement la demande est en faveur des coupes légères et intermédiaires au détriment des coupes lourdes.

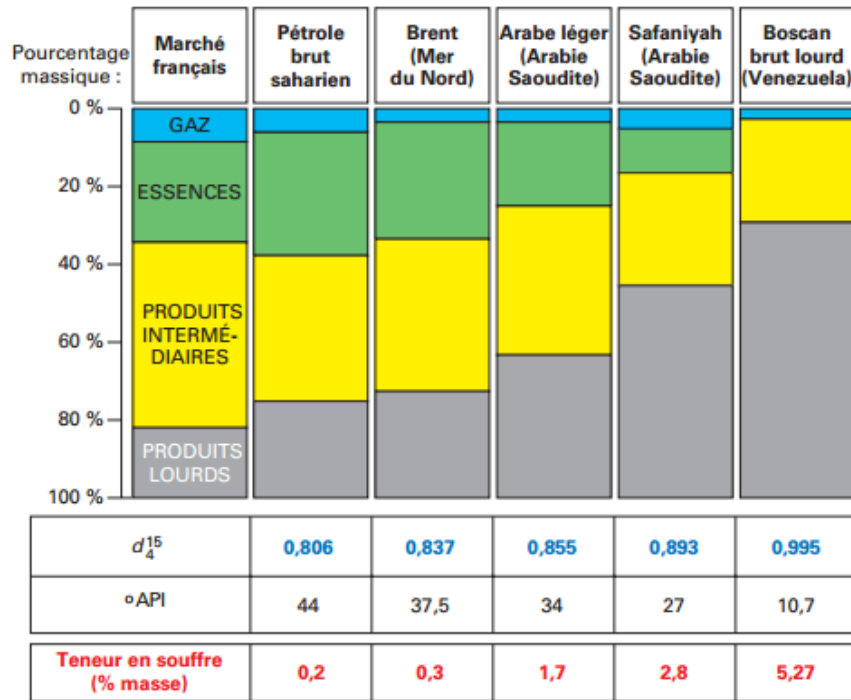


Figure 1.4 : Rendements en coupes pétrolières de quelques bruts (doc. IFP Training)

4.3. Fractionnement initial des pétroles bruts :

4.3.1. Dessalage des pétroles bruts :

Le premier traitement subi par le pétrole brut à son entrée dans la raffinerie est un traitement de dessalage, qui permet d'éliminer l'eau et les sels qu'il contient.

Cette présence de sels est liée aux opérations de production et à une éventuelle contamination par de l'eau de mer. Les principaux sels rencontrés sont des chlorures de Na, Mg et Ca.

À chaud, les chlorures de Mg et Ca peuvent s'hydrolyser et former en présence d'eau de l'acide chlorhydrique et des hydroxydes. Cette opération va donc permettre de protéger les équipements en aval :

- en limitant l'encrassement par les sels et les particules du train de préchauffe du pétrole brut;
- en réduisant les phénomènes de corrosion en tête de la colonne de distillation atmosphérique ;
- en limitant l'empoisonnement éventuel des catalyseurs de certains procédés de transformation en aval.

L'opération de dessalage consiste à « laver » le brut par injection d'eau, puis à séparer par décantation l'eau chargée en sels et le brut dessalé.

4.3.2. Distillation :

Le fractionnement initial du pétrole brut permet d'obtenir les différentes coupes pétrolières. Il est basé sur le procédé de distillation qui met en jeu les différences de volatilité entre les différents constituants des pétroles bruts.

La distillation atmosphérique associée aux colonnes de séparation des gaz et des essences permet la séparation en différentes coupes de la plus légère à la plus lourde :

- gaz combustibles (C_1, C_2) ;
- propane (C_3) ;
- butane (C_4) ;
- essence légère ($C_5—C_6$) ;
- essence lourde ($C_7—C_{10}$) ;
- kérosène ($C_{10—C_{13}}$) ;
- gasoil ($C_{13—C_{20/25}}$) ;
- résidu atmosphérique ($C_{20/25+}$).

Dans un grand nombre de raffineries, le résidu atmosphérique est envoyé dans une colonne de distillation sous vide afin de poursuivre le fractionnement. Cette colonne fonctionne à pression inférieure à la pression atmosphérique, ce qui permet d'abaisser les températures de distillation pour les rendre compatibles avec la stabilité des hydrocarbures présents dans le résidu atmosphérique et éviter leur dégradation par des réactions de craquage non désirées. Cette distillation sous vide permet d'obtenir des distillats sous vide ($C_{20—C_{50}}$) et un résidu sous vide (C_{50+}) appelé aussi « fond du baril ». Contrairement aux distillats sous vide, le résidu n'est pas vaporisable et concentre la majeure partie des impuretés métalliques (Ni et V) présentes dans le brut, ce qui rend difficile sa valorisation par d'éventuels procédés catalytiques.

Hormis les gaz combustibles qui sont envoyés au réseau fuel gaz de la raffinerie et les GPL ($C_3—C_4$) directement commercialisables, chacune des coupes issues de la distillation va être envoyée dans un procédé de raffinage afin de produire des produits pétroliers conformes à la demande du marché.

On retrouve dans la raffinerie (figure 1.5) trois grands types de procédés :

- les procédés permettant d'obtenir des essences à haut indice d'octane: reformage, isomérisation, alkylation ;
- les procédés permettant de convertir les coupes lourdes en coupes plus légères (essence, gasoil) : craquage catalytique, hydrocraquage, viscoréduction ;
- les procédés permettant d'éliminer le soufre des coupes pétrolières: hydrodésulfuration, lavage aux amines, traitement des gaz de queue.

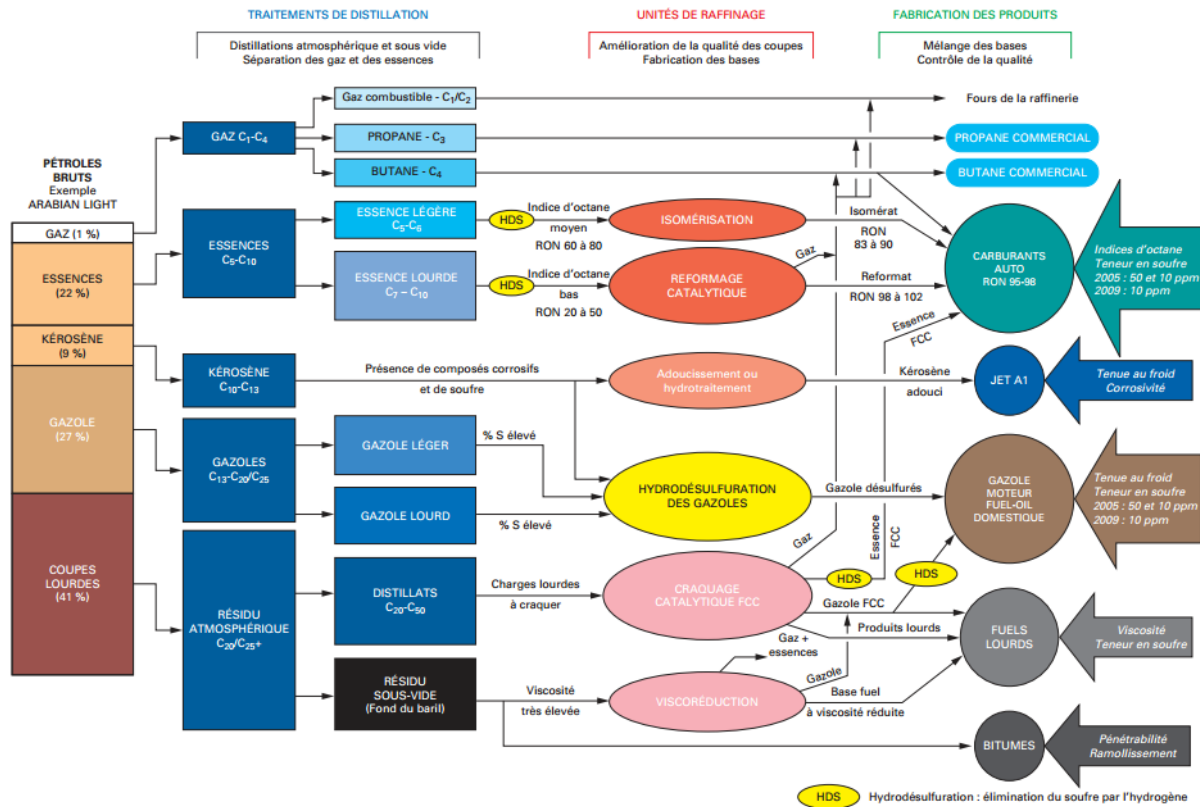


Figure 1.5 : Schéma simplifié de raffinage (doc. IFP Training)

4.4. Obtention d'essences à haut indice d'octane :

Le fractionnement initial du pétrole brut permet d'obtenir les différentes coupes pétrolières. Il est basé sur le procédé de distillation qui met en jeu les différences de volatilité entre les différents constituants des pétroles bruts.

L'indice d'octane, désigné généralement par l'abréviation RON (Research Octane Number), est une propriété majeure des carburants automobile. Il caractérise l'aptitude du carburant à brûler correctement dans un moteur à allumage commandé. En Europe, la spécification sur le RON des essences est supérieure ou égale à 95.

Une essence est également caractérisée par une autre grandeur : le MON (Motor Octane Number) qui caractérise également l'aptitude du carburant à brûler correctement mais dans des conditions de fonctionnement différentes [8]. La spécification sur le MON est supérieure ou égale à 85.

La différence entre le RON et le MON est appelée sensibilité d'une essence.

Chaque hydrocarbure pur est caractérisé par son RON et son MON. Ils dépendent essentiellement de leur appartenance à une famille chimique. Ainsi généralement, les paraffines normales ont des indices d'octane faibles, les naphthènes des indices d'octane faibles à moyens alors que les iso-paraffines et les aromatiques ont des indices d'octane

élevés à très élevés. Ce sont donc essentiellement ces deux dernières familles d'hydrocarbures qui permettent d'atteindre les spécifications en octane des essences.

À l'issue de la distillation et de la séparation de la coupe essence globale, le raffineur dispose de deux coupes essence :

- une coupe essence légère qui renferme essentiellement des paraffines normales et dont l'indice d'octane est de l'ordre de 60-70 ;
- une coupe essence lourde riche en paraffines normales et en naphènes dont l'indice d'octane est compris entre 20 et 50.

Pour amener ces coupes essences à la valeur d'indice d'octane correspondant à la spécification (RON > 95), il faut transformer par voie chimique, les hydrocarbures de faible indice d'octane, en hydrocarbures à haut indice d'octane.

Pour ce faire, le raffineur dispose de deux procédés :

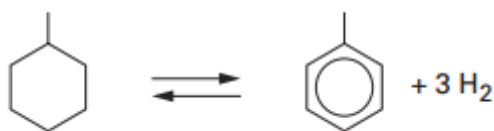
- le procédé d'isomérisation des paraffines, qui va transformer les n-paraffines de l'essence légère en iso-paraffines ;
- le procédé de reformage catalytique qui va transformer les n-paraffines et les naphènes de l'essence lourde en aromatiques.

Ces deux procédés sont des procédés catalytiques qui nécessitent que les charges soient au préalable débarrassées d'éventuelles impuretés telles que le soufre, l'azote et les métaux afin de protéger le catalyseur.

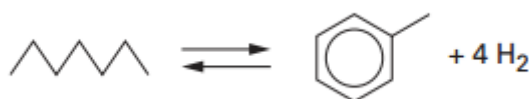
4.4.1. Procédé de reformage catalytique :

Les principales réactions mises en œuvre dans le procédé de reformage catalytique sont :

- la réaction de déshydrogénation des naphènes en aromatiques ;



- la réaction de déshydrocyclisation des paraffines en aromatiques ;



Ces deux réactions conduisent à des hydrocarbures de haut indice d'octane et produisent également des quantités importantes d'hydrogène. En plus de fournir des essences à haut indice d'octane, le reformage catalytique est actuellement l'unique procédé fournissant en

H₂ l'ensemble des unités de la raffinerie qui travaillent sous H₂ soit pour éliminer les impuretés des coupes pétrolières (hydrotraitements), soit pour assurer la stabilité du catalyseur des unités en aval (isomérisation...). Par ailleurs, il peut fournir également des aromatiques à la pétrochimie et une coupe légère renfermant de l'iC₄ qui peut servir pour la réaction d'alkylation aliphatique.

D'un point de vue thermodynamique, ces réactions sont favorisées à haute température et basse pression, mais ces conditions favorisent les réactions secondaires de craquage et de formation de coke.

Afin de limiter les réactions secondaires, un compromis entre thermodynamique et cinétique doit être trouvé grâce à l'utilisation de catalyseurs performants.

Les catalyseurs utilisés pour favoriser la vitesse des réactions du reformage sont des catalyseurs bi fonctionnels comprenant une fonction acide et une fonction métallique :

- la fonction acide permet de réaliser les réactions nécessitant l'activation des liaisons C—C (cyclisation...);
- la fonction métallique permet d'activer les réactions nécessitant l'activation des liaisons C—H et/ou H—H (hydrogénation, déshydrogénation...).

La fonction acide est fournie par le support, une alumine gamma additionnée d'un composé halogéné, chlorure, pour optimiser l'acidité, et la fonction métallique par un ou plusieurs métaux déposés à la surface du support.

4.5. Conversion des coupes lourdes en coupes plus légères :

Il existe un déséquilibre entre les rendements naturels des pétroles bruts et la demande du marché en produits pétroliers. Il convient donc de transformer les coupes lourdes excédentaires, qui ne sont utilisables qu'en tant que fuels, en carburants (essence, kérosène et gazole). Les unités de raffinage qui réalisent ces transformations sont appelées « unités de conversion ». Elles regroupent les unités de craquage catalytique, hydrocraquage, (procédés catalytiques), viscoréduction et cokéfaction (procédés thermiques).

En Europe, les raffineries sont équipées d'unités de craquage catalytique et de viscoréduction et on assiste, face à la demande accrue en gazole de bonne qualité, depuis quelques années au développement des unités d'hydrocraquage.

4.5.1. Craquage catalytique :

Le procédé de craquage catalytique permet de transformer les distillats sous vide (C₂₀—C₅₀) en différentes coupes plus légères.

D'un point de vue thermodynamique, la réaction de craquage est favorisée à haute température et basse pression. Elle procède par mécanisme acide. Le catalyseur utilisé est donc un catalyseur acide constitué d'une zéolithe et d'une matrice à base de silice-alumine.

Différentes coupes sont obtenues en sortie de l'unité :

- une coupe gaz (C₃—C₄), (15 à 25 % en masse de l'effluent), très riche en oléfines qui peut alimenter, après avoir subi des traitements de purification appropriés, la pétrochimie ou d'autres unités de la raffinerie telles que l'alkylation et l'éthérification;
- une coupe essence (environ 50 % en masse de l'effluent), riche en oléfines et en aromatiques et chargée en soufre, présentant un RON compris entre 90 et 95 ;
- une coupe gasoil (environ 20-30 % en masse de l'effluent) de très mauvaise qualité (indice de cétane de l'ordre de 30 pour une spécification de 51) utilisée généralement comme fluxant des fuels lourds ;
- une coupe slurry (HCO) (environ 5 à 15 % en masse) ;
- du coke (5 % en masse) dont la combustion dans le régénérateur dégage de la chaleur qui sert à vaporiser et craquer la charge au réacteur.

Les conditions opératoires sont les suivantes :

- température : 500°C ;
- pression : 1 à 3 bar ;
- temps de contact : quelques secondes.

En Europe, l'essence de craquage catalytique constitue une grande partie du pool essence. Avec le passage de la spécification de teneur en soufre des essences à 50 ppm puis à 10 ppm au 1^{er} Janvier 2009, son utilisation telle quelle n'était plus possible du fait de sa teneur en soufre élevée. C'est pourquoi, ces dernières années, sont apparues sur le marché des procédés de désulfuration des essences de craquage catalytique tels que le procédé PRIME G (Axens) qui sont devenus incontournables.

Le catalyseur, sous forme de billes de quelques dizaines de micromètres de diamètre (50 à 70) est mis en œuvre en lit fluidisé, avec une technologie régénérative. Il tourne en permanence du réacteur vers le régénérateur. On parle généralement du procédé de FCC (FluidCatalytic Cracking) [9].

4.5.2. Hydrocraquage :

Tout comme le procédé de craquage catalytique, le procédé d'hydrocraquage permet de convertir les coupes pétrolières lourdes et en particulier le distillat sous vide en coupes pétrolières plus légères.

L'hydrocraquage est un procédé d'hydro conversion, qui travaille en présence d'H₂ et dont le but est de modifier le squelette hydrocarboné des molécules de départ. Cette modification peut être :

- soit une isomérisation sans modification du nombre d'atomes de carbone, on obtient alors des huiles;

- soit un craquage avec modification notable du nombre d'atomes de carbone, on obtient alors des produits plus légers tels que l'essence, le kérosène et le gazole.

Ces deux réactions procèdent essentiellement par mécanisme acide mais nécessitent l'utilisation de catalyseurs bi fonctionnels métal/acide afin d'assurer en plus le décokage du catalyseur. Par ailleurs, certaines molécules difficiles à craquer telles que les aromatiques doivent être hydrogénées au préalable. L'étape d'hydrogénation requiert également une fonction métallique à la surface du catalyseur. Ces catalyseurs doivent être protégés d'éventuels poisons par purification de la charge.

Le procédé d'hydrocraquage comprend donc deux étapes :

- une étape de purification ou hydrotraitement, destinée à éliminer essentiellement les composés azotés et le soufre, et mettant en œuvre un catalyseur à base de Ni—W ou Ni—Mo sur alumine ;
- une étape d'hydroconversion destinée à modifier les molécules de la charge, sur un catalyseur constitué de Pd ou NiMo déposé sur un support à base de zéolithe Y.

D'un point de vue thermodynamique, les réactions, mises en œuvre, sont toutes des réactions exothermiques qui sont favorisées à des températures pas trop élevées. Par ailleurs, ce procédé met en œuvre des réactions d'hydrogénation, en particulier des aromatiques et d'hydrocraquage qui nécessitent des pressions partielles d'hydrogène élevées.

Les conditions opératoires sont les suivantes :

- température : 350 à 430 °C ;
- pression : 80 à 170 bar ;
- temps de contact : 0,5 à 3 h ;
- H₂/HC : 600 à 1 800 m³/m³.

On obtient dans ces conditions :

- de l'essence (15 à 25 % en masse) de faible RON (65 à 75) qui est envoyée au reformage catalytique ;
- du kérosène (30 à 50 % en masse) d'excellente qualité ;
- du gasoil (25 à 45 % en masse) d'excellente qualité (indice de cétane > 50, dépourvu de soufre) ;
- une base huile (0 à 25 % en masse) également d'excellente qualité.

Même si certaines unités ont été construites ces dernières années, les raffineries européennes sont encore peu équipées en hydrocraqueurs alors que cette unité permettrait de mieux répondre à la demande croissante de gazole de haute qualité.

Les principaux freins à la construction de telles unités sont :

- la grande consommation d'hydrogène dans un contexte tendu de disponibilité de l' H_2 dans les raffineries, qui nécessite souvent la construction d'unités dédiées à la production d' H_2 telles que le reformage à la vapeur ;
- le coût (investissement, fonctionnement, utilités, catalyseurs...).

4.5.3. Viscoréduction:

Le procédé de viscoréduction est également un procédé de craquage de molécules lourdes en molécules plus légères. La charge est principalement constituée du résidu de distillation sous vide.

Contrairement au craquage catalytique et à l'hydrocraquage, c'est un procédé thermique qui fonctionne donc sans catalyseur. Son principal objectif est de réduire la viscosité des résidus lourds.

L'économie du procédé est liée à :

- la réduction de la quantité de diluant nécessaire à la fabrication des fuels commerciaux à partir de ces résidus ;
- la diminution de la production totale de fuel dans un marché en régression ;
- la production de produits légers – gaz, essence et gasoil chargés en soufre.

Le procédé se déroule entre 430 °C et 490 °C, à une pression comprise entre 5 et 12 bar.

Les produits obtenus après viscoréduction sont de qualité médiocre. Ils sont en particulier chargés en soufre et nécessitent des traitements d'hydrodésulfuration sévères pour pouvoir être mélangés au pool des produits. L'essence est par ailleurs envoyée au reformage catalytique pour améliorer son indice d'octane. Une simple hydrodésulfuration du gasoil produit peut permettre, dans certains cas, d'obtenir un produit aux bonnes spécifications.



Chapitre 2 :
Les réseaux de neurones artificiels

1. Introduction :

Les réseaux de neurones formels sont devenus en quelques années des outils précieux dans des domaines très divers de l'industrie et des services. Néanmoins, ils n'ont pas encore atteint leur plein développement, pour des raisons plus psychologiques que techniques, liées aux connotations biologiques du terme, et au fait qu'ils sont considérés, à tort, comme des outils d'Intelligence artificielle. Or l'intérêt des réseaux de neurones, dans le domaine des Sciences de l'Ingénieur, ne doit rien à la métaphore biologique : il est uniquement dû aux propriétés mathématiques spécifiques de ces réseaux. Nous expliquons ici, à partir de principes simples, ce que sont réellement les réseaux de neurones, et nous délimitons leurs domaines d'excellence. Ces principes sont illustrés par diverses applications industrielles.

Lorsqu'apparaît une nouvelle technique, l'ingénieur se demande naturellement en quoi cette nouveauté peut lui être utile. Si elle est dotée d'un nom plus métaphorique que technique – ce qui est évidemment le cas pour les réseaux de neurones - la réponse à cette question doit être particulièrement précise et motivée. De plus, la mise en œuvre des réseaux de neurones est très simple ; la tentation peut être grande, d'appliquer cette technique de manière irréfléchie ou inadaptée, ce qui ne peut conduire qu'à des déceptions. C'est pourquoi nous expliquerons ici les principes fondamentaux qui justifient l'intérêt pratique des réseaux de neurones, et nous situerons ces derniers dans la perspective des méthodes classiques de traitement statistique de données ; nous montrerons que la technique des réseaux de neurones formels doit être considérée comme une extension puissante de techniques bien connues des ingénieurs, telles que la régression, et nous illustrerons notre propos par quelques exemples industriels choisis dans les domaines de la modélisation, de la commande, et de la classification automatique.

2. Les neurones formels

Un "neurone formel" (ou simplement "neurone") est une fonction algébrique non linéaire et bornée, dont la valeur dépend de paramètres appelés coefficients ou poids. Les variables de cette fonction sont habituellement appelées "entrées" du neurone, et la valeur de la fonction est appelée sa "sortie".

Un neurone est donc avant tout un opérateur mathématique, dont on peut calculer la valeur numérique par quelques lignes de logiciel. On a pris l'habitude de représenter graphiquement un neurone comme indiqué sur la Figure 2.1.

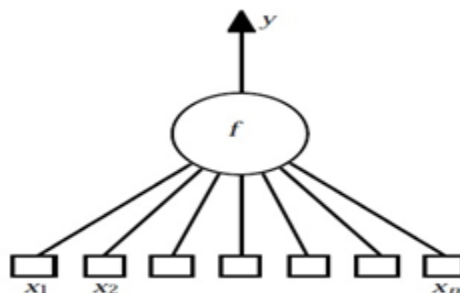


Figure 2.1 : Représentation graphique d'un neurone.

Un neurone réalise une fonction non linéaire bornée $y = f(x_1, x_2, \dots, x_n; c_1, c_2, \dots, c_p)$

Où les $\{x_i\}$ sont les variables et les $\{c_j\}$ sont des paramètres.

Pour des raisons que nous expliquerons plus loin, les neurones les plus fréquemment utilisés sont ceux pour lesquels la fonction f est une fonction non linéaire (généralement une tangente hyperbolique) d'une combinaison linéaire des entrées :

$$y = \tanh \left[\sum_{i=1}^n c_i x_i \right] \quad (2)$$

Les $\{x_i\}$ sont les variables (ou entrées) du neurone, les $\{c_i\}$ sont des paramètres ajustables.

Un neurone formel ne réalise donc rien d'autre qu'une somme pondérée suivie d'une non linéarité.

C'est l'association de tels éléments simples sous la forme de réseaux qui permet de réaliser des fonctions utiles pour des applications industrielles.

On distingue deux grands types d'architectures de réseaux de neurones : les réseaux de neurones non bouclés et les réseaux de neurones bouclés.

i. Les réseaux de neurones non bouclés :

Un réseau de neurones non bouclé réalise une (ou plusieurs) fonctions algébriques de ses entrées, par composition des fonctions réalisées par chacun de ses neurones.

Un réseau de neurones non bouclé est représenté graphiquement par un ensemble de neurones "connectés" entre eux, l'information circulant des entrées vers les sorties sans "retour en arrière"; Si l'on représente le réseau comme un graphe dont les nœuds sont les neurones et les arêtes les "connexions" entre ceux-ci, le graphe d'un réseau non bouclé est acyclique. Le terme de "connexions" est une métaphore : dans la très grande majorité des applications, les réseaux de neurones sont des formules algébriques dont les valeurs numériques sont calculées par des programmes d'ordinateurs, non des objets physiques (circuits électroniques spécialisés) ; Néanmoins, le terme de connexion, issu des origines biologiques des réseaux de neurones, est passé dans l'usage, car il est commode quoique trompeur. Il a même donné naissance au terme de connexionnisme.

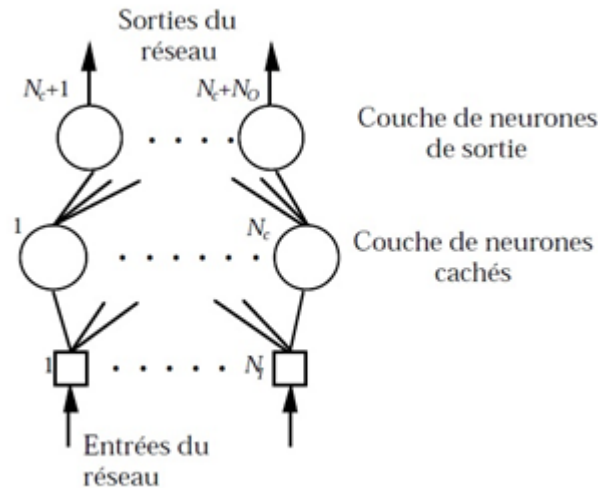


Figure 2.2 : Un Perceptron multicouche.

La Figure 2.2 représente un réseau de neurones non bouclé qui a une structure particulière, très fréquemment utilisée : il comprend des entrées, une couche de neurones "cachés" et des neurones de sortie. Les neurones de la couche cachée ne sont pas connectés entre eux. Cette structure est appelée Perceptron multicouche.

Les réseaux de neurones non bouclés sont des objets statiques : si les entrées sont indépendantes du temps, les sorties le sont également. Ils sont utilisés principalement pour effectuer des tâches d'approximation de fonction non linéaire, de classification ou de modélisation de processus statiques non linéaires.

ii. Les réseaux de neurones bouclés :

Contrairement aux réseaux de neurones non bouclés dont le graphe de connexions est acyclique, les réseaux de neurones bouclés peuvent avoir une topologie de connexions quelconque, comprenant notamment des boucles qui ramènent aux entrées la valeur d'une ou plusieurs sorties.

Pour qu'un tel système soit causal, il faut évidemment qu'à toute boucle soit associé un retard : un réseau de neurones bouclé est donc un système dynamique, régi par des équations différentielles; comme l'immense majorité des applications sont réalisées par des programmes d'ordinateurs, on se place dans le cadre des systèmes à temps discret, où les équations différentielles sont remplacées par des équations aux différences.

Un réseau de neurones bouclé à temps discret est donc régi par une (ou plusieurs) équations aux différences non linéaires, résultant de la composition des fonctions réalisées par chacun des neurones et des retards associés à chacune des connexions.

La forme la plus générale des équations régissant un réseau de neurones bouclé est appelée forme canonique.

$$x(k + 1) = \phi [x(k), u(k)] \quad (3)$$

$$y(k) = \psi [x(k), u(k)] \quad (4)$$

Où ϕ et ψ sont des fonctions non linéaires réalisées par un réseau de neurones non bouclé (par exemple, mais pas obligatoirement, un Perceptron multicouche), et où k désigne le temps (discret).

La forme canonique est représentée sur la Figure 2.3. Tout réseau de neurones, aussi compliqué soit-il, peut être mis sous cette forme canonique, de manière complètement automatique. Ainsi, le réseau représenté sur la Figure 2.4 peut être mis sous la forme canonique, strictement équivalente mais beaucoup plus facilement manipulable, représentée sur la Figure 2.5.

Les réseaux de neurones bouclés sont utilisés pour effectuer des tâches de modélisation de systèmes dynamiques, de commande de processus, ou de filtrage.

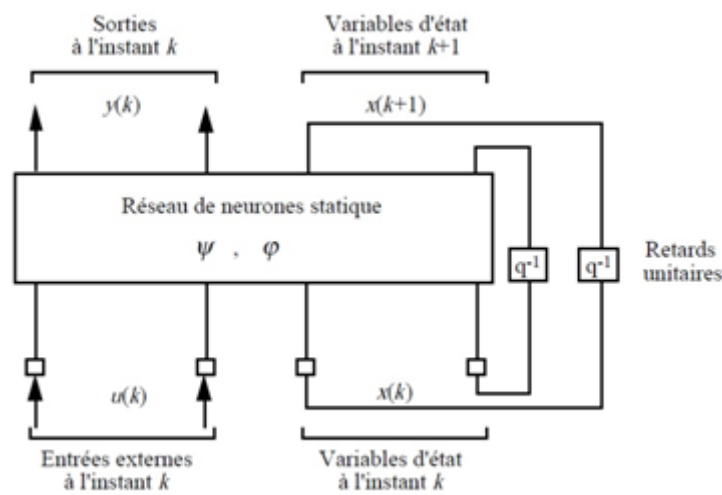


Figure 2.3 : Forme canonique d'un réseau de neurones bouclé.

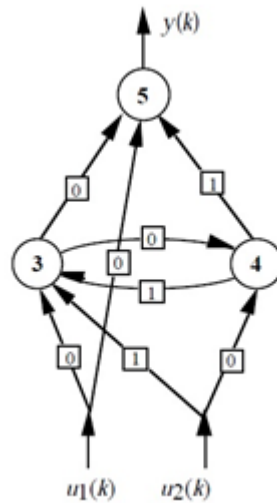


Figure 2.4 : Un réseau de neurones bouclé. Les nombres dans les carrés sont les retards (exprimés en nombre de périodes d'échantillonnage) associés à chaque connexion.

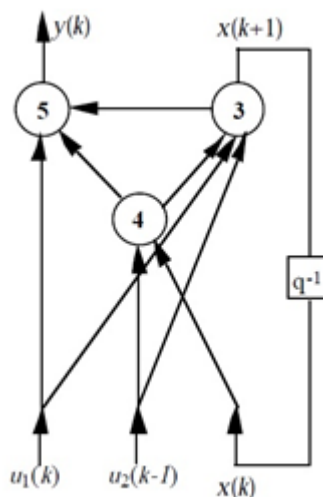


Figure 2.5 : La forme canonique du réseau de la figure 2.4.

3. Propriété fondamentale des réseaux de neurones formels:

3.1. L'approximation parcimonieuse:

Les réseaux de neurones formels, tels que nous les avons définis dans le paragraphe précédent, possèdent une propriété remarquable qui est à l'origine de leur intérêt pratique dans des domaines très divers : ce sont des approximateurs universels parcimonieux.

Sans entrer dans les détails mathématiques, la propriété d'approximation peut être énoncée de la manière suivante : toute fonction bornée suffisamment régulière peut être approchée avec une précision arbitraire, dans un domaine fini de l'espace de ses variables, par un réseau de neurones comportant une couche de neurones cachés en nombre fini, possédant tous la même fonction d'activation, et un neurone de sortie linéaire. Cette propriété n'est pas

spécifique aux réseaux de neurones : il existe bien d'autres familles de fonctions paramétrées possédant cette propriété ; c'est le cas notamment des ondelettes, des fonctions radiales, des fonctions splines, par exemple.

La spécificité des réseaux de neurones réside dans le caractère parcimonieux de l'approximation : à précision égale, les réseaux de neurones nécessitent moins de paramètres ajustables (les poids des connexions) que les approximateurs universels couramment utilisés ; plus précisément, le nombre de poids varie linéairement avec le nombre de variables de la fonction à approcher, alors qu'il varie exponentiellement pour la plupart des autres approximateurs.

En pratique, dès qu'un problème fait intervenir plus de deux variables, les réseaux de neurones sont, en général, préférables aux autres méthodes.

Qualitativement, la propriété de parcimonie peut se comprendre de la manière suivante : lorsque l'approximation est une combinaison linéaire de fonctions élémentaires fixées (des monômes par exemple, où des gaussiennes à centres et écarts-types fixes), on ne peut ajuster que les coefficients de la combinaison; en revanche, lorsque l'approximation est une combinaison linéaire de fonctions non linéaires à paramètres ajustables (un Perceptron multicouche par exemple), on ajuste à la fois les coefficients de la combinaison et la forme des fonctions que l'on combine. Ainsi, dans un Perceptron multicouche, les poids de la première couche déterminent la forme de chacune des sigmoïdes réalisées par les neurones cachés, et les poids de la seconde couche déterminent une combinaison linéaire de ces fonctions. On conçoit facilement que cette souplesse supplémentaire, conférée par le fait que l'on ajuste la forme des fonctions que l'on superpose, permet d'utiliser un plus petit nombre de fonctions élémentaires, donc un plus petit nombre de paramètres ajustables.

3.2. Réseaux de neurones et régression non linéaire

Dans la pratique, on n'utilise pas les réseaux de neurones pour réaliser des approximations de fonctions connues. Le plus souvent, le problème qui se pose à l'ingénieur est le suivant : il dispose d'un ensemble de mesures de variables d'un processus de nature quelconque (physique, chimique, économique, financier, ...), et du résultat de ce processus; il suppose qu'il existe une relation déterministe entre ces variables et ce résultat, et il cherche une forme mathématique de cette relation, valable dans le domaine où les mesures ont été effectuées, sachant que :

(1) les mesures sont en nombre fini, que (2) elles sont certainement entachées de bruit, et que (3) toutes les variables qui déterminent le résultat du processus ne sont pas forcément mesurées. En d'autres termes, l'ingénieur cherche un modèle du processus qu'il étudie, à partir des mesures dont il dispose, et d'elles seules : on dit qu'il effectue une modélisation "boîte noire". Dans le jargon des réseaux de neurones, les données à partir desquelles on cherche à construire le modèle s'appellent des exemples.

En quoi la propriété d'approximation parcimonieuse peut-elle être utile pour résoudre ce genre de problèmes?

Ce que l'ingénieur cherche à obtenir à l'aide de son modèle, c'est la "vraie" fonction qui relie la grandeur y que l'on veut modéliser aux variables $\{x\}$ qui la déterminent, c'est-à-dire la fonction que l'on obtiendrait en faisant une infinité de mesures de y pour chaque valeur possible de $\{x\}$: en termes de statistiques, l'ingénieur cherche la fonction de régression de la grandeur à modéliser. Cette fonction est inconnue, mais on peut en chercher une approximation à partir des mesures disponibles : les réseaux de neurones sont donc de bons candidats pour cela, si la fonction de régression cherchée est non linéaire. Cette approximation est obtenue en estimant les paramètres d'un réseau de neurones au cours d'une phase dite d'apprentissage.

C'est ici que la propriété d'approximation parcimonieuse des réseaux de neurones est précieuse : en effet, le nombre de mesures nécessaires pour estimer les paramètres de manière significative est d'autant plus grand que le nombre de paramètres est grand. Ainsi, pour modéliser une grandeur avec une précision donnée à l'aide d'un réseau de neurones, il faut moins de données que pour la modéliser, avec une précision comparable, à l'aide d'une régression linéaire multiple ; de manière équivalente, un réseau de neurones permet, avec les mêmes données disponibles, de réaliser une approximation plus précise qu'une régression linéaire multiple.

De manière générale, un réseau de neurones permet donc de faire un meilleur usage des mesures disponibles que les méthodes de régression non linéaires conventionnelles. Ce gain peut être considérable lorsque le processus à modéliser dépend de plusieurs variables : rappelons en effet que le nombre de paramètres (donc de mesures) varie exponentiellement pour les méthodes conventionnelles de régression non linéaire, alors qu'elle varie linéairement pour les réseaux de neurones.

Ainsi, à la lumière de cette propriété fondamentale, la technique des réseaux de neurones apparaît comme une puissante méthode de régression non linéaire : ce n'est donc rien d'autre qu'une extension des méthodes de régression linéaire ou multilinéaires proposées par tous les logiciels qui permettent de faire de la modélisation de données. Contrairement à une croyance répandue, elle ne relève donc pas de l'Intelligence Artificielle au sens classique du terme, mais elle constitue une branche des statistiques appliquées. Il ne faut donc pas être victime du vocabulaire anthropomorphe utilisé (neurones, apprentissage, etc.)

4. Mise en œuvre des réseaux de neurones et domaine d'applications :

Pour réaliser l'approximation de la fonction de régression cherchée, à partir d'échantillons généralement bruités, à l'aide d'un réseau de neurones, trois étapes successives sont nécessaires:

- il faut tout d'abord choisir l'architecture du réseau, c'est-à-dire les entrées externes, le nombre de neurones cachés, et l'agencement des neurones entre eux, de telle manière que le réseau soit en mesure de reproduire ce qui est déterministe dans les données ; le nombre de poids ajustables est un des facteurs fondamentaux de la réussite d'une

application : si le réseau possède un trop grand nombre de poids, c'est-à-dire si le réseau est trop "souple", il risque de s'ajuster au bruit qui est présent dans les données de l'ensemble d'apprentissage, et, même en l'absence de bruit, il risque de présenter des oscillations non significatives entre les points d'apprentissage, donc de posséder de mauvaises propriétés d'interpolation (ou, dans le jargon des réseaux de neurones, de "généralisation") ; si ce nombre est trop petit, le réseau est trop "rigide" et ne peut reproduire la partie déterministe de la fonction. Le problème de la détermination de l'architecture optimale est resté pendant longtemps un problème ouvert, mais il existe actuellement diverses méthodes, mettant notamment en jeu des tests statistiques, qui permettent de déterminer cette architecture pour une vaste classe de réseaux; la figure 2.6 illustre l'influence du nombre de paramètres sur la qualité de l'approximation.

- il faut calculer les poids du réseau - ou, en d'autres termes, estimer les paramètres de la régression non linéaire - à partir des exemples, en minimisant l'erreur d'approximation sur les points de l'ensemble d'apprentissage, de telle manière que le réseau réalise la tâche désirée. Ce calcul des coefficients synaptiques constitue l'apprentissage supervisé pour le réseau de neurones.
- il faut enfin estimer la qualité du réseau obtenu en lui présentant des exemples qui ne font pas partie de l'ensemble d'apprentissage.

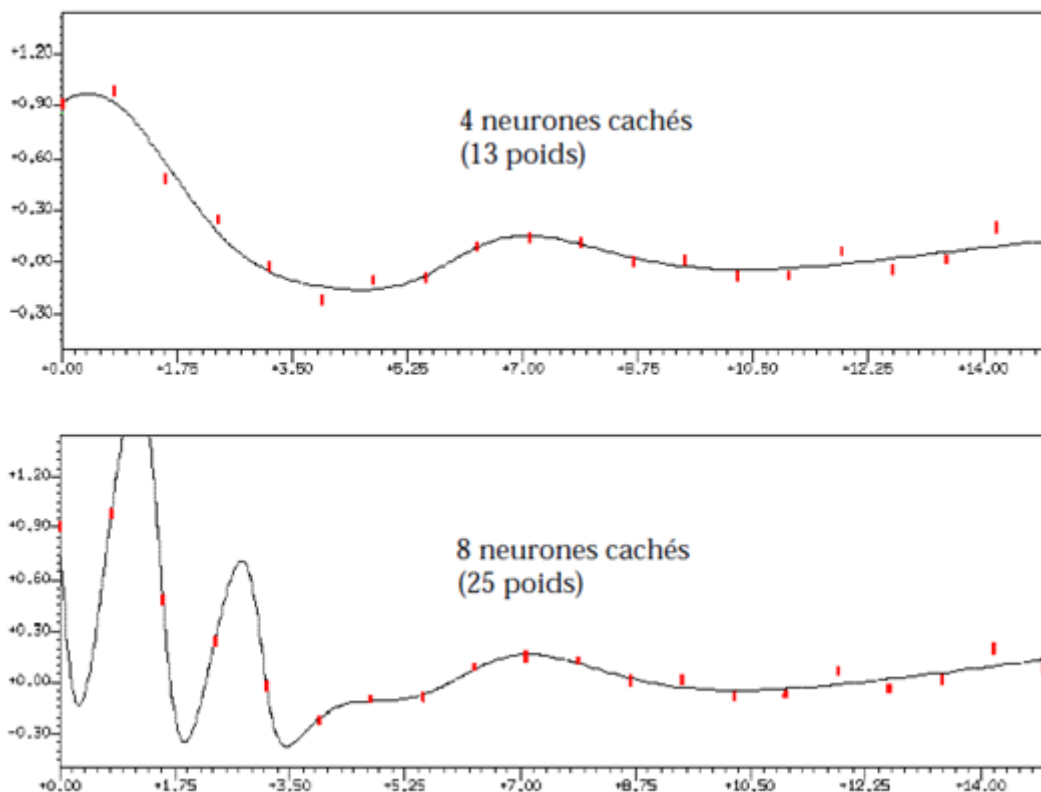


Figure 2.6 : Le « sur ajustement » : le réseau le plus parcimonieux (4 neurones cachés, soit 13 coefficients) produit un bien meilleur ajustement qu'un réseau trop riche en coefficient (8 neurones cachés, soit 25 coefficients).

Les grands domaines d'application des réseaux de neurones :

- **La régression non linéaire, ou modélisation de données statiques:** il existe une immense variété de phénomènes statiques qui peuvent être caractérisés par une relation déterministe entre des causes et des effets ; les réseaux de neurones sont de bons candidats pour modéliser de telles relations à partir d'observations expérimentales, sous réserve que celles-ci soient suffisamment nombreuses et représentatives.
- **La modélisation de processus dynamiques non linéaires:** modéliser un processus, c'est trouver un ensemble d'équations mathématiques qui décrivent le comportement dynamique du processus, c'est-à-dire l'évolution de ses sorties en fonction de celle de ses entrées ; c'est donc typiquement un problème qui peut être avantageusement résolu par un réseau de neurones, si le phénomène que l'on désire modéliser est non-linéaire. La prédiction de séries chronologiques (prédictions financières, prédiction de consommation, etc.) entre dans ce cadre.
- **La commande de processus:** commander un processus, c'est imposer à celui-ci un comportement défini à l'avance en fonction des signaux de commande ; l'ensemble commande + processus peut donc être considéré comme un système qui réalise une fonction (non linéaire) qu'un réseau de neurones peut approcher.
- **La classification :** supposons que l'on désire classer des formes en deux catégories, A ou B, en fonction de certaines caractéristiques de ces formes; on peut définir une fonction ϕ qui vaut +1 pour toutes les formes de la classe A et -1 pour toutes les formes de la classe

Les réseaux de neurones sont de bons candidats pour réaliser une approximation de cette fonction ϕ , et l'on peut démontrer que cette approximation constitue une estimation de la probabilité d'appartenance de la forme inconnue à la classe A. Les réseaux de neurones fournissent donc une information très riche, qui est loin d'être une simple réponse binaire.

Cette propriété remarquable (que les réseaux de neurones partagent avec d'autres classifieurs) n'est malheureusement pas mise à profit dans la plupart des applications.

6. L'apprentissage des réseaux de neurones formels:

Comme nous l'avons indiqué plus haut, l'apprentissage "supervisé", pour les réseaux de neurones formels, consiste à calculer les coefficients de telle manière que les sorties du réseau de neurones soient, pour les exemples utilisés lors de l'apprentissage, aussi proches que possibles des sorties "désirées", qui peuvent être la classe d'appartenance de la forme que l'on veut classer, la valeur de la fonction que l'on veut approcher ou de la sortie du processus que l'on veut modéliser, ou encore la sortie souhaitée du processus à commander. La plupart des algorithmes d'apprentissage des réseaux de neurones formels sont des algorithmes d'optimisation : ils cherchent à minimiser, par des méthodes d'optimisation non linéaire, une fonction de coût qui constitue une mesure de l'écart entre les réponses réelles du réseau et ses réponses désirées. Cette optimisation se fait de manière itérative, en modifiant les poids en

fonction du gradient de la fonction de coût : le gradient est estimé par une méthode spécifique aux réseaux de neurones, dite méthode de rétro propagation, puis il est utilisé par l'algorithme d'optimisation proprement dit. Les poids sont initialisés aléatoirement avant l'apprentissage, puis modifiés itérativement jusqu'à obtention d'un compromis satisfaisant entre la précision de l'approximation sur l'ensemble d'apprentissage et la précision de l'approximation sur un ensemble de validation disjoint du précédent. Contrairement à des affirmations maintes fois répétées, l'apprentissage des réseaux de neurones n'est pas spécialement lent: il existe des algorithmes d'optimisation non linéaire extrêmement rapides qui permettent de faire des développements industriels sur de simples PC. L'apprentissage des réseaux de neurones bouclés (pour réaliser des modèles dynamiques) est très semblable à celui des réseaux non bouclés.



Chapitre 3 :
Architecture des réseaux de neurones

1. Choix de l'architecture:

Dans un premier temps, nous parlerons de la démarche suivie quant au choix de l'architecture globale des réseaux en précisant les différents réglages relatifs à chaque réseau de neurone utilisé.

Nous aborderons ensuite la partie pratique où l'on utilisera les RNA pour la modélisation.

Il est avant tout nécessaire de préciser qu'il n'existe pas de méthode prédéfinie permettant de trouver le model neuronal optimal pour la résolution d'un problème d'ingénierie donné.

On peut toutefois résumer les principaux éléments à définir comme suit :

- Le type de réseau.
- La structure du réseau (nombre de couches cachées, nombre de neurones par couche cachée).
- Les fonctions d'activation.
- L'algorithme d'apprentissage.

1.1. Choix du type de réseau:

Les deux types de réseaux de neurones de type feedforward préconisés pour l'approximation de fonctions sont les Perceptron Multicouches (PMC) et les réseaux à Fonction Radiale de Base (RBF).

Nous avons choisi d'utiliser des réseaux PMC en raison de la nécessité d'utiliser des fonctions d'activation de type sigmoïde (alors que les fonctions utilisées dans les réseaux RBF sont de type gaussiennes) ainsi que pour pouvoir optimiser nos résultats en utilisant plus d'une couche cachée, chose impossible avec les réseaux à fonction radiale de base.

Il est également à noter que les perceptrons multicouches nécessitent un nombre de paramètres réduit par rapport aux RBF.

1.2. Choix de la structure du réseau:

Le choix de la structure d'un réseau de neurones se résume en la détermination de deux paramètres : le nombre de couches cachées et le nombre de neurones compris dans chaque couche.

La détermination du premier paramètre a été effectuée par expérimentation. En effectuant les premières simulations sur MATLAB à l'aide d'une seule couche cachée, les résultats obtenus étaient assez satisfaisants, mais nécessitaient pour certaine propriétés de grands nombres de neurones. Nous avons donc étendu notre architecture à deux couches cachées puis trois, ce qui nous a permis d'une part d'optimiser la mémoire utilisée (réduction du nombre de neurones) et d'autre part d'avoir une plus grande précision dans nos résultats.

Quant au nombre de neurones composants chaque couche cachée, toutes nos recherches bibliographiques nous ont conduits à la même conclusion, à savoir qu'il fallait procéder par tâtonnements afin de trouver le nombre optimal de neurones, garantissant des résultats d'une précision satisfaisante.

Nous avons utilisé une fonction qui entraîne directement plusieurs combinaisons et plusieurs architectures possibles pour nos réseaux de neurones. La fonction compare ensuite l'erreur moyenne de chacun des réseaux de neurones après une simulation et sauvegarde le réseau de neurones dont la valeur de l'erreur moyenne est la plus faible. Ce travail a été effectué pour chacune des variables traitées. Le temps de calcul est de l'ordre de quelques minutes (allant jusqu'à 20minutes) puisque l'ordinateur utilisé était rapide.

Notre fonction a donc effectué plus de 100 essais pour chaque propriété, afin de calculer des réseaux de neurones contenant au maximum 10 neurones pour chaque couche allant de une à trois couches.

L'erreur sur la simulation de chaque réseau est calculée par la méthode des moindres carrés (en anglais Mean Squared Error, fonction mse sur MATLAB) est ensuite sauvegardé. La comparaison entre ces valeurs nous fournira donc la combinaison optimale de neurones sur les différentes couches cachées de notre réseau.

L'algorithme utilisé est disponible en annexe ainsi que les scripts de simulation.

1.3. Choix des fonctions d'activation:

Dans le cadre d'une approximation de fonction non linéaire, les fonctions d'activation utilisées dans les couches cachées sont de type sigmoïde. Ceci a restreint notre recherche à deux fonctions : logarithme sigmoïde (logsig) et tangente sigmoïde (tansig).

Notre choix s'est porté sur la fonction tansig car elle produit des valeurs positives et négatives contrairement au logsig, ce qui permet d'avoir un apprentissage plus rapide.

Quant à la couche de sortie, la fonction d'activation utilisée est linéaire (purelin).

1.4. Choix de l'algorithme d'apprentissage:

Les algorithmes d'apprentissage utilisés pour la résolution de problèmes d'approximation ne sont en fait que des algorithmes d'optimisation, le but étant de trouver les valeurs optimales des poids synaptiques.

Nous avons utilisé dans notre étude l'un des algorithmes les plus utilisés pour ce type de problèmes qui est celui de retro propagation de l'erreur.

Ce processus itératif converge en fin de compte vers des erreurs très faibles, donnant des résultats satisfaisants, comme nous le verrons plus loin.

Il existe plusieurs classes d'algorithmes de retro propagation, selon la méthode d'optimisation. Pour les réseaux de taille modérée comme le notre, l'utilisation de

l'algorithme de Levenberg-Marquardt est préconisée, c'est donc sur celui-ci que notre choix s'est porté.

Nous présentons à présent les résultats obtenus pour la simulation des différentes propriétés.

2. Entraînement des réseaux de neurones pour le logiciel de calcul :

Fractions pétrolières issues du PB31 pour l'apprentissage et la simulation des RNA.

FP N°	Teb (°C)	SpGr	N	MM	Xp	Xn	Xa	ECN	kuop
1	68	0,677	1,3789	90,2	0,772	0,137	0,091	7,0	12,56
2	82	0,698	1,3906	95,5	0,717	0,165	0,118	7,4	12,34
3	96	0,712	1,3983	101,9	0,680	0,187	0,133	7,9	12,26
4	108	0,722	1,4038	107,8	0,653	0,205	0,143	8,3	12,22
5	119	0,734	1,4105	112,9	0,621	0,219	0,159	8,6	12,13
6	129	0,745	1,4167	117,5	0,593	0,232	0,176	9,0	12,05
7	139	0,754	1,4217	122,5	0,569	0,242	0,189	9,3	12,01
8	148	0,762	1,4261	127,1	0,548	0,251	0,201	9,6	11,97
9	157	0,768	1,4294	132,1	0,532	0,259	0,209	10,0	11,96
10	166	0,7735	1,4324	137,2	0,517	0,266	0,217	10,3	11,95
11	176	0,7785	1,4351	143,2	0,503	0,274	0,223	10,7	11,97
12	185	0,783	1,4376	148,7	0,491	0,280	0,229	11,1	11,98
13	194	0,787	1,4397	154,4	0,480	0,286	0,234	11,5	11,99
14	202	0,7915	1,4422	161,1	0,468	0,291	0,241	11,8	11,99
15	212	0,7955	1,4443	168,2	0,456	0,297	0,247	12,3	12,02
16	221	0,8	1,4467	174,6	0,444	0,301	0,255	12,7	12,02
17	230	0,8055	1,4498	181,1	0,430	0,304	0,266	13,2	12,01
18	239	0,812	1,4534	187,7	0,412	0,306	0,282	13,6	11,99
19	248	0,8185	1,4571	194,5	0,395	0,306	0,298	14,1	11,96
20	256	0,8245	1,4604	200,5	0,480	0,280	0,240	14,5	11,93
21	266	0,83	1,4635	208,6	0,473	0,282	0,245	15,0	11,93
22	277	0,8345	1,4659	217,9	0,472	0,282	0,246	15,6	11,94
23	288	0,84	1,4690	227,5	0,466	0,284	0,250	16,3	11,95
24	299	0,845	1,4717	237,4	0,461	0,286	0,253	17,0	11,95
25	310	0,851	1,4751	247,4	0,452	0,290	0,258	17,7	11,94
26	321	0,8595	1,4799	257,3	0,433	0,295	0,272	18,3	11,90
27	332	0,865	1,4830	268,1	0,425	0,299	0,275	19,1	11,90
28	344	0,8705	1,4860	280,4	0,419	0,303	0,277	19,9	11,90
29	356	0,8765	1,4894	293,0	0,410	0,308	0,281	20,8	11,89
30	367	0,882	1,4925	304,9	0,402	0,313	0,284	21,7	11,89
31	379	0,886	1,4947	318,9	0,400	0,319	0,280	22,7	11,91
32	390	0,8895	1,4965	332,2	0,398	0,325	0,276	23,6	11,93
33	400	0,895	1,4997	344,1	0,387	0,331	0,280	24,5	11,91

34	409	0,9	1,5025	355,0	0,378	0,336	0,284	25,2	11,90
35	423	0,9055	1,5056	373,4	0,371	0,346	0,281	26,6	11,91
36	434	0,911	1,5087	387,9	0,360	0,353	0,284	27,6	11,90
37	447	0,9155	1,5112	406,4	0,355	0,364	0,279	29,0	11,91
38	458	0,9205	1,5140	422,3	0,346	0,372	0,278	30,1	11,91
39	470,1	0,925	1,5165	440,7	0,339	0,383	0,274	31,5	11,91
40	483,7	0,9305	1,5196	462,0	0,329	0,395	0,271	33,1	11,91

FP N°	T_{eb} (°C)	SpGr	T_{eb} (°R)	Zc	BMCI	C/H
1	68	0,677	614,07	0,274	99,7	6,3
2	82	0,698	639,27	0,272	84,3	6,5
3	96	0,712	664,47	0,269	76,1	6,7
4	108	0,722	686,07	0,267	71,1	6,7
5	119	0,734	705,87	0,266	63,9	6,8
6	129	0,745	723,87	0,264	57,5	7,0
7	139	0,754	741,87	0,263	52,9	7,0
8	148	0,762	758,07	0,261	48,8	7,1
9	157	0,768	774,27	0,260	46,4	7,1
10	166	0,7735	790,47	0,258	44,3	7,2
11	176	0,7785	808,47	0,256	42,8	7,2
12	185	0,783	824,67	0,254	41,5	7,2
13	194	0,787	840,87	0,252	40,4	7,2
14	202	0,7915	855,27	0,251	38,8	7,2
15	212	0,7955	873,27	0,249	37,9	7,2
16	221	0,8	889,47	0,247	36,4	7,2
17	230	0,8055	905,67	0,245	34,1	7,2
18	239	0,812	921,87	0,243	31,1	7,3
19	248	0,8185	938,07	0,242	28,1	7,3
20	256	0,8245	952,47	0,240	25,3	7,4
21	266	0,83	970,47	0,238	23,2	7,4
22	277	0,8345	990,27	0,236	21,9	7,4
23	288	0,84	1010,07	0,234	20,0	7,4
24	299	0,845	1029,87	0,231	18,3	7,4
25	310	0,851	1049,67	0,229	15,9	7,5
26	321	0,8595	1069,47	0,227	12,0	7,6
27	332	0,865	1089,27	0,225	10,0	7,6
28	344	0,8705	1110,87	0,223	8,1	7,6
29	356	0,8765	1132,47	0,220	5,9	7,7
30	367	0,882	1152,27	0,218	3,8	7,7
31	379	0,886	1173,87	0,216	2,8	7,7
32	390	0,8895	1193,67	0,213	1,9	7,7
33	400	0,895	1211,67	0,212	0,5	7,7

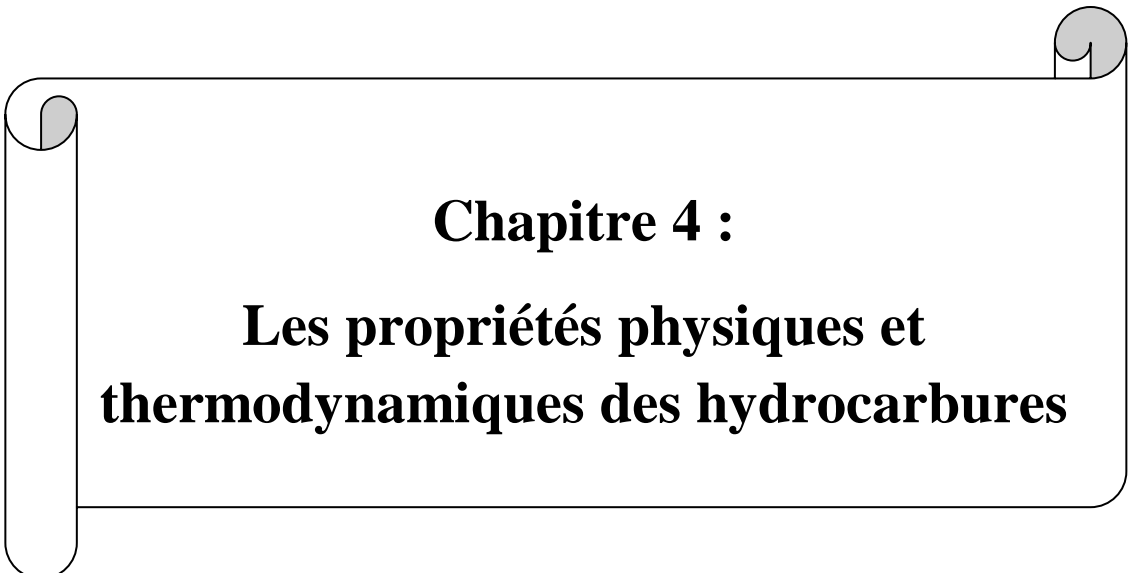
Chapitre 3

34	409	0,9	1227,87	0,210	0,0	7,8
35	423	0,9055	1253,07	0,208	0,0	7,8
36	434	0,911	1272,87	0,206	0,0	7,8
37	447	0,9155	1296,27	0,203	0,0	7,8
38	458	0,9205	1316,07	0,201	0,0	7,9
39	470,1	0,925	1337,85	0,199	0,0	7,9
40	483,7	0,9305	1362,33	0,195	0,0	7,9

FP N°	T _{eb} (°C)	SpGr	NO	Pc (atm)	Tc (K)	Vc (cm ³ /mol)	indice de cétane	point éclair (°C)	point aniline (°C)
1	68	0,677	57	30,8	509,8	376,5			
2	82	0,698	52	30,4	527,9	392,5			
3	96	0,712	49	29,3	544,3	416,2			
4	108	0,722	46	28,3	557,8	439,0			
5	119	0,734	44	27,6	570,8	456,7			
6	129	0,745	42	27,1	582,6	472,7			
7	139	0,754	40	26,4	593,8	491,3			
8	148	0,762	39	25,8	603,9	508,2			
9	157	0,768	38	25,1	613,4	527,9			
10	166	0,7735	37	24,4	622,7	548,6			
11	176	0,7785	36	23,5	632,7	573,4			
12	185	0,783	35	22,8	641,6	596,1		54	55
13	194	0,787	34	22,0	650,3	619,9		61	57
14	202	0,7915	33	21,5	658,3	639,8		68	60
15	212	0,7955	33	20,7	667,7	667,8		75	62
16	221	0,8	32	20,1	676,4	691,8	56	82	64
17	230	0,8055	32	19,6	685,4	714,4	58	89	66
18	239	0,812	31	19,1	694,7	735,4	58	96	67
19	248	0,8185	31	18,7	703,9	756,6	59	103	68
20	256	0,8245	30	18,4	712,2	775,0	60	110	70
21	266	0,83		17,9	721,8	802,1	60	116	70
22	277	0,8345		17,2	731,9	835,2	60	121	72
23	288	0,84		16,7	742,2	866,8	60	127	73
24	299	0,845		16,1	752,4	899,8	60	132	74
25	310	0,851		15,6	762,8	931,1	60	138	75
26	321	0,8595		15,3	774,1	957,2	60	145	76
27	332	0,865		14,8	784,3	990,0	59	153	78
28	344	0,8705		14,3	795,2	1027,5	59	161	79
29	356	0,8765		13,9	806,3	1064,5	58	169	80
30	367	0,882		13,5	816,5	1099,1	57	177	82
31	379	0,886		13,0	826,7	1142,3	56	185	84
32	390	0,8895		12,5	836,0	1183,0	56	193	85
33	400	0,895		12,2	845,3	1215,4	55	202	86

34	409	0,9		12,0	853,7	1245,1		214	87
35	423	0,9055		11,5	865,6	1296,8		225	88
36	434	0,911		11,2	875,4	1335,5		236	
37	447	0,9155		10,8	885,9	1384,5		250	
38	458	0,9205		10,5	895,1	1423,3		266	
39	470,1	0,925		10,2	904,6	1466,1		283	
40	483,7	0,9305		9,8	915,1	1511,3		302	

Tableau 3.1 : Fractions pétrolières pour l'apprentissage des réseaux de neurones des propriétés étudiées.



Chapitre 4 :
**Les propriétés physiques et
thermodynamiques des hydrocarbures**

i. Introduction:

A côté des méthodes expérimentales, certaines propriétés peuvent être estimées par des méthodes faisant appel à un raisonnement thermodynamique. Certaines autres font appel aux équations d'états, la loi des états correspondants et des méthodes empiriques telles que la méthode de contribution de groupes que nous présentons dans ce qui suit.

ii. Méthodes de calcul des propriétés des hydrocarbures:

ii.1. Les équations d'état [16]:

Les équations d'état représentent à l'aide d'une expression mathématique $f(P,V,T,n)=0$; le comportement des fluides réels. Leur emploi s'est longtemps heurté à un inconvénient pratique: les plus simples d'entre elles telle que l'équation de Van Der Waals, ou celle de Berthelot, ne s'adaptent qu'imparfaitement aux données expérimentales, et la complexité des calculs auxquels on était conduit par d'autres, plus satisfaisantes, leur faisait préférer les méthodes graphiques. Malgré que ce dernier problème ait été résolu par l'emploi des calculateurs numériques, les équations d'états présentent toujours des limites: la forme mathématique compliquée, le domaine d'application et la précision.

ii.2. Loi des états correspondants :

La loi des états correspondants peut s'énoncer comme suit: « les écarts aux lois du gaz parfait ne dépendent que des propriétés réduites ». Ou en d'autres termes, « tous les gaz qui auront la même température et pression réduites auront le même facteur de compressibilité ».

Cette loi s'applique en premier lieu aux corps purs, mais elle a été étendue aux mélanges. Elle est d'une valeur inestimable, cependant, elle présente quelques limites: on ne peut l'appliquer aux composés polaires. Il faut également rappeler que l'on ne dispose pas souvent des coordonnées critiques nécessaires soit qu'elles n'aient pas été mesurées, soit qu'elles se situent dans une zone de température où la molécule se dissocie.

ii.3. Méthode de contribution de groupe :

C'est l'une des méthodes de prévisions de propriétés physico-chimiques en plus des corrélations et des méthodes empiriques.

Les propriétés physiques déterminées à l'échelle macroscopique dépendent de la structure moléculaire à l'échelle microscopique. A titre d'exemple, la capacité calorifique dépend de la capacité de stockage d'énergie d'une molécule, conditionnée par sa structure moléculaire. Ainsi, chaque liaison, atome ou groupement d'atomes constitutif d'une molécule donnée, apporte sa contribution aux propriétés macroscopiques d'une substance donnée; et il y a additivité des contributions. En effet, toute propriété macroscopique d'une substance peut être calculée à partir des contributions des groupements chimiques constituant la molécule.

Les propriétés étudiées sont classées en trois grandes familles:

- Les propriétés thermiques : tension de vapeur.
- Les propriétés critiques : facteur de compressibilité critique.
- Les propriétés spécifiques au pétrole brut :
 - Point d'aniline.
 - Point éclair.
 - Indice d'octane.
 - Indice de cétane.
 - Indice de corrélation BMCI.
 - Rapport C/H.
 - Le facteur ECN.

1. La tension de vapeur:

1.1. Définition:

La tension de vapeur, à une température donnée, mesure la tendance des molécules à s'échapper d'une phase liquide pour engendrer un équilibre thermodynamique.

Il existe plusieurs diagrammes présentant les courbes de tension de vapeur des hydrocarbures purs jusqu'à huit à dix atomes de carbone. Quant aux hydrocarbures lourds, ils n'interviennent généralement que dans des mélanges très complexes et la connaissance de leurs courbes de tension de vapeur ne présentent pas le même intérêt que pour les hydrocarbures légers.

La tension de vapeur est exprimée en différentes unités : mmHg, atm, Pascal, psi (pound square inch), les équivalences de ces unités sont données dans des tables.

1.2. Mesure expérimentale de la tension de vapeur:

L'appareil classique [3] est représenté par la figure 6, il se compose :

- D'un manomètre (1) : c'est un tube en U gradué et rempli à une hauteur de 760 mmHg.
- D'une pompe à vide (2) primaire jusqu'à 10⁻² mmHg.
- D'un ballon tricol de 150 ml (3) sur lequel est placé un thermomètre gradué de 0 à 200°C, une ampoule à décanter qui sert à contenir la substance étudiée.
- D'un piège (4) qui sert à éviter le retour du mercure quand le vide est fait ainsi que la condensation des hydrocarbures dans le tube en U.
- D'un chauffe ballon électrique (5).

- D'une réserve à vide de 10 litres qui sert à éviter la montée brusque du mercure (6) pendant l'opération du vide.
- De deux robinets à 2 voies (7) et (8).
- D'un robinet à 3 voies (9).

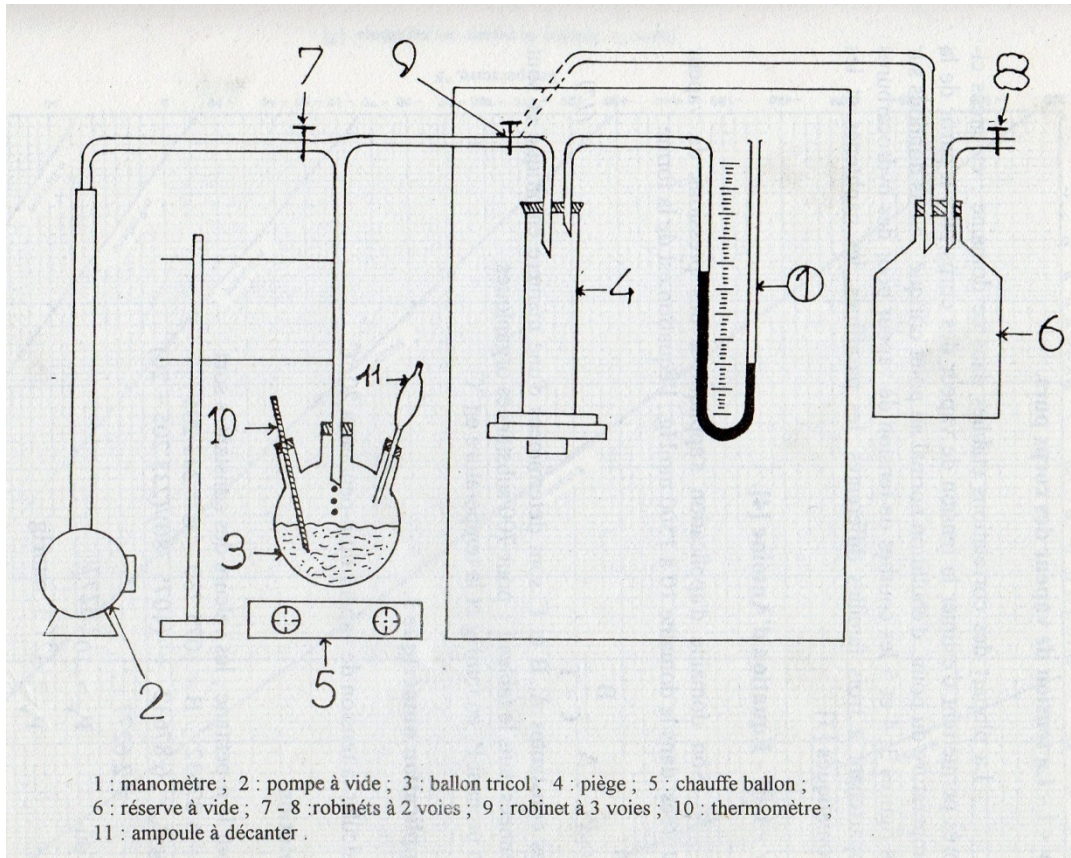


Figure 4.1 :Appareil de mesure de la tension de vapeur [27].

• **Méthode de mesure de la tension de vapeur:**

- 1- On démonte partiellement l'appareil et on élimine toutes traces du liquide précédent.
- 2- On met dans l'ampoule à brome le produit à étudier.
- 3- A l'aide de la pompe à vide, on assure un vide poussé ; on isole le système en fermant le robinet (7) placé au dessus du ballon et on coupe l'accès à la réserve par le robinet (9).
- 4- On augmente la température et on laisse le liquide tomber goutte à goutte sur le thermomètre entouré d'un manchon de coton, chaque goutte doit se vaporiser avant que la suivante ne tombe.

- 5- Pour chaque valeur de la température on lit une valeur de la tension de vapeur sur le manomètre en U. pour avoir la valeur de la tension de vapeur de la substance, la formule suivante est utilisée :

$$P_v = P_a - P_1 \quad (5)$$

avec : P_v : Tension de vapeur de la substance étudiée, en mmHg.

P_a : Pression atmosphérique en mmHg.

P_1 : pression lue sur le manomètre en U, en mmHg.

1.3. Méthodes d'estimation de la tension de vapeur:

a- La tension de vapeur des corps purs:

La plus part des corrélations établies dans ce domaine, et citées ci-après permettent d'estimer la tension de vapeur des corps purs à partir de la température du point d'ébullition normal critique.

Equation d'Antoine [5] :

Son domaine d'application s'applique à des pressions de vapeur saturées, dans le domaine 100 à 1500 mmHg, l'équation est de la forme :

$$\text{Log } P_v = A - B/(C+T) \quad (6)$$

Les constantes A, B et C sont déterminées d'une manière empirique et sont données pour 700 substances organiques.

En prenant P_v en mmHg et la température en °C.

Equation de Lee-Kesler [14] :

$$\text{Ln}(P_{vr}) = f^{(0)}(T_r) + \omega * f^{(1)}(T_r) \quad (7)$$

Avec:

$$f^{(0)}(T_r) = 5.92714 - \frac{6.09648}{T_r} - 1.28862 * \text{Ln}(T_r) + 0.16934 * T_r^6 \quad (8)$$

$$f^{(1)}(T_r) = 15.2518 - \frac{15.6875}{T_r} - 13.4721 * \text{Ln}(T_r) + 0.4357 * T_r^6 \quad (9)$$

ω : facteur acentrique.

Equation de Thek-Stiel, citée par Gary [12] :

$$\ln P_V = A * f(T_r) + B * \left[\frac{(T_r)^C - 1}{C} + 0.04 * \left(\frac{1}{T_r} - 1 \right) \right] \quad (10)$$

Où :

$$f(T_r) = 1.14893 - \frac{1}{T_r} - 0.11719 * T_r - 0.03174 * (T_r)^2 - 0.375 * \ln(T_r) \quad (11)$$

$$A = \frac{\Delta H_{vb}}{R * T_C * (1 - T_{br})^{0.375}} \quad (12)$$

$$B = 1.042 * \alpha_C - 0.46284 * A \quad (13)$$

$$C = 5.2691 + 2.0753 * A - 3.1738 * h \quad (14)$$

$$h = \frac{T_{br} * \ln P_C}{1 - T_{br}} \quad (15)$$

$$\alpha_C = \frac{0.3149 - f(T_{br}) - \ln\left(\frac{101.325}{P_C}\right)}{0.0838 * f(T_{br}) - \ln(T_{br})} \quad (16)$$

Avec

ΔH_{vb} : chaleur de vaporisation à la température d'ébullition en cal/mol

T en K et P en atm.

b- La tension de vapeur des mélanges de corps purs [17] :

Application de la règle d'additivité :

Qu'il s'agisse d'un mélange d'hydrocarbures purs connus ou de fraction pétrolière complexe, l'additivité des tensions de vapeurs vraies met en cause des molécules, par conséquent, il faut pondérer cette propriété en fonction des pourcentages moléculaires de chaque constituant, comme prévoit la loi de Raoult pour les solutions idéales :

$$(P_v)_{vraiemelange} = \sum [(P_v)_{vraie}]_i * X_i \quad (17)$$

X_i : fraction molaire du constituant i dans le mélange.

Tous les termes de P_v doivent être mesurés à la même température. La loi de Raoult est applicable, sans terme correctif, à tous les mélanges d'hydrocarbures pris dans des conditions suffisamment éloignées du point critique, ce qui est souvent le cas.

Dans le cas où de l'eau est injectée dans un système traitant des hydrocarbures et que cette eau est présente en phase liquide hétérogène, la loi d'additivité est particulièrement simplifiée :

$$(P_v)_{vraiemelange} = [(P_v)_{vraie}]_{eau} + [(P_v)_{vraie}]_{hydrocarbure} \quad (18)$$

Mesure de la tension de vapeur à partir de la composition :

Il est possible, connaissant l'hydrocarbure moyen représentant chaque famille d'hydrocarbure présent dans le mélange, paraffine, naphène ou aromatique d'écrire :

$$(P_v)_m = X_p * P_{vp} + X_a * P_{va} + X_n * P_{vn} \quad (19)$$

$(P_v)_m$: Tension de vapeur du mélange d'hydrocarbures.

X_p, X_a, X_n : étant la composition molaire pour les différentes familles.

P_{vp}, P_{va}, P_{vn} : étant la tension de vapeur des différents hydrocarbures représentant chaque famille.

c- La tension de vapeur des fractions pétrolières :

Détermination expérimentale de la tension de vapeur des produits pétroliers [17] :

Cet essai fait l'objet de la norme NF M07-007 et concerne uniquement les produits pétroliers légers. L'équipement utilisé comprend une cuve à échantillon, une chambre à air représentant environ quatre fois le volume de la cuve, un bain thermostatique à 100 °F et un manomètre. On remplit la cuve d'essence et on la connecte à la chambre à air. L'ensemble est agité convenablement et replace périodiquement dans le bain thermostatique. Le manomètre est branché au sommet de la chambre à air et donne une indication de pression qui se stabilise lorsque l'équilibre est atteint. Cette valeur limite de la pression mesure la tension de vapeur Reid (TVR) de l'essence, que l'on exprime en g/cm^2 ou en lb/sq.in (psi). Ainsi une essence 10 RVP a une tension de vapeur Reid de 10 lb/sq.in soit encore $703 g/cm^2$ ($1 Kg/cm^2 = 14.2 p.s.i.a$).

Cet essai est une réalisation très imparfaite de la mesure de la véritable tension de vapeur en physique, puisque le test s'effectue en présence d'air. Néanmoins, il existe une relation définie entre la valeur de la tension de vapeur Reid et celle de la tension de vapeur vraie.

Dans le cas de gaz de pétrole liquéfiés, l'essai est conduit d'une manière similaire, mais au départ la chambre à air est purgée par le gaz, de sorte que dans ces conditions, on obtient alors la mesure de la tension de vapeur vraie qui s'exprime en hectopièzes.

L'essai de la tension de vapeur est très important, car il indique d'une manière indirecte, la teneur en produits légers qui conditionnent la sécurité au cours du transport, les pertes au stockage et la volatilité des essences. Il est à noter que l'essai de tension de vapeur est donné aussi pour les kérosènes.

Mesure de la tension de vapeur par la règle d'additivité :

L'équation précédente (19) peut être appliquée si la composition de la fraction pétrolière est connue, ceci est possible par différentes méthodes : ndM, ndPA, Riazi-Daubert, El-Hadi-Chitour.

Mesure de la tension de vapeur à partir de la courbe de distillation ASTM :

Connaissant la courbe de distillation ASTM des points 5% et 15%, il est possible d'atteindre la tension de vapeur vraie(TVV) à partir de la tension de vapeur Reid (TVR) par simple lecture sur une abaque rapportée par Maxwell et établie par l'API (figure 4.2.1). L' API donne de même une abaque reliant la TVR à la TVV pour les pétroles bruts à différentes températures (figure 4.2.2).

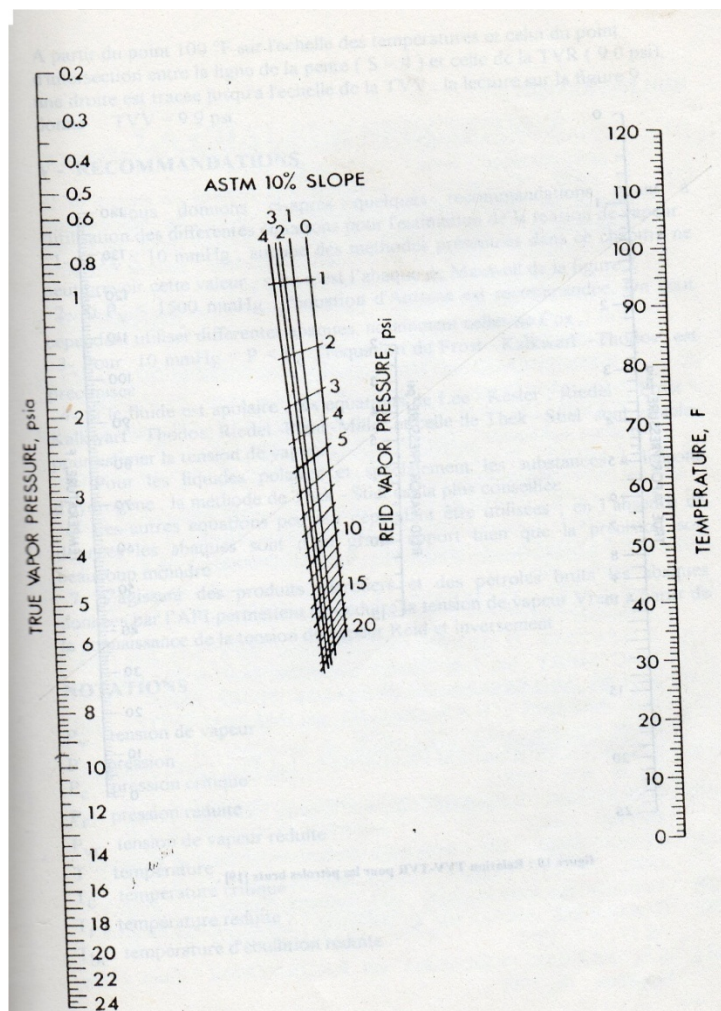


Figure 4.2.1 :Relation TVV-TV R pour les fractions pétrolières [28].

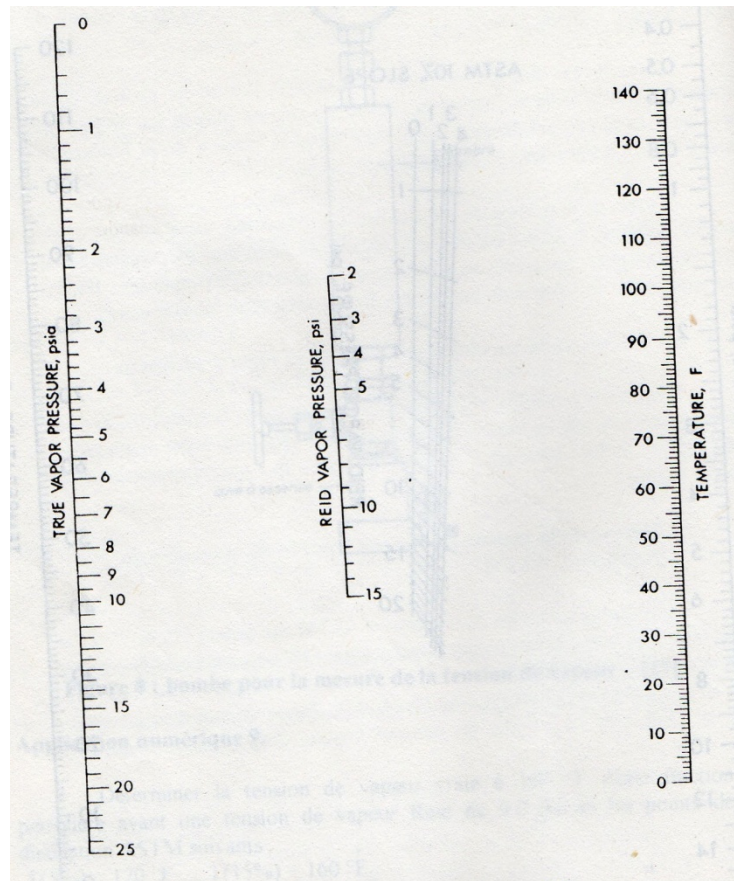


Figure 4.2.2 :Relation TVV-TV R pour les pétroles bruts [28].

➤ Calculs et résultats des réseaux de neurones :

FP	TV Expérience (Kg/Cm ²)	TV RNA	écart	TV Corrélation Lee-Kesler	écart	TV Contribution de groupe	écart
1	0,62	0,6031	0,017	0,682	0,062	0,72	0,1
2	0,51	0,525	0,015	0,400	0,110	0,58	0,07
3	0,43	0,4326	0,003	0,240	0,190	0,42	0,01
4	0,36	0,3484	0,012	0,142	0,218	0,35	0,01
5	0,3	0,2953	0,005	0,090	0,210	0,23	0,07
6	0,26	0,2547	0,005	0,056	0,204	0,12	0,14
7	0,22	0,2308	0,011	0,034	0,186	0,09	0,13
8	0,19	0,2206	0,031	0,024	0,166	0,04	0,15

Tableau 4.1 : Comparaison entre les méthodes de calcul de la tension de vapeur.

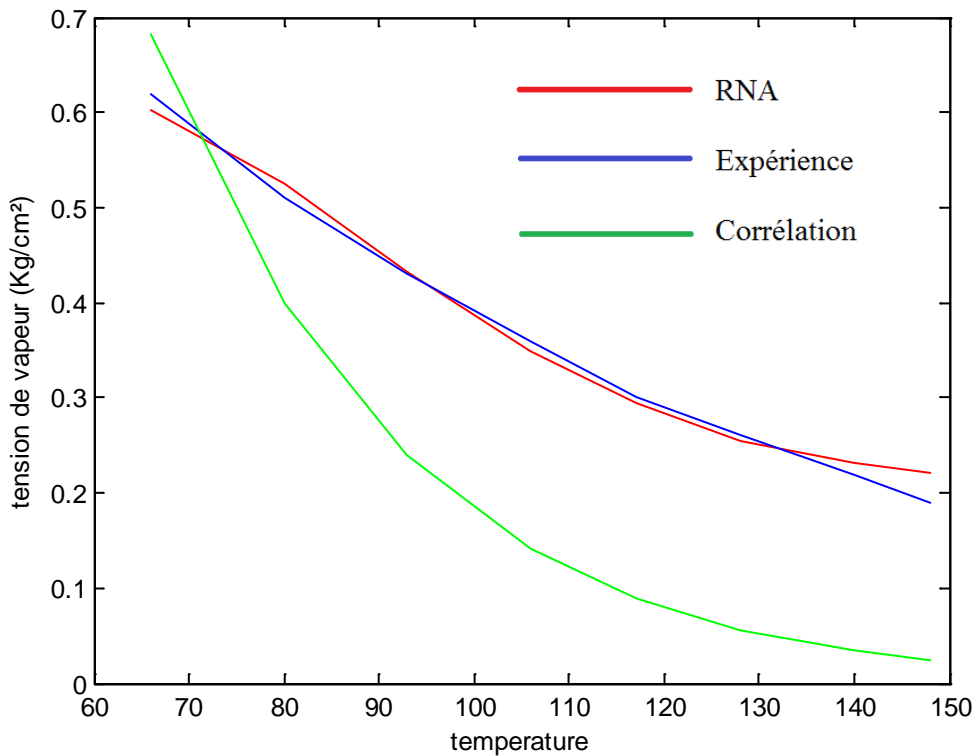


Figure 4.3 : variation de la tension de vapeur en fonction de la température d'ébullition.

La tension de vapeur est une propriété physique où il est possible de réaliser l'expérience, de trouver un fondement thermodynamique, et de faire appel à des corrélations empiriques. On voit un écart de calcul plus important pour les dernières fractions cela est dû aux faibles valeurs de la tension de vapeur. Cette propriété ne concerne que les premières fractions pétrolières et plus particulièrement les essences c'est pour cela que l'étude s'est concentrée dans cet intervalle.

2. Le facteur de compressibilité critique « Zc » :

Nous avons vu qu'un gaz parfait suit l'équation $P * V = n * R * T$. Cependant cette équation n'est pas toujours vérifiée pour les gaz réels, en particulier on attribue un terme correctif Z de sorte que l'on ait $P * V = Z * n * R * T$ ($Z = 1$ pour un gaz parfait) (20)

On appelle ce terme correctif Z "le coefficient de compressibilité du gaz".

Le facteur de compressibilité critique Zc est la valeur que prend le facteur de compressibilité à l'état critique de la matière et est donc défini comme $Zc = \frac{Pc * Vc}{R * Tc}$. (21)

Les valeurs de Zc sont comprises entre **0.23** et **0.30** et beaucoup d'auteurs ont travaillé pour corréler cette grandeur utilisée pour connaître l'écart du réel à celui de l'état parfait.

Corrélations :**Corrélation de Lydersen (1955) [19] :**

$$Z_C = \frac{1}{3.43 + 0.0067 * H_V^2} \quad (22)$$

H_v : chaleur de vaporisation molaire en kcal/g.mol**Equation d'Edmister (1958) [20] :**

$$Z_C = 0.371 - 0.0343 * \log \left[\frac{P_C}{\left(\frac{T_C}{T_b}\right) - 1} \right] \quad (23)$$

➤ Calculs et résultats des réseaux de neurones :

FP	Zc RNA	Zc moyen (corrélation)	Précision (%)
1	0,2735	0,2735	1,63E-02
5	0,2658	0,2657	3,10E-02
9	0,2596	0,2596	1,59E-02
13	0,2524	0,2524	7,94E-03
17	0,2451	0,2451	8,27E-03
21	0,2385	0,2383	7,48E-02
25	0,2292	0,2294	7,67E-02
29	0,2203	0,2205	9,61E-02
33	0,2116	0,2117	5,00E-02
37	0,2033	0,2028	2,36E-01

Tableau 4.2 : Comparaison entre les méthodes de calcul du facteur de compressibilité critique.

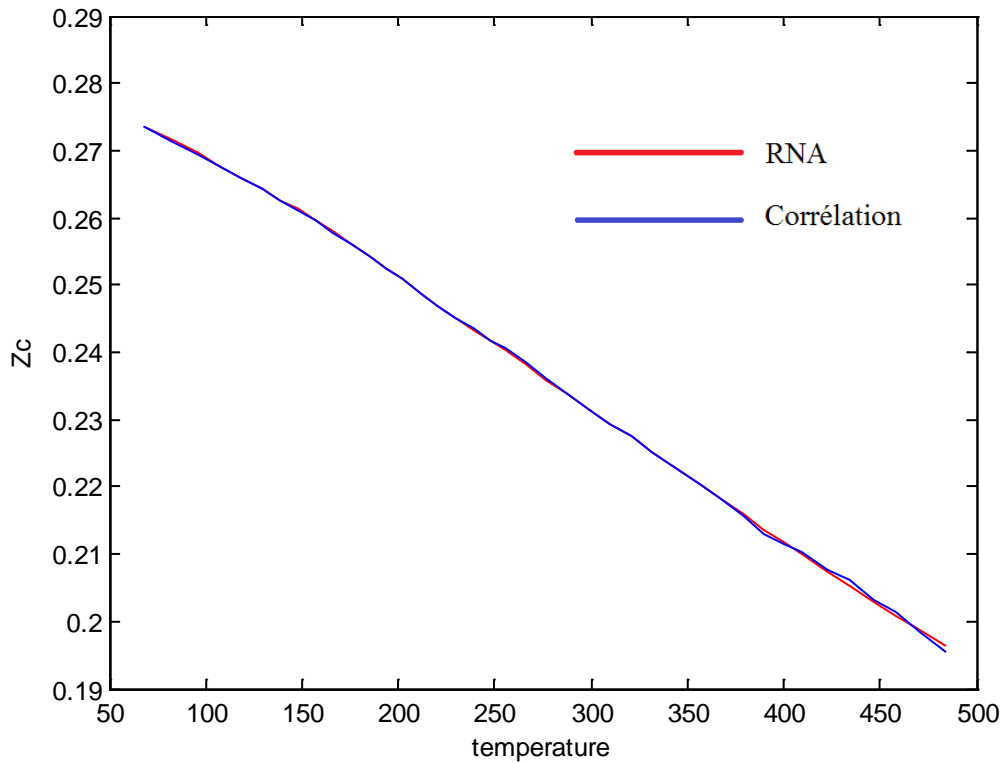


Figure 4.4 :.variation du facteur de compressibilité critique en fonction de la température d'ébullition.

L'erreur entre le RNA et les résultats de corrélations est faible. Mais les valeurs utilisées pour l'entraînement du réseau sont celles de la moyenne des meilleurs résultats de corrélations obtenues. Ceci est dû au manque de données expérimentales concernant le facteur de compressibilité critique.

3. L'indice d'octane :

Nombre d'une échelle conventionnelle, entre 0 et 100, exprimant la résistance à la détonation des carburants utilisés dans les moteurs à allumage commandé. L'indice d'octane d'un carburant est déterminé en comparant, dans un moteur monocylindre à compression variable, sa tendance à la détonation avec celles de mélanges de référence d'indices d'octane connus. Les carburants de référence sont deux hydrocarbures purs choisis pour leur comportement extrême au point de vue détonation : l'heptane normal, très détonant et affecté conventionnellement d'un indice d'octane égal à 0, et un iso-octane, le triméthyl 2-2-4 pentane, réfractaire à la détonation et affecté d'un indice d'octane égal à 100. Il existe plusieurs méthodes d'essai; l'indice d'octane donné doit donc être accompagné de la référence à la méthode utilisée : recherche, moteur, distribution.

Chaque moteur nécessite un carburant ayant un certain indice d'octane minimum pour fonctionner correctement. Un carburant dont l'indice d'octane est trop faible a tendance à provoquer une combustion trop brutale ; il risque aussi de s'enflammer spontanément lors de

la compression des pistons dans les cylindres du moteur. Les conditions anormales de la combustion fatiguent alors la bielle et le vilebrequin et provoquent le cliquetis du moteur. En revanche, on peut employer sans problème un carburant dont l'indice d'octane est plus élevé que celui pour lequel le moteur a été conçu. Plus le taux de compression du moteur est élevé, plus la température atteinte lors de la compression du gaz est importante, meilleur est le rendement du moteur et plus l'indice d'octane doit se rapprocher de 100. L'essence ayant un indice d'octane de 95 (par exemple, le sans-plomb SP 95) convient aux moteurs ayant un taux de compression allant jusqu'à 12 : 1 [dans lesquels le volume des cylindres est divisé par 12 entre la position basse et la position haute des pistons], c'est-à-dire à la plupart des moteurs actuels d'automobiles à essence.

➤ **Calculs et résultats des réseaux de neurones :**

FP	NO expérience	NO RNA	Ecart	Précision(%)
1	57	57,0	0,0	0,01
2	52	53,6	1,6	2,92
5	44	43,8	0,2	0,42
6	42	41,9	0,1	0,16
9	38	37,8	0,2	0,47
10	37	36,8	0,2	0,57
13	34	34,2	0,2	0,68
14	33	33,5	0,5	1,51
17	32	31,7	0,3	0,82
18	31	31,2	0,2	0,56

Tableau 4.3 : Comparaison entre les méthodes de calcul de l'indice d'octane.

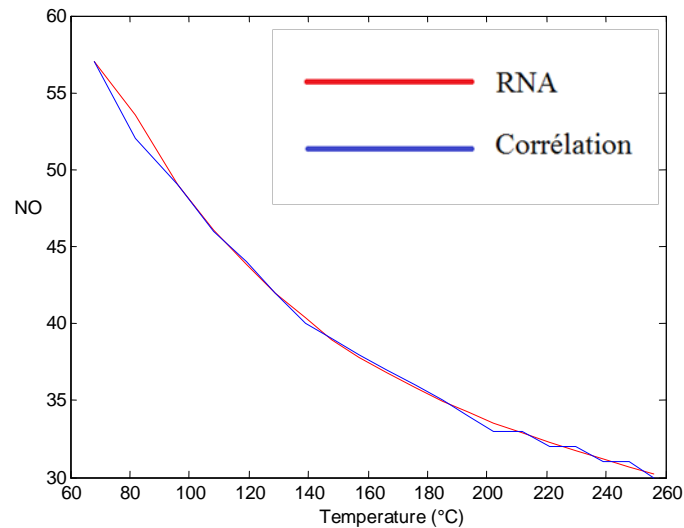


Figure 4.5 : variation de l'indice d'octane en fonction de la température d'ébullition.

L'indice d'octane, étant spécifique que pour des fractions essences, son calcul et l'entraînement des réseaux de neurones sont limités pour les fractions légères de densité inférieure à 0.82 correspondant à une température de 250°C (valeur maximale pour le rendement d'une coupe essence américaine). La précision est en moyenne de 1.5% ce qui explique la fiabilité du calcul par réseau de neurone malgré le manque de corrélation concernant cette propriété essentielle pour l'évaluation de la performance d'une essence et pour son bon traitement par reforming catalytique.

4. Le nombre de Cétane [6]:

L'indice de cétane est au gas-oil ce que le nombre d'octane est à l'essence.

C'est un critère de qualité de combustion de gas-oil dans le moteur diesel.

Le cycle du moteur diesel est différent de celui du moteur à essence par le fait qu'au cours du premiers temps, il y'a aspiration d'air seulement et non pas du mélange carburé, le second temps il est caractérisé pas la compression de l'air et l'injection progressive du combustible. Ce dernier se réchauffe et lorsqu'il atteint sa température d'auto-inflammation, il s'enflamme spontanément.

Au cours du troisième temps s'effectue la détente suivie de l'échappement des gaz de combustion. On a alors défini la notation de délai d'allumage qui mesure le temps écoulé entre le moment où la soupape de l'injecteur s'ouvre et fait pénétrer le combustible dans la chambre et celui ou se produit le début de la combustion. Ce délai d'allumage est caractéristique des qualités du combustible puisqu'il tient compte à la fois de la température d'auto-inflammabilité et des propriétés techniques du carburant ainsi que des conditions de transfert de chaleur inhérentes au moteur : turbulence.

Le délai d'allumage ne doit pas être très court pour éviter que le gas-oil s'enflamme devant l'injecteur qui chauffe et se cokéfie. Il ne doit pas être non plus trop long car dans ces conditions, les gouttelettes de combustible traverseraient la chambre sans s'enflammer pour s'écraser ensuite sur les parois chaudes en y laissant des dépôts.

On définit alors le nombre de cétane d'un gas-oil comme étant égal à X, si dans le moteur standard il a un délai d'allumage équivalant à celui d'un mélange de X parties en volume de cétane, affecté d'un indice 100 et de (100-X) parties en volume d'alphaméthyl-naphtalène affecté d'un indice nul.

Le moteur standard est un **moteur CFR particulier**, tournant à un régime de 900 tr/mn et permet de mesurer le délai d'allumage en degré du vilebrequin.

Les chercheurs ont proposé une relation simple entre l'indice de cétane et la nature chimique du gas-oil en caractérisant ce dernier par deux propriétés facilement mesurables: la densité mesurée en °API et le point d'aniline exprimé en °F.

L'indice Diesel I.D. est ainsi défini par :

$$I.D. = (PA * d) / 100 \quad (24)$$

PA : point d'aniline.

L'indice de cétane est relié à l'indice diesel par une courbe expérimentale.

La mesure de l'indice de cétane sur moteur CFR n'est pas pratiquée de façon aussi courante que la détermination des indices d'octane. De nombreux laboratoires ont en effet renoncé à s'équiper avec un appareillage coûteux pour une procédure longue, délicate et peu précise. Pour obtenir cependant une identification de la tendance à l'auto-inflammation des gazoles, on a proposé des formules utilisant des caractéristiques aisément mesurables.

La société Ethyl qui publie chaque année un descriptif des gazoles commerciaux en Europe, a proposé une formule de calcul de l'indice de cétane.

$$IC = 3.728 \left(\frac{API}{10} \right)^{0.832} * \left(\frac{T_{mav}(^{\circ}F)}{100} \right)^{0.919} \quad (25)$$

IC : indice de cétane ;

API : densité en degrés API ;

Tmav : température meanaverage ;

➤ Calcul et résultats des réseaux de neurones :

FP	IC expérience	IC RNA	écart	Précision(%)
16	56	56,62	0,62	1,1
19	59	58,72	0,28	0,5
22	60	60,05	0,05	0,1
25	60	59,51	0,49	0,8
28	59	59,07	0,07	0,1
31	56	57,98	1,98	3,4
33	55	56,56	1,56	2,7

Tableau 4.4 : Comparaison entre les méthodes de calcul du nombre de cétane.

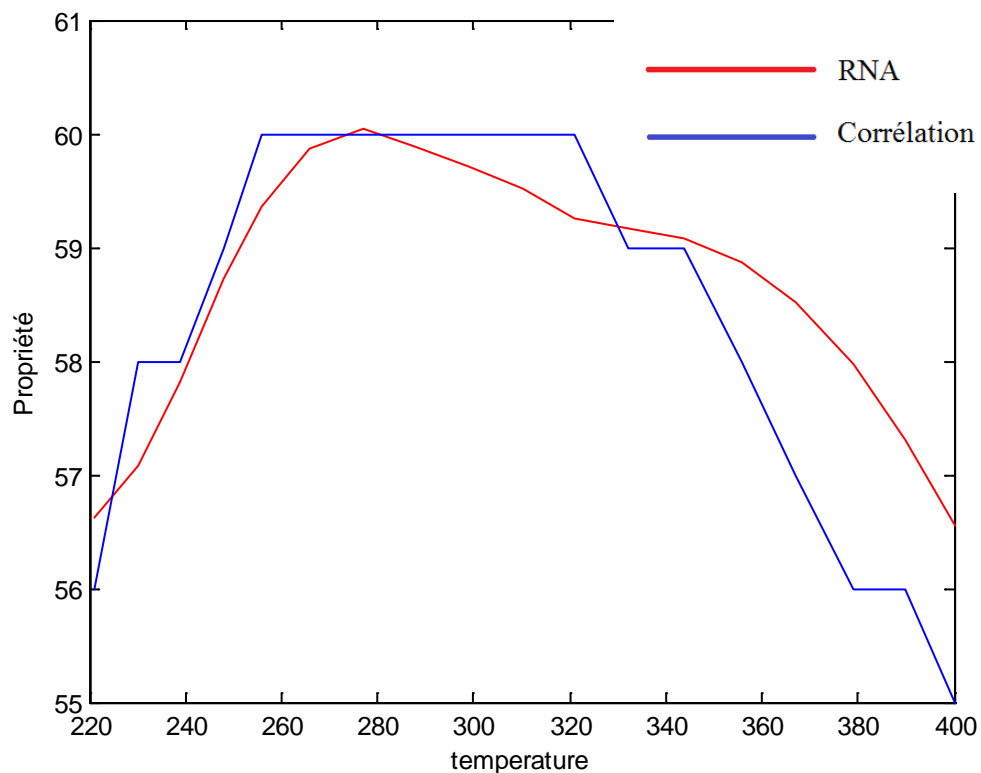


Figure 4.6 : variation de l'indice de cétane en fonction de la température d'ébullition.

Les valeurs de la simulation sont relativement éloignées des valeurs expérimentales. Ce qui est montré sur la figure ci-dessus. Nous avons changé la valeur du ratio (entre le training la validation et le testing de 70% 15% 15 à 60% 20% 20% respectivement) spécialement pour l'indice de cétane ce qui a donné la simulation suivante :

IC expérience	IC Ethyl	Ecart	IC corrélation par I.D	Ecart	IC RNA	Ecart
56	49,9	6,05	48,5	7,49	56,6	0,62
58	50,5	7,48	50,3	7,72	57,1	0,92
58	50,8	7,18	51,7	6,26	57,8	0,18
59	51,0	7,97	53,0	5,96	58,7	0,28
60	51,1	8,89	54,0	5,97	59,4	0,63
60	51,6	8,43	55,2	4,77	59,9	0,14
60	52,3	7,65	56,4	3,57	60,0	0,05
60	52,8	7,18	57,4	2,58	59,9	0,11
60	53,3	6,67	58,5	1,53	59,7	0,29
60	53,5	6,48	59,5	0,47	59,5	0,49
60	53,0	7,02	60,4	0,41	59,3	0,74
59	53,1	5,89	61,7	2,71	59,2	0,18
59	53,3	5,69	63,3	4,28	59,1	0,07
58	53,3	4,72	64,8	6,82	58,9	0,87
57	53,2	3,82	66,2	9,21	58,5	1,51
56	53,6	2,45	68,0	12,01	58,0	1,97
56	53,9	2,11	69,7	13,67	57,3	1,31
55	53,5	1,53	70,7	15,68	56,6	1,56

Tableau 4.5 : Comparaison entre les méthodes de calcul du nombre de cétane.

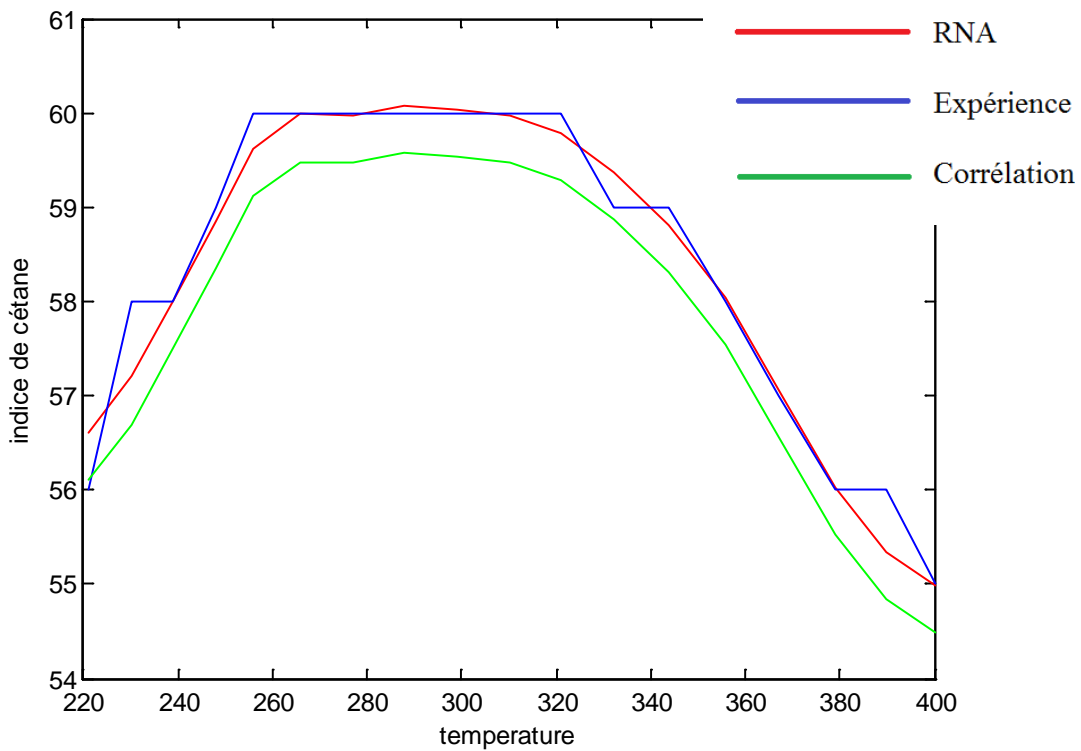


Figure 4.7 : variation de l'indice de cétane en fonction de la température d'ébullition.

Nous remarquons que les résultats sont bien plus précis avec les changements apportés. Les courbes de variations entre les valeurs expérimentales et celles calculées par le nouveau réseau de neurones artificiels sont plus cohérentes et on voit une bonne interpolation.

5. Le nombre de carbone équivalent :

Le nombre de carbone équivalent est une notion caractérisant les fractions pétrolières étroites. Ou en anglais « Equivalent CarbonNumber : ECN ». Il signifie directement le nombre d'atomes de carbone moyen des hydrocarbures constituant la fraction.

Corrélation pour les fractions étroites:

$$ECN = \exp(a + b * T_{eb} + c * SpGr + d * T_{eb} * SpGr) * T_{eb}^e * SpGr^f \quad (26)$$

$$a = 3.65940297$$

$$b = 0.00323055$$

$$c = -4.6164464$$

$$d = 0.00050436$$

$$e = 0.23381917$$

$$f = 2.98735242$$

➤ **Calculs et résultats des réseaux de neurones :**

FP	ECN (corrélation)	ECN RNA	Précision(%)
1	7,03	7,04	0,15
5	8,63	8,63	0,08
9	9,96	9,96	0,01
13	11,49	11,51	0,10
17	13,18	13,18	0,02
21	15,01	15,02	0,09
25	17,66	17,66	0,03
29	20,82	20,82	0,04
33	24,45	24,46	0,01
37	28,97	28,97	0,00

Tableau 4.6 : Comparaison entre les méthodes de calcul du nombre de carbone équivalent.

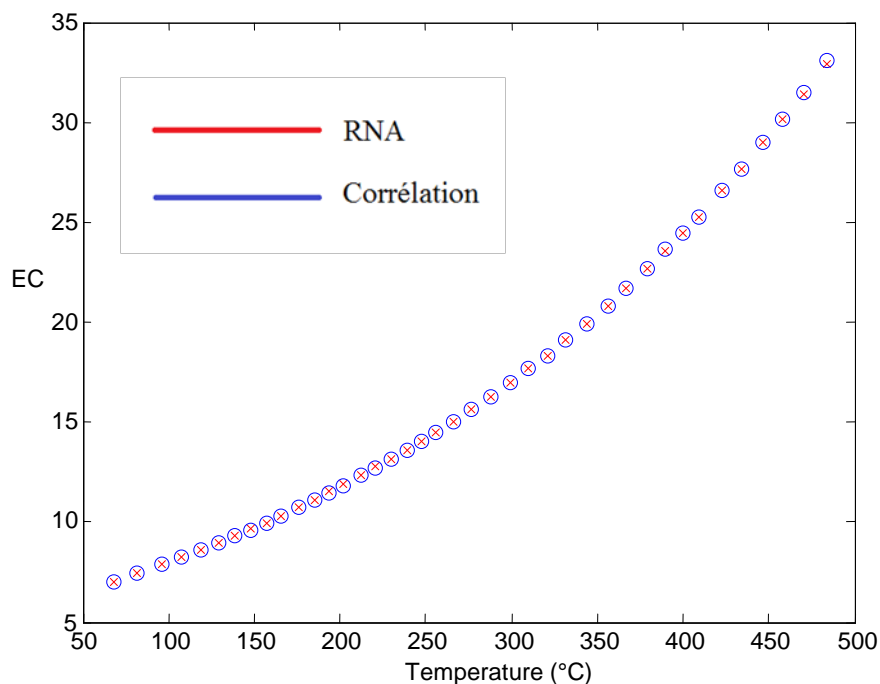


Figure 4.8 :.variation de l'ECN en fonction de la température d'ébullition.

Les données utilisées pour l'entraînement ont été calculées par corrélations. Nous n'avons pas trouvé de valeurs expérimentales pour des fractions pétrolières dans la littérature. C'est pourquoi nous avons utilisé la valeur moyenne de l'Equivalent carbonnumber pour l'entraînement du réseau de neurones. Ainsi l'erreur donnée ici est celle de l'écart du réseau par rapport à celle calculée par les corrélations qui ont fait leurs preuves et qui ont été conseillées par les auteurs.

6. Le point d'aniline :

6.1. Définition :

Le point d'aniline d'un hydrocarbure ou d'une fraction pétrolière est défini comme étant la température minimale à laquelle deux volumes égaux d'aniline ($C_6H_5NH_2$) et d'hydrocarbure sont miscibles (formant une seule phase).

Le point d'aniline sert d'approximation raisonnable de l'aromaticité d'une fraction pétrolière.

6.2. Détermination du point d'aniline :

Deux volumes égaux d'aniline et d'hydrocarbure sont mélangés dans un tube à essais et chauffé jusqu'à ce que la phase devienne homogène. Le chauffage est alors arrêté. La température à laquelle les deux constituants se séparent est enregistrée comme étant le point d'aniline.

a- Loi d'additivité :

$$PA = PA(\text{paraffine}) * Xp + PA(\text{naphtène}) * Xn + PA(\text{aromatique}) * Xa \quad (27)$$

b- Corrélation pour les corps purs :

Corrélation de Dermoune - Chitour [21] :

Pour des $T_{eb} < 185^{\circ}\text{C}$:

- Paraffines: $35 < T_{eb} < 175^{\circ}\text{C}$

$$PA = -5.29054623844 * 10^{(-9)} * T_{eb}^5 + 2.89268479613 * 10^{(-6)} * T_{eb}^4 - 0.000600789639554 * T_{eb}^3 + 0.0594427801177 * T_{eb}^2 - 2.77262583657 * T_{eb} + 116.988367606 \quad (28)$$

- Naphtènes: $50 < T_{eb} < 185^{\circ}\text{C}$

$$PA = -3.13913913596387 * 10^{(-8)} * (T_{eb})^5 + 1.85889852732 * E - 5 * (T_{eb})^4 - 0.00424060550941 * (T_{eb})^3 + 0.450993019136 * (T_{eb})^2 - 22.249927147 * (T_{eb}) + 421.42192105 \quad (29)$$

- Aromatiques: $80 < T_{eb} < 185^{\circ}\text{C}$

$$PA = -2.28248909658 * 10^{(-7)} * (T_{eb})^4 + 0.000132767370641 * (T_{eb})^3 - 0.0285984706283 * (T_{eb})^2 + 2.74435945329 * T_{eb} - 112.168843723 \quad (30)$$

Corrélation de Bouamra - Chitour [10]:

(Teb et PA en Kelvin) / Err < 2%

- Paraffines :

$$PA = -14.60 + 0.191 * Teb + 1.218 * 10^{-3} * d \quad (31)$$

- Naphtènes :

$$PA = 3914.8 + 0.586 * Teb - 5068.5 * d \quad (32)$$

- Oléfines :

$$PA = -176.1 + 0.193 * Teb + 174.63 * d \quad (33)$$

- Aromatiques :

$$PA = -247.61 + 0.779 * Teb - 247.29 * d \quad (34)$$

c- Corrélation pour les fractions pétrolières :

Corrélation de R.P. Walsh et J.V. Mortier [18]:

$$PA = -204.9 - 1.498 * (NC50) + 100.5 * NC50^{1/3}/d \quad (35)$$

$$PA = 68.25 - 1.498 * (N50\%) + 100.5 * N50\%^{1/3}/d \quad (36)$$

Corrélation de Robert :

$$PA = (M - 1705.45 * n - 792.93 * d + 3287)/4.553 + 273.15 \quad (37)$$

➤ **Calculs et résultats des réseaux de neurones:**

PA expérience (°C)	PA RNA	Ecart	PA Walsh	Ecart	PA Robert	Ecart	PA Corrélation Bouamra-Chitour	Ecart
55	55,04	0,04	64,8	9,8	79,6	24,56	72,9	17,9
64	64,01	0,01	69,5	5,5	78,9	14,86	79,8	15,8
70	69,53	0,47	70,5	0,4	75,1	5,14	86,5	16,5
74	73,97	0,03	75,3	1,3	75,4	1,43	94,7	20,7
79	78,78	0,22	78,3	0,7	75,0	3,95	103,3	24,3
85	85,17	0,17	83,8	1,2	79,2	5,83	112,1	27,1

Tableau 4.7 : Comparaison entre les méthodes de calcul du point d'aniline.

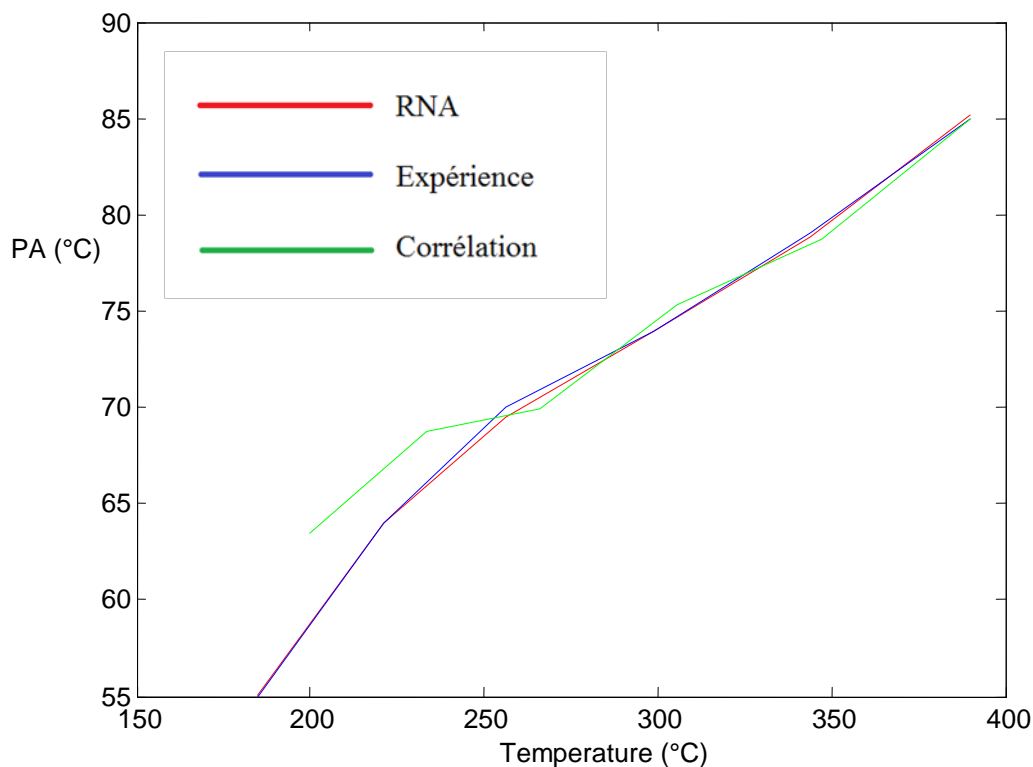


Figure 4.8 : variation du point d'aniline en fonction de la température d'ébullition.

Il existe beaucoup de valeurs pour le point d'aniline dans la littérature. Ces valeurs ont été prises pour l'entraînement et ont donné le réseau de neurones dont la précision est très acceptable. S'agissant de fractions pétrolières (à l'inverse de corps purs), nous parlons plus de plage de température pour le point d'aniline. Cette propriété va nous donner la répartition de la solubilité en démarrant avec les aromatiques pour arriver aux paraffines.

7. L'indice de corrélation « BMCI » :

L'indice de corrélation « **BMCI** » a été développé par Smith [22] et égal à zéro pour les paraffines et à 100 pour le benzène.

Sa relation est exprimé par :

$$BMCI = -\frac{48640}{T_{eb}} + \frac{473.3}{S} - 456.8 \quad (38)$$

S: specific gravity 60°F/60°F.

T_{eb} ou T_{mav} : température d'ébullition moyenne de la fraction en K.

Il est possible de considérer un brut comme paraffinique, mixte ou aromatique en utilisant les valeurs du BMCI calculées à partir de ses propriétés physiques.

Les grandes valeurs indiquent une grande proportion d'aromatiques alors que les valeurs proches de zéro indiquent une tendance plutôt paraffine.

Il existe une autre formule pour calculer l'indice de corrélation des résidus lourds et visqueux de cracking [23]:

$$BMCI = 439.9 * S - 333.8 \quad (39)$$

Corrélation de Skander–Chitour [24] :

En se basant sur les méthodes de contribution de groupe et sur les données du D.I.P.P.R et de l'API projet 44 pour les différentes familles d'hydrocarbure, Chitour et Coll. proposent une corrélation de la forme suivante :

$$a + \frac{b}{1+(\frac{N}{c})^d} \quad (40)$$

a, b et c sont des constantes qui dépendent de la famille chimique.

n-Paraffines:	Naphtènes:	Aromatiques:
a= 0.040818064	a= 0.24498191	a= 0.28384193
b= 0.23987703	b= 0.033128033	b= 0.016287165
c= 1.915053	c= 8.9449987	c= 7.6408208
d= - 1.1293724	d= - 2.1176672	d= 2.7840145

➤ **Calculs et résultats des réseaux de neurones :**

FP	BMCI Smith	BMCI RNA	Ecart
1	99,67	99,33	0,349
5	63,94	63,94	0,000
9	46,36	46,45	0,089
13	40,44	40,44	0,005
17	34,09	34,35	0,266
21	23,20	23,51	0,314
25	15,94	15,64	0,299
29	5,86	5,20	0,659
33	0,50	1,26	0,7578
37	0,00	-0,08	0,0762

Tableau 4.8 : Comparaison entre les méthodes de calcul de l'indice de corrélation BMCI.

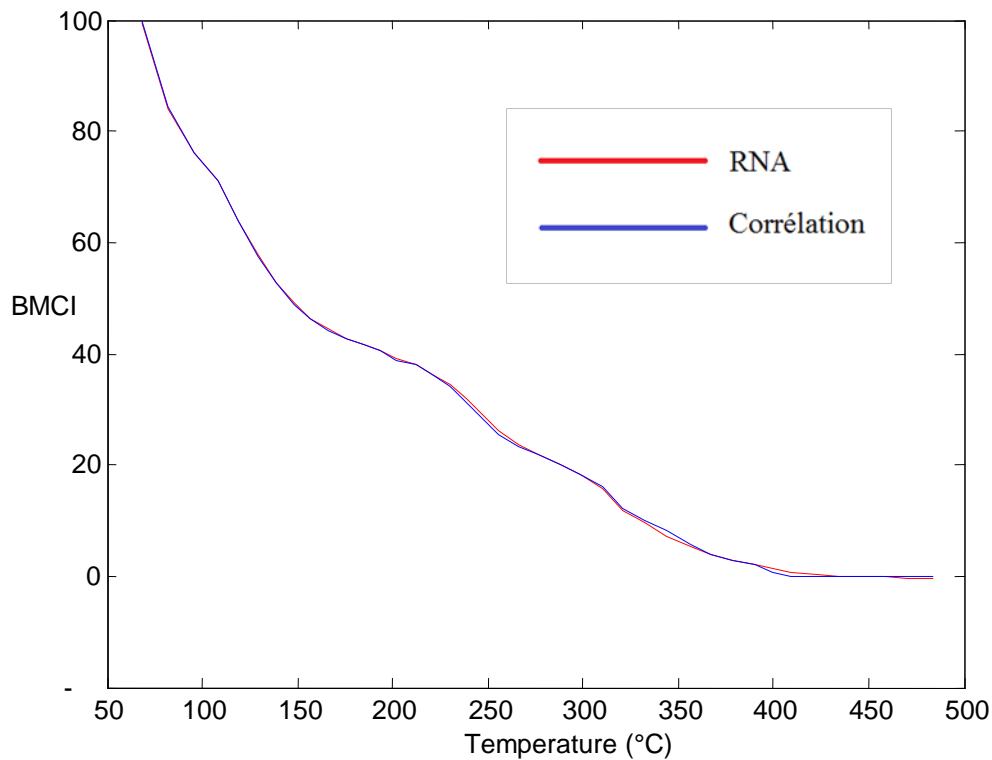


Figure 4.9 : variation du facteur de corrélation en fonction de la température d'ébullition.

L'écart est quasiment nul pour toutes les fractions pétrolières utilisées pour la simulation du réseau de neurones. Les valeurs utilisées pour l'entraînement sont celles de la corrélation de Smith.

8. Le rapport « C/H » :

La valeur du rapport C/H est le nombre d'atome de carbone sur le nombre d'atomes d'hydrogène. Les molécules paraffiniques ont un rapport C/H faible à l'inverse des formes aromatiques. Il est très utile de connaître sa valeur pour les phénomènes de combustion et l'estimation des quantités d'air nécessaire à la combustion [6].

Corrélations pour les mélanges de corps purs et fractions pétrolières:

Corrélation de Riazi et Daubert [18]:

C/H massique en fonction de T_{eb} et de la SpGr :

- Pour $70.0 < M < 300.0$ et $26.7 < T_{eb} < 343.5^{\circ}C$:

$$\frac{C}{H} = 17.220 * EXP(8.25 E - 3 * Teb + 16.94 * S - 6.94 E - 3 * Teb * S) * Teb^{-2.725} * S^{-6.788}$$

(41)

- Pour $300.0 < M < 600.0$ et $343 < T_{eb} < 538^{\circ}\text{C}$:

$$\frac{C}{H} = 3.4081 * 10^{-22} * EXP(4.684 * 10^{-3} * T_{eb} + 103.12 * I - 0.0152 * T_{eb} * I) * T_{eb}^{-0.786} * I^{-21.567} \quad (42)$$

$$I = 2.341 * 10^{-2} * exp(6.461 * 10^{-4} * T_{eb} + 5.144 * S - 3.289 * 10^{-4} * T_{eb} * S) * T_{eb}^{-0.407} * S^{-3.333} \quad (43)$$

Corrélation de Huggins [24]:

$$C/H = \frac{100}{2.55312 * K_{uop} - 0.0022248 * T_{eb} - 14.77732618} \quad (44)$$

T_{eb} : température d'ébullition en °R

K_{uop} : facteur de caractérisation

➤ **Calculs et résultats du réseau de neurones :**

FP	C/H Huggins	C/H RNA	Ecart
1	6,28	6,29	0,0051
5	6,84	6,84	0,0004
9	7,13	7,13	0,0004
13	7,16	7,16	0,0006
17	7,21	7,21	0,0006
21	7,40	7,40	0,0000
25	7,48	7,48	0,0002
29	7,65	7,65	0,0001
33	7,73	7,73	0,0001
37	7,84	7,84	0,0002

Tableau 4.9 : Comparaison entre les méthodes de calcul du rapport C/H.

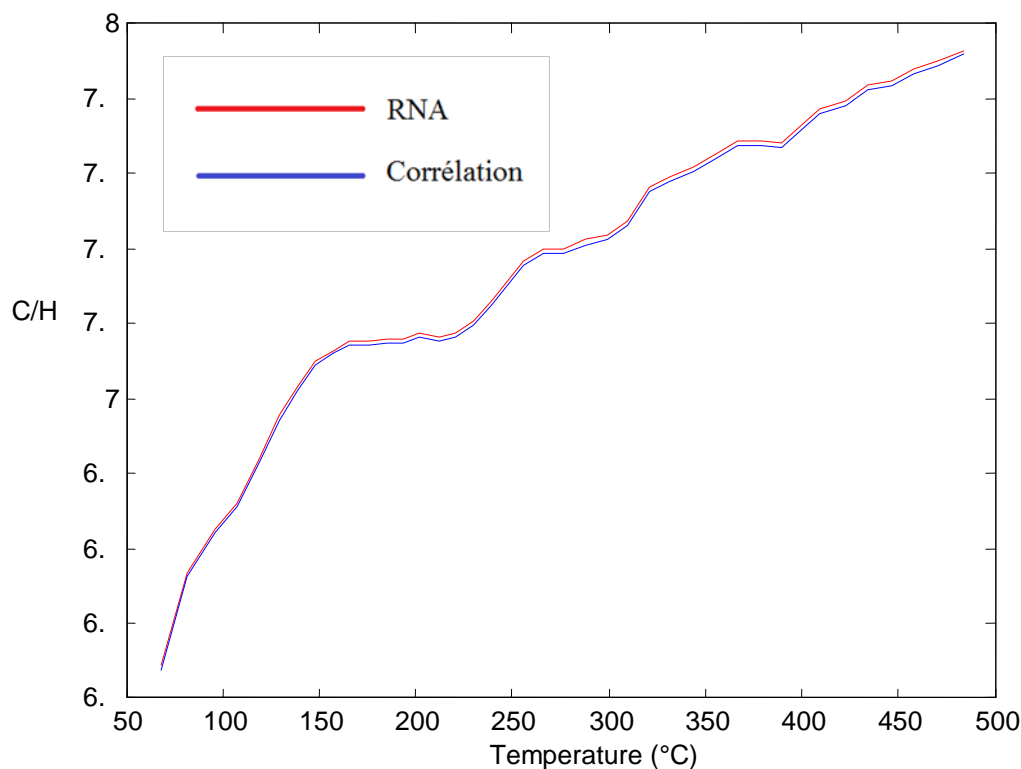


Figure 4.10 : variation du rapport C/H en fonction de la température d'ébullition.

L'entraînement du réseau de neurones a été effectué avec la moyenne des résultats calculés par les différentes corrélations. La comparaison a été faite avec la corrélation de Huggins, donnant une bonne précision.

9. Le point d'éclair (flash point) :

Le point d'éclair caractérise la teneur en produits volatils, et permet de connaître jusqu'à quelle température un produit pourra être chauffé sans danger.

L'essai consiste à chauffer dans un creuset ouvert ou fermé à vitesse déterminée un échantillon du produit pétrolier jusqu'à ce qu'une quantité suffisante d'éléments volatils passent en phase vapeur et puissent pouvoir être enflammés par une petite flamme placée au bord du creuset. Dès que l'explosion se produit avec l'éclair (flash), on note cette température qui correspond au point éclair ou flash point. Si on continue à chauffer, la flamme devient stable c'est le point d'inflammabilité ou fire point. Plusieurs méthodes permettent de mesurer expérimentalement le point d'éclair, elles sont résumées dans le tableau 4.10 suivant [6]

Coupes pétrolières	Désignation	ASTM	AFNOR
Solvants – kérosènes	Tag closedcup Abel	D 56	M 07 - 011
Gas – oil – huiles – fuels	Luchaires Cleveland Pensky – Martens – Closed – Cup	D 92 D 93	T 60 118 M 07 - 199
Bitumesfluxés	-	D 93	T 66 009

Tableau 4.10 : Méthodes expérimentales de détermination du point d'éclair.

Le point d'éclair représentatif de la teneur en produits légers d'une fraction conditionne les risques d'explosion éventuelle de la phase gazeuse des réservoirs de stockage à une teneur en hydrocarbures comprise entre les limites d'explosivité. La température du point d'éclair peut être déterminée à partir de l'expérience ou à partir de corrélations.

9.1. Détermination du point d'éclair des hydrocarbures purs :

Plusieurs recherches ont été faites pour déterminer le point d'éclair des hydrocarbures purs. Le tableau 4.11 suivant donne les valeurs des points d'éclair d'hydrocarbures appartenant à différentes familles. Ces données ont été obtenues par Butler [13], qui a constaté une linéarité entre la température d'ébullition et la température du point éclair.

Fractions	Point d'éclair (°F)
Solvants	30.0
Kérosène	110.0
Distillats gas-oil	150.0
Distillats fuel-oil	200.0
Gas-oil	250.0
Fuel-oil	300.0
Huile lubrifiante	350.0

Tableau 4.11 : Valeurs du point d'éclair de quelques coupes pétrolières.

Corrélation de Butler : [10]

Sur la base des valeurs expérimentales, Butler propose une corrélation de la forme :

$$T_f = a_1 * T_{eb} + b_1 \quad (45)$$

T_f : température du point d'éclair (°F) ;

T_{eb} : température d'ébullition (°F) ;

A_1 et b_1 sont des constantes spécifiques.

De plus, cet auteur propose une relation faisant intervenir la masse molaire et la pression de vapeur à la température du point d'éclair de la forme :

$$MP^\circ = 15.19 \text{ psi}$$

Cette relation permet indirectement de retrouver la température du point d'éclair connaissant la masse molaire de la substance.

Corrélation de Riazi et Daubert [11] :

$$\frac{1}{T_f(^{\circ}R)} = -0.014568 + \frac{2.84947}{T_{eb}(^{\circ}R)} + 1.903 * 10^{-3} * Ln T_{eb}(^{\circ}R) \quad (46)$$

T_f étant la température d'éclair.

L'erreur enregistrée est inférieure à celle obtenue par l'équation de Butler, de plus l'équation de Riazi peut être appliquée aux fractions pétrolières.

9.2. Corrélations donnant le point d'éclair pour des mélanges :

En toute rigueur, il n'est pas possible d'appliquer la règle d'additivité au point d'éclair. Butler [7] propose d'appliquer l'équation de Riazi et Daubert à des mélanges en écrivant :

$$\sum (x_i * M_i * P_i^\circ) = 15.19 \text{ psi} \quad (47)$$

X_i : étant la fraction molaire du composé i dans le mélange.

9.3. Détermination du point d'éclair des fractions pétrolières :

Corrélation de Nelson [15] :

- Pour les fractions pétrolières :

$$T_f = 0.64 * T - 100 \quad (48)$$

- Pour le pétrole brut :

$$T_f = 0.57 * T - 100 \quad (49)$$

T_f : température du point d'éclair ($^{\circ}F$) ;

T : température moyenne de l'intervalle de distillation entre les points 0 et 10% ASTM.

Corrélation de Riazi et Daubert [18] :

Cette équation peut être utilisée jusqu'à une T_{max} égale à 1100 $^{\circ}F$,

$$T_f = -124.72 + 0.70704 * T_{(10\% \text{ ASTM})} \quad (50)$$

T _f Expérience (°C)	T _f RiaziDaubert	Ecart	T _f Nelson	Ecart	T _f RNA	Ecart
54,00	60,35	6,3	56,44	2,4	54,00	0,0
75,00	77,91	2,9	73,72	1,3	74,99	0,0
96,00	93,90	2,1	91,00	5,0	96,51	0,5
116,00	108,27	7,7	108,28	7,7	115,35	0,7
132,00	123,60	8,4	129,40	2,6	132,38	0,4
153,00	136,52	16,5	150,52	2,5	153,03	0,0
177,00	147,70	29,3	172,92	4,1	176,59	0,4
202,00	156,01	46,0	194,04	8,0	202,56	0,6
236,00	162,51	73,5	215,80	20,2	237,71	1,7
283,00	167,34	115,7	238,91	44,1	282,09	0,9

Tableau 4.12 : Comparaison entre les méthodes de calcul du point d'éclair.

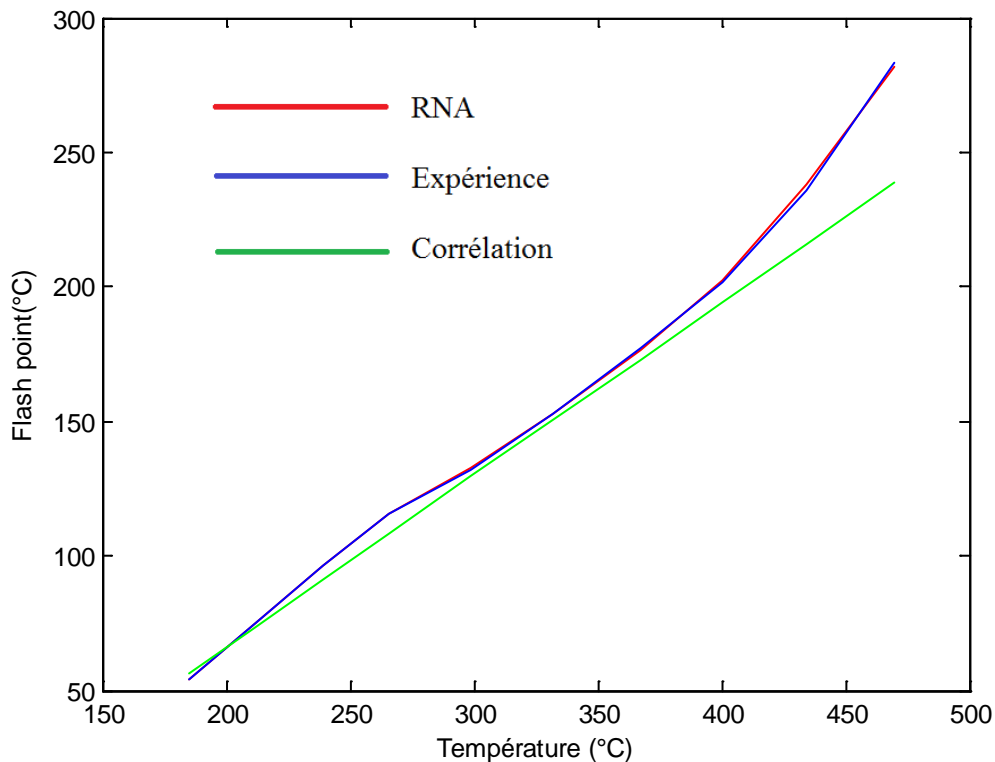


Figure 4.11 : variation du point éclair en fonction de la température d'ébullition.

Les résultats donnés par le réseau de neurones collent parfaitement avec l'expérience. Ceci peut être expliqué par la variation homogène et monotone de cette propriété avec les deux propriétés d'entrée que sont la densité et la température d'ébullition.



Chapitre 5 :
Mise au point du Logiciel de calcul

Présentation du logiciel :

Les différentes méthodes étudiées dans le cadre de notre projet de fin d'étude permettent de calculer individuellement les différentes propriétés physiques et thermodynamiques des fractions pétrolières. Le but de notre travail est de proposer une autre approche qui est celle de déduire toutes les propriétés en utilisant un logiciel de calcul. Ce dernier constitue un outil de travail très intéressant.

Le logiciel élaboré est un ensemble de programmes écrits en **Matlab** (version 2013) sous environnement Windows 7.

Le logiciel permet le calcul des propriétés à partir des paramètres d'entrée qui sont la température d'ébullition et la densité et qui sont obtenues à partir de la distillation TBP des pétroles bruts.

Pour chaque propriété, le logiciel propose plusieurs valeurs, chacune déduite par une des méthodes : D'abord, le résultat obtenu grâce au modèle mathématique établi par le réseau de neurones entraîné. Ensuite, dans le deuxième panel, les valeurs affichées sont celles calculées à partir de différentes corrélations. Le dernier panel est réservé à l'affichage de la valeur obtenue en utilisant la méthode de contribution de groupes sans interactions. Enfin, la valeur de l'erreur est affichée en comparant les résultats entre eux.

Le logiciel fournit également la composition estimée par les corrélations de Riazi-Daubert ou d'El-Chitour selon l'intervalle de température.

En plus notre logiciel est doté d'un script intuitif. Si l'utilisateur rentre des valeurs de densité et de température d'ébullition non-cohérentes entre elles, un message d'erreur s'affiche même si le logiciel continue de faire le calcul de toutes les propriétés.

Sur la figure 5.1 est présenté l'interface graphique du logiciel à qui nous avons donné comme valeurs d'entrée une température d'ébullition de 90°C et une densité de 0.7 ; Le résultat de la propriété s'affiche :

-A gauche, le résultat et la simulation par réseau de neurones.

-Au milieu, le résultat des corrélations.

-A droite, le résultat par contribution de groupe.



Figure 5.1 : Schéma de l'interface graphique du logiciel.

Le logiciel commence par lire la densité et la température d'ébullition entrées par l'utilisateur. Les étapes de calcul se font comme suit :

- Premièrement, le logiciel calcul la SpGr, l'°API, le nombre de moles, l'indice d'octane et enfin la composition.
- Le logiciel calcul aussi les propriétés par réseaux de neurones et les enregistre dans un vecteur.
- Enfin, lorsque l'utilisateur click sur l'icone d'une propriété : Ses valeurs s'affichent sur l'écran calculées par corrélations, contribution de groupe et réseaux de neurones.



Conclusion Générale

Conclusion :

Nous avons proposé dans notre étude un logiciel calculant une vingtaine de propriétés physiques des fractions pétrolières et ceci dans un délai bref. Il suffit pour cela de connaître la courbe de distillation du pétrole (TBP) ou du mélange de corps purs d'hydrocarbures; Il est important de signaler que ce logiciel peut être un complément à toutes les méthodes d'analyse aussi bien au niveau d'un centre d'analyse d'une raffinerie que dans un centre d'analyse classique en recherche. Les vingt propriétés étudiées (en complément de celles étudiées par Othmane Outayeb et Ghiles Taibi) permettent par la mise en place de ce logiciel d'éviter les expériences sur des équipements chers quand ils sont disponibles et qui n'nécessitent des temps d'analyse importants.

Nous n'avons pas la prétention d'affirmer que nous avons solutionné tous les problèmes de l'analyse, mais l'utilisation de l'outil informatique, le choix de plusieurs corrélations pour être le plus proches possible des valeurs réelles et l'utilisation d'un outil puissant tels que les réseaux de neurones sont pour nous des assurances que les résultats sont acceptables. Nous pensons qu'il est possible de mettre à la disposition des laboratoires d'analyse des entreprises de raffinage ou des autres entreprises ou des laboratoires universitaires cet outil que nous pensons améliorer pour le rendre encore plus fiable.

En perspective, ce logiciel pourrait être compléter avec d'autres propriétés telles que l'entropie de vaporisation et l'enthalpie de formation.



Bibliographie

Bibliographie :

- [1] Pétrole. Éléments statistiques. Comité professionnel du pétrole (CPDP) (2007).
- [2] FAVENNEC (J.P.). – Géopolitique de l'énergie. Besoins, ressources, échanges mondiaux. IFP publications. Éditions Technip, Paris (2006).
- [3] P.A.CHAIAYAPPAN , IBRAHIM , KULLOOR: Chem. Eng. 74[4] , 140 , 1967.
- [4] KANITKAR, THODOS : Can. J. Chems. Eng. , 47 , 427 , 1969.
- [5] American Petroleum Institute (API): Project Research , 1981.
- [6] C.E. Chitour.
“Corrélations sur le pétrole brut et les fractions pétrolières”.
Tome 1. Editions OPU. Alger
- [7] R.M. Butler et Coll (1956).
Prediction of flash points of middle distillates.
Ind., Eng. Chem. ,vol 48, p.808
- [8] GUIBET (J.C.). – Carburants et moteurs. Technologies, énergie, environnement. Tome 1, Éditions Technip, Paris (1997).
- [9] LEPRINCE (P.). – Le raffinage du pétrole. Procédés de transformation, Éditions Technip, vol. 3, Paris (1998).
- [10] F. Bouamra (1991).
Détermination des propriétés thermodynamiques des fractions pétrolières.
Thèse de magister. Directeur : C.E. Chitour. Laboratoire de Valorisation des Energies Fossiles. Dpt de Génie Chimique, Ecole Nationale Polytechnique.
- [11] M.R. Riazi et T.E. Daubert. (1987).
“Predicting flash and pour point”,
Hydrocarbon processing, September, p: 81 – 83.
- [12] J.MC GARRY : Ind. Eng. Chem. Process. Des. Dev, N°22, 1983.
- [13] BERTRAND (J.C.) et MILLE (G.). – Devenir de la matière organique exogène. Un modèle : les hydrocarbures. Bianchi J.C., Marty D., Bertrand J.C., Caumette P et Gautier M. eds 373, Masson, Paris, 1989.
- [14] B.I.LEE , M.G.KESLER : A.I.Ch.E journal , 21 :510 , 1960

[15] J.B. Maxwell. (1963).

Data book on hydrocarbon.

Edition Van Nostrand, N.Y.

[16] J.Vidal - « Thermodynamique application au génie chimique et à l'industrie pétrolière». Ed.Technip, Paris, [1997]

[17] P.WUITHIER : « Le pétrole, raffinage et génie chimique » Tome 1. Ed Technip, 1972.

[18] M.Riazi et T.E. Daubert. (1986).

Prediction of molecular-type analysis of petroleum fractions and coal liquids.

Ind. Eng. Chem. Process Des, Dev, 25, 1009 – 1015.

[19] A.L.LYDERSEN, “Estimation of critical properties of organic compounds by the method of group contribution”, University of Wisconsin, Engineering Experiment Station, Report N°3, Madison, Wis. (1955).

[20] W.C.EDMISTER, PET.REFINER, 37 (4), Avril (1958).

[21] O.Dermoune. (1990).

Détermination des propriétés thermodynamiques des fractions pétrolières.

Thèse de magister. Directeur : C.E. Chitour. Laboratoire de Valorisation des Energies Fossiles. Dpt de Génie Chimique, Ecole Nationale Polytechnique.

[22] H.M.Smith. (1940).

US.Bureau of Mines, Mechanical Paper, 610.

[23] C.E. Chitour. (1983).

“Corrélations sur le pétrole brut et les fractions pétrolières”.

Tome 2.Editions OPU. Alger.

[24] P.Huiggins. (1987).

Program produces wide range of distillate properties.

Oil and Gas Journal, Technology Nov, 30.

[25]: R.L. Cardozo. (1986).

Aiche Journal, vol. 32, N°5, May.

[26] N. Skander (1996).

Contribution à la détermination des propriétés physiques des mélanges d'hydrocarbures et des fractions pétrolières par des méthodes de contribution de groupe. Thèse de magister. Directeur : C.E. Chitour. Laboratoire de Valorisation des Energies Fossiles. Dpt de Génie Chimique, Ecole Nationale Polytechnique.

[27] M. ZAIR : 'Conception et réalisation d'un appareil de mesure de la tension de vapeur et du calcul de la chaleur de vaporisation. Contribution à des courbes de type Cox-chart pour différents hydrocarbures' : Projet de fin d'étude d'ingénieur, sous la direction de C.E. Chitour, Génie Chimique, E.N.P. , 1993.

[28] American Petroleum Institute : API Research Project 44, (1981).