

### AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

### LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4 Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10 <u>http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\_droi.php</u> <u>http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm</u>







## Modélisation systémique des filières sidérurgiques en vue de leur optimisation énergétique et environnementale

THESE

Soutenue publiquement le 19 Décembre 2014

Pour l'obtention du grade de

#### Docteur de l'Université de Lorraine

(Science des Matériaux et Métallurgie) Ecole Doctorale : Energie Mécanique et Matériaux par

> Khalid AFANGA Ingénieur Civil des Mines

#### Composition du jury :

- Rapporteurs Mme. Michèle Pijolat (Professeur, Ecole des Mines de Saint-Etienne) M. Hervé Duval (Maître de Conférences, HDR, Ecole Centrale Paris)
- Examinateurs Mme. Sabine Denis (Professeur, Université de Lorraine)
   M. Eric Hess (Chef de département, ArcelorMittal Research)
   M. Fabrice Patisson (Professeur, Université de Lorraine)
   M. Olivier Mirgaux (Maître de Conférences, Université de Lorraine)

A ma mère Naïma !

# Remerciements

Cette thèse a été effectuée au sein de l'équipe Procédés d'élaboration de l'Institut Jean Lamour à Nancy. Le travail n'aurait pas abouti sans le soutien précieux et permanent de plusieurs personnes que je tiens à remercier.

Mes chaleureux remerciements vont à mes deux encadrants, Fabrice Patisson, professeur et directeur de thèse, Olivier Mirgaux, maître de conférences et co-directeur pour leur encadrement pendant cette thèse, leur patience, leur humanité, leurs précieuses aides et remarques de grandes utilités et la confiance qu'ils m'ont faite tout au long de mon séjour au laboratoire.

Mes sincères remerciements vont à Mme Michèle Pijolat, professeur des universités, M. Hervé Duval, maître de conférences, Mme Sabine Denis, professeur des universités et M. Eric Hess, chef de département à ArcelorMittal pour leur aimable participation au jury de thèse.

Je tiens à remercier très profondément, Denis Ablitzer, professeur des universités qui m'a été tout au long de mon séjour à Nancy (8 ans déjà !) d'une immense aide et non seulement un professeur mais aussi un mentor. Son humanité m'a beaucoup touché.

Je voudrais également assurer mon amitié à l'ensemble du personnel de Laboratoire, les chercheurs, le corps administratif ainsi que les techniciens, bien que je ne fusse pas amené à travailler avec eux.

Finalement, je voudrais évidemment remercier tous les doctorants et personnes que j'ai pu rencontrer pendant ma présence l'Institut et à Nancy en général.

Naturellement, je dédie ce travail à ma famille qui a su me donner le soutien et la liberté pour poursuivre ma passion et être à mes côtés tout au long de cette formation.

### Table des Matières

Introduction Générale	11
L'acier et son importance	13
Contexte économique	14
La production mondiale	14
Prix de la tonne d'acier	15
Prix de la tonne de ferraille	15
Perspectives	16
Les différents procédés d'élaboration	16
Contexte environnemental	17
Objectifs de l'étude et plan du manuscrit	18
Partie A : Haut fourneau et Haut Fourneau à Recyclage	21
I - Le haut fourneau conventionnel	23
I -1 Introduction	23
I – 2 Description du haut fourneau	24
I – 3 Description physico-chimique du haut fourneau classique	25
La droite opératoire	28
I – 4 Description de la démarche suivie	32
a) Le Modèle Mathématique du Haut Fourneau (MMHF)	32
b) Le logiciel ASPEN Plus	35
I – 5 Le modèle ASPEN Plus du haut fourneau	36
a) Entrées – sorties du modèle	38
b) Principe général du calcul	39
I – 6 Validation du modèle	39
a) Travaux antérieurs	39
b) Nouvelle validation	39
I – 7 Conclusion	43
II – Haut fourneau à recyclage	44
II – 1 Introduction	44
II – 2 Intérêt de la technologie du recyclage	45
II – 3 Campagnes au haut fourneau pilote de Lulea	46

II – 4	Etude bibliographique du haut fourneau à recyclage	49
a)	Travaux ULCOS	49
b)	Etude de Nogami et al. (2005)	50
c)	Etude de Wu et al. (2011)	52
d)	Etude Zhang et al. (2010)	55
II – 5	Modélisation du haut fourneau à recyclage sous Aspen Plus	56
a)	Traitement et recyclage du gaz	56
b)	Fonctionnement à l'oxygène pur	57
c)	Hypothèses pour les simulations	58
II – 6	Résultats et discussion	60
a)	Vérification préliminaire : influence du débit de gaz recyclé sur la mise au mille coke	60
b)	Simulations de validation	61
c)	Résultats : comparaison simulations et expériences	62
d)	Taux de recyclage et quantité d'agents réducteurs	64
e)	Etudes théoriques	67
III – Coi	nclusions	. 70

Partie B : Filière Sidérurgique Globale		71
I – Intro	duction	73
II – Les	procédés composants la filière sidérurgique classique	77
Intr	oduction	77
II - 1 I	L'agglomération	78
a)	Présentation	78
b)	Phénomènes physiques	79
c)	Données d'entrées-sorties	82
II – 2 I	a cokerie	84
a)	Introduction	84
b)	Modélisation	86
C)	Données d'entrées-sorties du modèle Cokerie	87
II – 3 I	e haut fourneau	87
II – 4 I	e Convertisseur	88
a)	Introduction	88
b)	Modèle du convertisseur sous Aspen Plus	90
c)	Données d'entrées-sorties du modèle du convertisseur	92

III – Démarche suivie pour le développement du modèle global de l'usine sidérurgiq	ue
intégrée classique	93
III – 1 Introduction	93
III – 2 Méthode 1 : Utilisation de blocs hiérarchiques	94
III – 3 Méthode 2 : Utilisation d'un seul flowsheet	95
IV – Etudes de cas	96
Introduction	96
IV – 1 Cas 1 : Filière classique	96
IV – 2 Cas 2 : Filière avec haut fourneau à recyclage	96
IV – 3 Cas 3 : Recyclage de sous-produits : Substitution de matières premières	96
IV – 4 Cas 4 : Influence d'un composant chimique sur toute la filière : Fraction de Si dans la sur le bilan thermique dans le HF et le convertisseur	fonte 98
V – Résultats et discussion : filière globale	100
V – 1 Cas 1 : filière sidérurgique classique	100
V – 2 Cas 2 : filière avec haut fourneau à recyclage	103
Comparaison entre le cas 1 et cas 2	105
V – 3 Cas 3 : filière sidérurgique avec substitution de matières premières	106
a) Comparaison entre filière classique et filière avec substitution de matières	109
<ul> <li>b) Comparaison entre filières avec haut fourneau à recyclage avec et sans substitution matières</li> </ul>	n de 109
c) Comparaison entre filières classique et filière avec haut fourneau à recyclage avec	
substitution de matières	110
V – 4 Cas 4: Influence de Si sur toute la filière	111
a) Filière classique	111
Comparaison entre les trois cas pour une filière classique	115
b) Filière avec haut fourneau à recyclage	116
Comparaison entre les trois cas pour une filière avec un haut fourneau à recyclage	116
c) Discussion sur l'influence du Silicium	120
VI – Conclusion	121

Conclusions et Perspectives	123
Conclusions	
Perspectives	
Références	129

ANNEXES	
ANNEXE I	
ANNEXE II	
Liste des Figures	145
Liste des Tableaux	148

# Introduction Générale

#### L'acier et son importance

L'acier a occupé depuis la nuit des temps, et occupe encore, une place de plus en plus importante dans l'activité humaine. Son utilisation est témoin de l'évolution de l'Homme. Il est omniprésent, on le trouve dans tous les domaines économiques, médicaux, artistiques, etc. et est considéré comme un moyen pour mesurer le niveau d'avancement de pays ou de civilisations.

Sa présence est indispensable pour de nombreuses utilisations qui vont de la construction de bâtiments, la fabrication de voitures, et celle des appareils électroménagers, des montres, des instruments médicaux ou encore des armes (figure 1). Il jouit également d'un statut de matière stratégique et la course à cette matière conduit parfois à des conflits surtout pour l'approvisionnement en minerai de fer, matière première essentielle à l'élaboration de l'acier avec le coke.

L'acier est un alliage métallique constitué de plusieurs éléments chimiques principalement le fer Fe, le carbone C (dont la fraction massique ne dépassant pas les 2%), le soufre S, la silice Si, le phosphore P et bien d'autres éléments. Les principales matières premières à son élaboration sont le minerai de fer, le coke et le charbon pour des besoins énergétiques, du moins pour l'élaboration d'acier dit de première fusion, c'est-à-dire fabriqué à partir de minerai. Mais, notamment de par ses propriétés magnétiques qui facilitent sa récupération, l'acier est un matériau facilement recyclable. On peut donc produire de l'acier, dit de seconde fusion, par le recyclage et la refusion de ferrailles. L'intérêt de cette filière est qu'elle préserve les ressources et qu'elle demande beaucoup moins d'énergie pour la fabrication de l'acier. Au niveau mondial, environ 40% (worldsteel) de l'acier aujourd'hui est produit à partir de ferrailles recyclées.



Figure 1 : Différentes utilisations d'acier dans l'activité humaine.

#### **Contexte économique**

#### La production mondiale

D'après la figure ci-dessous (figure 2), la production d'acier n'a cessé d'augmenter durant les soixante dernières années. Ceci s'explique par le fait qu'après la seconde guerre mondiale, la production et la consommation ont été mobilisées dans l'effort de reconstruction en Europe (principalement), puis dans la phase d'industrialisation et de forte consommation de biens (automobiles, électroménager...) que le monde a connu. Par la suite à partir des années 2000, la production s'est encore accélérée du fait de la forte demande d'acier par les pays émergents - comme la Chine, l'Inde, le Brésil, la Russie, l'Afrique du Sud, etc. - qui est directement liée à l'évolution de leur économie. Le tableau en bas à droite de la figure illustre cette tendance : la croissance de la production est étroitement liée à la progression du produit intérieur brut.



Figure 2 : Production mondiale d'acier de 1950 à 2012 et le taux de croissance du PIB mondial durant cette période (worldsteel).

#### Prix de la tonne d'acier

La figure 3 donne le prix de la tonne d'acier dans certaines zones géographiques. On constate que le prix de la tonne d'acier a fortement fluctué durant les 13 dernières années. Cela peut s'expliquer, entre autres, par les différentes crises financières (et par la suite économiques) mondiales qui se sont succédées ainsi qu'à l'émergence de certains pays comme la Chine, l'Inde, le Brésil, la Russie, ou l'Afrique du Sud qui ont tiré les prix vers le haut par leur forte consommation, et pour leurs besoins de construction. L'effet de crise est très prononcé et mis en évidence suite à la crise de 2008 où on voit le prix s'effondrer de 1300 dollars (le plus haut historique) à 500 dollars la tonne (près de deux tiers). Cependant, comme le montre la figure 2, cet effet est beaucoup moins marqué sur la production ellemême.



Figure 3 : Prix en dollar américain de la tonne d'acier au cours de la décennie précédente (steelbenchmarker).

#### Prix de la tonne de ferraille

Sur la figure 4 est rapporté le prix de la tonne de ferraille pour la même période (13 dernières années). On remarque qu'il suit aussi la même tendance que le prix de la tonne d'acier. On retrouve l'effondrement des prix après la crise mondiale de 2008, le prix à la tonne ayant alors retrouvé sa valeur du début des années 2000, mais pour une relative courte durée avant de reprendre sa progression grâce à l'amélioration des conditions

économiques favorables à la consommation, la reprise aux Etats-Unis et la relative reprise en Europe.



Figure 4 : Prix en dollar américain de la tonne métrique de ferraille au cours de la décennie précédente (steelbenchmarker).

#### **Perspectives**

Ces éléments montrent qu'il faut s'attendre pour les décennies à venir à une poursuite de l'augmentation de la demande en acier. Or, malgré l'intérêt de la filière de seconde fusion, cette demande supplémentaire ne pourra être couverte par la seule augmentation du recyclage. On note en effet que dans les pays développés la fraction d'acier recyclé ne croît plus et que les prix de ferraille se tendent. Il faudra donc continuer à produire la majeure partie de l'acier à partir de minerai. Nous nous limiterons ainsi à l'étude de la filière classique de première fusion dans la suite de ce mémoire.

#### Les différents procédés d'élaboration

La fabrication d'acier nécessite une succession d'opérations d'extraction, de transformation, de séparation, d'affinage et de mise en forme. Dans la filière classique on distingue habituellement :

 La métallurgie « primaire » ou extractive, qui consiste à partir du minerai pour aboutir à un métal en général liquide. Cette étape comporte des opérations d'extraction, de préparation des minerais, de transformation de ceux-ci par fusion et réactions chimiques (réduction dans le cas de la sidérurgie).

 La métallurgie « secondaire » qui part du produit de la première c'est-à-dire du métal liquide et le traite. Elle comporte plusieurs opérations successives ou combinées : l'affinage, la coulée, la solidification, la mise en forme à chaud, etc.

Le produit issu de la métallurgie secondaire subit ensuite des traitements (thermiques, thermomécaniques) et des transformations de mise en forme, voire des traitements chimiques selon l'utilisation finale souhaitée.

#### **Contexte environnemental**

Après des années de doutes sur l'existence du réchauffement climatique et plus généralement le dérèglement climatique, un consensus est en train d'émerger et de s'affirmer dans les mondes politiques et industriels. La plupart des acteurs et des décideurs ont pris conscience de la nécessité de faire des efforts pour essayer de limiter les émissions de gaz à effet de serre (GES) et ont décidé d'un certain nombre d'actions.

Le protocole de Kyoto était au niveau politique l'exemple concret de cet engagement, par lequel les pays signataires se sont mis d'accord pour réduire leurs émissions de CO<sub>2</sub> de manière significative (50% de réduction des émissions par rapport à 1990).

La sidérurgie est une des industries les plus énergivores et émettrices de  $CO_2$ , avec 21% des émissions des GES inductrielles en France et 19% au niveau mondial (citepa.org). Ces chiffres résultent de l'utilisation presque exclusive du charbon comme source primaire de chaleur et agent réducteur du minerai de fer. Cette situation n'est pas durable et impose à cette industrie d'évoluer. Dans la filière classique, pratiquement toutes les unités, y compris le haut fourneau, sont déjà largement optimisées d'où l'énorme difficulté que rencontre l'industrie sidérurgique aujourd'hui pour réduire sa consommation d'énergie et ses émissions de  $CO_2$ . Le plus gros émetteur de cette chaîne est le haut fourneau, qui représente à peu près 69% des émissions de toute la filière (Orth, 2007). De nombreuses pistes ont été étudiées pour trouver des moyens technologiques pour réduire les émissions de  $CO_2$ , comme l'utilisation de la biomasse au lieu du charbon, le captage et la séquestration de  $CO_2$  dans des aquifères salins ou le recyclage du gaz de gueulard. C'est cette dernière technologie qui sera traitée dans ce mémoire.

Dans ce contexte, plusieurs projets de recherche ont été lancés dans le monde, comme par exemple le projet européen ULCOS (Ultra Low CO<sub>2</sub> Steelmaking, 2004 – 2010)

17

partenariat entre industriels et la Commission européenne dont l'objectif était de réduire les émissions de 50% par rapport à la technologie actuelle, le projet COURSE 50 lancé par The Japan Iron and Steel Federation (jisf.co.ja) (CO<sub>2</sub> Ultimate Reduction in Steelmaking by Innovative Technology for Cool Earth 50, 2008 – 2012) au Japon et SOBOT initié par The American Iron and Steel Institute (AISI) (Saving One Barrel of Oil per Ton: A New Roadmap for Transformation of Steelmaking Process) en Amérique du nord. La Chine également, premier producteur d'acier au monde, s'engage dans des initiatives pour réduire ses émissions de CO<sub>2</sub>.

Plusieurs procédés ont été sélectionnés à l'issue du projet ULCOS, comme étant les plus prometteurs (bilan entre efficacité en termes de réduction des émissions de CO<sub>2</sub> et maturité et chance de succès technologique). Nous citerons ici le TGR-BF (Top Gas Recycling Blast Furnace) aussi dénommé ULCOS-BF, un haut fourneau à recyclage de gaz, et le procédé HISARNA, un nouveau procédé de fusion-réduction.

Le haut fourneau à recyclage a été considéré comme l'une des technologies les plus prometteuses. Il permettrait en effet d'améliorer l'efficacité énergétique et de réduire les émissions de CO<sub>2</sub> en réduisant la quantité de coke nécessaire pour produire une tonne de fonte. Bien que l'idée de développer un tel procédé existe depuis longtemps, ce n'est que récemment que les groupes sidérurgistes s'y sont vraiment intéressés grâce à son potentiel de réduction des émissions de CO<sub>2</sub>. Celui-ci est d'environ 20% par rapport au haut fourneau conventionnel si le CO<sub>2</sub> séparé n'est pas stocké et de 75% s'il est stocké. C'est à ce procédé que nous nous sommes particulièrement intéressés.

#### Objectifs de l'étude et plan du manuscrit

Le présent travail de thèse a été engagé en 2009 sur la fin du projet ULCOS. Il fait suite et prolonge d'autres travaux menés à l'IJL. Ana – Maria Iosif (Iosif, 2006), la première à avoir travaillé sur le sujet au laboratoire a réalisé une analyse environnementale de la filière sidérurgique classique, en couplant analyse du cycle de vie et modélisation systémique des procédés. Wagner (2008) et Ranzani da Costa (2011) se sont quant à eux intéressés à la mise au point, sur la base d'études expérimentales et de modélisations mathématiques, d'un nouveau procédé de réduction directe fondé sur l'utilisation d'hydrogène pur. Enfin, Mirgaux (2009) a simulé le procédé de réduction directe avancé ULCORED.

Il nous est alors apparu que le haut fourneau à recyclage, mis en avant à l'issue du programme ULCOS, méritait d'être étudié plus avant par modélisation systémique pour, d'une part, analyser ses performances par rapport au haut fourneau classique et pour, d'autre part, pouvoir être intégré à un modèle global d'usine intégrée afin d'être capable de

simuler des scénarios de fonctionnement optimisé d'une telle usine centrée autour du haut fourneau à recyclage. C'est dans ce double but qu'a été entrepris le présent travail de thèse, financé par une bourse CNRS - Région Lorraine.

Le mémoire est articulé selon ces deux axes de recherche.

La première partie porte sur l'étude du haut fourneau à recyclage, l'élaboration d'un modèle systémique capable de décrire et de prédire le fonctionnement du fourneau dans sa nouvelle configuration et sa validation en comparant les résultats avec les données expérimentales disponibles. Ce modèle sera exploité pour quantifier les performances du haut fourneau à recyclage par rapport au haut fourneau classique.

Dans la seconde partie, est décrit le modèle global d'usine et ses résultats. On décrira les sous modèles des différents procédés. On mentionnera les apports de cette technologie dans le bilan carbone global et on analysera quelques scénarios alternatifs avec recyclage internes de matières,

Bien que ces deux parties soient liées entre elles, nous avons choisi de les séparer pour plus de clarté. La première n'étant consacrée qu'au haut fourneau, la description de l'ensemble de l'usine sidérurgique intégrée et de ses procédés (cokerie, agglomération, convertisseur, etc.) est reportée à la seconde partie. Partie A : Haut fourneau et haut fourneau à recyclage

#### I - Le haut fourneau conventionnel

#### I -1 Introduction

Le haut fourneau est considéré comme l'un des réacteurs industriels les plus complexes. Sa principale fonction est la production de la fonte, alliage de fer saturé en carbone. Ses dimensions varient entre 1 et 14 m de diamètre au creuset et peuvent atteindre jusqu'à 90 m de hauteur, en fonction de la production recherchée qui peut aller jusqu'à 9000 tonnes par jour (Burteaux, 1994) pour les fourneaux les plus productifs. On compte à peu près 1500 hauts fourneaux dans le monde et 8 en France en 2013.

La figure 5 montre une vue réelle d'un haut fourneau et un schéma des différentes parties qui le composent.



Figure 5 : Schéma d'ensemble (gauche) et une photographie (droite) d'un haut fourneau (Corus).

#### I – 2 Description du haut fourneau

Le haut fourneau est un réacteur à contre-courant dans lequel les matières premières (coke, minerai de fer et aggloméré) introduites solides en haut du fourneau réagissent et échangent de la chaleur avec les gaz réducteurs ascendants. Ceux-ci proviennent de l'oxydation partielle du charbon et de l'air chaud injectés au niveau des tuyères et de la gazéification du coke. Au centre du four, les oxydes de fer et le fer fondent et forment la fonte par réaction avec le carbone du coke. Fonte et laitier (oxydes minéraux fondus) sont extraits alternativement par le bas du four.



La figure 6 représente une coupe schématique d'un haut fourneau.

Figure 6 : Coupe verticale d'un haut fourneau conventionnel (Philbert, 1997).

On identifie cinq zones principales dans le haut fourneau.

Le gueulard : partie haute du four, par où sont chargés les solides et évacués les gaz.

<u>La cuve</u> : partie qui a la forme d'un cône évasé vers le bas. Cette forme géométrique favorise l'écoulement de la charge solide et dans une certaine mesure contribue à la réduction de la charge (en faisant converger les gaz, lors de leur ascension, sur un volume rétrécissant) dès son introduction dans le fourneau.

<u>Le ventre</u> : partie intermédiaire entre la cuve et les étalages. L'état des matières (solides ou liquides) et les phénomènes physicochimiques diffèrent grandement à ce niveau selon la position radiale.

<u>Les étalages</u> : région où les oxydes de fer non encore complétement réduits entrent en fusion (représentée par la zone de fusion dans le schéma). Contrairement à la cuve, cette zone a la forme d'un tronc de cône inversé. Cette forme favorise la régularisation de la descente de la charge et son acheminement vers la zone des tuyères et aussi la distribution du gaz vers la partie supérieure en améliorant l'efficacité de réduction.

Le creuset : zone où s'accumulent les liquides (fonte et laitier) avant d'être extraits (trou de coulée).

La charge minérale et le coke sont introduits via un système de distribution qui permet une alternance des couches. Cette répartition est nécessaire pour assurer une bonne marche du haut fourneau. D'une part, elle assure une bonne perméabilité permettant aux gaz de circuler même en présence de liquides. D'autre part, elle assure grâce au coke le maintien des conditions réductrices dans le lit. Lorsque le monoxyde de carbone réagit avec les oxydes de fer d'une couche, le CO<sub>2</sub> produit réagit à son tour avec le carbone du coke situé dans la couche supérieure dans le domaine de températures supérieures à 1000°C, pour régénérer du monoxyde de carbone, par la réaction de Boudouard, qui réduit ensuite la charge de la couche supérieure, comme représenté schématiquement sur la figure 7.





Figure 7 : Création et circulation de CO et CO<sub>2</sub> entre les couches de coke et de minerai.

Le haut fourneau est le siège de plus de 30 réactions chimiques et changements d'état (Nogami, 2005).

#### I – 3 Description physico-chimique du haut fourneau classique

Dans ce qui suit, on ne donnera qu'une description brève des réactions les plus importantes. Pour une description plus exhaustive, mentionnant notamment l'ensemble des réactions chimiques, ainsi que les enthalpies de réaction, leur interactions, les bilans de matières et d'énergie, etc., le lecteur pourra se référer aux ouvrages de référence (par exemple Peacey et Davenport "The Iron Blast Furnace, theory and practice") ou encore à losif (2006).

Au cours de sa descente la charge de ferrifère est réduite par le gaz réducteur chaud issu de la combustion du coke au niveau des tuyères. A son introduction, le minerai de fer ou l'aggloméré (minerai prétraité à l'agglomération) est composé principalement d'hématite, mais aussi parfois de magnétite et de wüstite, en plus des impuretés de la gangue.

En reprenant la même division des zones du haut fourneau que sur la figure 2, on peut passer en revue les principales réactions chimiques selon les zones.

• La zone sèche (ou cuve) est le siège de la réduction des oxydes de fer par CO et accessoirement H<sub>2</sub>,

Au niveau de la partie supérieure de cette zone, l'hématite est réduite en magnétite qui est ensuite réduite en wüstite. Compte-tenu du profil de température dans le haut fourneau, ces réactions interviennent successivement dans des zones de température croissante :

 $T > 320^{\circ}C \qquad 3 Fe_2O_3 + CO \rightarrow 2 Fe_3O_4 + CO_2$ (R1)

 $620^{\circ}\text{C} < \text{T} < 950^{\circ}\text{C}$   $Fe_{3}O_{4} + CO \rightarrow 3 \text{ FeO} + CO_{2}$   $950^{\circ}\text{C} < \text{T} < 1100^{\circ}\text{C}$   $FeO + CO \rightarrow Fe + CO_{2}$  (R2) (R3)

Pour simplifier, nous avons considéré ici la wüstite sous la forme FeO, en réalité il s'agit d'un oxyde non stœchiométrique Fe<sub>0,947</sub>O.

Dans la partie supérieure de la cuve, aux températures inférieures à 950°C, où il n'y a pas de régénération de CO<sub>2</sub>, la réduction se fait par un gaz CO/CO<sub>2</sub>, dont le pouvoir réducteur diminue au fur et à mesure que le gaz s'élève dans la cuve.

La réduction de FeO se poursuit jusqu'à l'équilibre avec le gaz à une température d'environ 950°C. La zone dans laquelle il n'y a plus de réduction de FeO est appelée zone de réserve chimique. Elle est contenue dans une zone plus large définie par une température constante (950°C), appelée zone de réserve thermique.

Au niveau de la partie inférieure de la zone sèche, en plus de la réduction de la wüstite en fer, se produit la régénération du gaz réducteur selon la réaction de Boudouard (R4).

$$CO_2 + C \leftrightarrow 2CO$$
 (R4)

C'est une réaction réversible, qui a lieu dans le sens direct aux hautes températures, très endothermique qui détermine et limite la température de la zone de réserve thermique.

• Dans la zone de fusion, se forme le laitier par fusion de la gangue et des additions de fondants (chaux...). Cette zone est aussi siège de la fusion du fer et du FeO non réduit,

• Dans la zone active : la wüstite restante est réduite en fer, tandis que la fonte se carbure en carbone:

$$FeO_{l} + C \rightarrow Fe_{l} + CO$$
 (R5)

$$Fe_{I} + C \rightarrow fonte$$
 (R6)

• Au niveau des tuyères, le CO est généré par combustion du coke par l'oxygène selon la réaction :

26

$$C + \frac{1}{2}O_2 \rightarrow CO$$
 (R7)

en parallèle avec :

$$C + O_2 \rightarrow CO_2$$
 (R8)

• Enfin au niveau du creuset, la fonte et le laitier se séparent par décantation, la fonte s'affine et continue de s'enrichir en carbone jusqu'à saturation (~ 4,7% en masse).

En réalité, du fait des gradients radiaux il n'y a pas de frontière nette entre ces différentes zones. L'intérêt de cette décomposition est purement conceptuel. Elle permet de séparer de grandes zones en fonction des phénomènes qui y prédominent. Ainsi le haut fourneau est souvent subdivisé en deux grandes zones : zone dite de préparation (du haut jusqu'à la fin de la zone de réserve chimique) et zone d'élaboration (partie basse). La figure 8 montre cette subdivision et les principales réactions.





#### La droite opératoire

La droite opératoire est un outil théorique simplifié mais puissant, conçu par A. Rist à l'Ecole Centrale Paris, qui nous informe sur le fonctionnement et la conduite du haut fourneau. Pour tracer cette droite, on procède à un bilan de matière pour le fer, l'oxygène et le carbone

La figure 9 présente les entrées-sorties des différents éléments. On identifie deux parties (partie supérieure et partie inférieure) séparées par le bas de la zone de réserve chimique.

Dans la zone supérieure a lieu la réduction des oxydes de fer et la conversion du CO en CO<sub>2</sub>. Le débit du gaz dans cette région est constant. La zone inférieure est le siège de la consommation du carbone, soit par la combustion avec l'oxygène du vent soit avec la réduction directe des oxydes.

Les débits sont exprimés en nombre d'atomes, par unité de temps, de différents éléments, principalement le fer, le carbone, et l'oxygène. On note que le débit du fer est constant tout au long du fourneau.



Figure 9 : Entrées-sorties pour les bilans matière.

On note :

- o n<sub>Fe</sub> : débit de fer (en atomes)
- o n<sub>c</sub> : débit de coke (en atomes)
- n<sub>ov</sub>: débit d'oxygène (en atomes)
- $\circ$  x<sub>v</sub> : la proportion de coke brûlée au tuyères par l'oxygène du vent.

On définit également µ : la mise au mille du coke qui représente la consommation spécifique

de coke donnée par  $\mu = \frac{n_c}{n_{Fe}}$ .

La mise au mille coke représente la quantité de coke nécessaire pour produire mille kilogrammes de fonte, d'où l'appellation mise au mille coke.

La mise au mille de l'oxygène : 
$$y_v = \frac{n_{ov}}{n_{Fe}} = \frac{n_{ov}}{n_C} \cdot \frac{n_C}{n_{Fe}} = x_v \cdot \mu$$

Sur la figure10, est tracée la droite opératoire qui entre autres représente les échanges d'oxygènes entre les « fournisseurs » d'O<sub>2</sub> (le vent et les oxydes) et ses « consommateurs » (le coke dans la partie basse du haut fourneau, puis le gaz réducteur CO dans la partie haute).



Figure 10 : le tracé de la droite opératoire (Philbert, 1997).

L'axe des ordonnées y représente les apports d'oxygène : le vent et les oxydes de fer. L'axe des abscisses x représente les consommations spécifiques de coke. On note,

- $\circ$  x<sub>v</sub> : la proportion de coke brûlée aux tuyères par l'oxygène du vent
- o x<sub>d</sub>: la proportion de coke consommée par la réduction directe de FeO

- o x<sub>i</sub> : la fraction de CO convertie en CO<sub>2</sub> dans la partie supérieure de la cuve et x'i
- x''<sub>i</sub>: correspond à la transformation de CO en CO<sub>2</sub> lors des deux autres réactions de réduction (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>)
- $\circ$  y<sub>v</sub> : la proportion d'oxygène provenant du vent
- $\circ$  y<sub>d</sub>,: la proportion d'oxygène provenant des oxydes
- y'<sub>i</sub>: la fraction complémentaire de FeO réduite par CO (le nombre de d'atomes d'oxygènes cédé par FeO rapporté au nombre total d'atomes de fer produit)
- o y"i: la fraction d'oxygène provenant de la réduction de Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> par CO

Au niveau des tuyères, on a l'identité  $y_v = \mu . x_v$  représentée par le segment CE Sur le segment CB on a l'égalité :

$$y_d = \mu . x_d$$

Comme tout le coke est consommé par la combustion aux tuyères et la réduction des oxydes, on a :

$$x_v + x_d = 1$$
 et  $y_v + y_d = \mu$ 

Comme chaque atome de fer relâche 1,5 (3/2, on suppose que le minerai est composé que d'hématite) atomes d'oxygène on a :

$$y_i + y_d = 1,5$$
 et  $y_i = y'_i + y''_i$ 

A la sortie de la zone de réserve chimique (T ~950°C), FeO et les gaz se trouvent en équilibre thermodynamique. A partir de la figure ci-dessous on peut déterminer la composition du gaz à la sortie de la zone de réserve chimique.





D'après le diagramme on a :

$$\frac{\% CO}{\% CO + \% CO_2} = 0.7 \text{ à } 950^{\circ}\text{C}$$

D'où  $x'_i = \alpha' = 0.3$  et  $y'_i = 0.3\mu$ 

La composition de FeO correspond à  $y'_i + y_d = 1$ .

Pour assurer un bon fonctionnement du haut fourneau la mise au mille du coke et d'oxygène doivent satisfaire la relation :

Il faut noter que ce raisonnement n'est valable que dans le cas d'un fourneau idéal.

En réalité la droite opératoire, dont l'équation  $Y = \mu X - y_v$  (pente =  $\mu$  : la mise au mille coke) ne touche pas le point W. Cet écart est dû au fait que la charge à sa sortie de la zone de réserve thermique n'est pas composée seulement de FeO, les autres oxydes y existent avec des proportions faibles.

La figure 12 à gauche montre qu'une diminution de la mise au mille du vent diminue la mise au mille coke (pente en trait pointillé inférieur à la ligne pleine).

La figure 12 à droite illustre le type de courbe qu'on obtient dans des hauts fourneaux réels. Pour calculer l'écart à l'idéalité, il faut d'abord tracer la droite opératoire en supposant que le fourneau est idéal en suite on garde le point fixe E et on calcule la composition des gaz à la sortie du haut fourneau pour pouvoir situer le point A. Ainsi on peut accéder à la valeur d'oméga.



Figure 12 : Droite opératoire dans le cas réel. (Philbert, 1997)

L'écart à l'idéalité peut aussi être défini par :  $\omega = -1,056 + \frac{nO}{nFe}$  avec n pour nombre de moles.

Ce paramètre peut être positif ou négatif, en fonction de la teneur de la charge minérale en fer solide. Par exemple si on en plus des minerais de fer on rajoute de la ferraille, oméga peut être négatif.

Pour les hauts fourneaux réels, il est souvent positif puisque la charge est principalement composée de minerai et que le fonctionnement du fourneau est loin du cas idéal.

#### I - 4 Description de la démarche suivie

L'établissement du modèle systémique du haut fourneau a été le fruit de plusieurs contributions. Dans cette partie, on présentera brièvement le premier modèle décrivant le fonctionnement du haut fourneau, connu sous le nom de Modèle Mathématique du Haut Fourneau (MMHF) puis la manière dont on s'en est inspiré pour la modélisation sous ASPEN.

#### a) Le Modèle Mathématique du Haut Fourneau (MMHF)

Le Modèle Mathématique du Haut Fourneau (MMHF) est la description mathématique du fonctionnement du haut fourneau développée par L'Institut de Recherche de la Sidérurgie Française (IRSID), prédécesseur de l'actuel centre de recherche d'ArcelorMittal à Maizières-Les-Metz. C'est à la base un système de dix-sept équations linéaires traduisant les bilans matières et énergie pour différents composants chimiques, résolu numériquement. Comme précédemment, en se basant sur des considérations thermodynamiques, le haut fourneau a été subdivisé en deux zones (figure 13).



Figure 13 : Division du haut fourneau en deux zones et les flux de matières qui les lient.

- La partie supérieure, zone de préparation, où la réduction des oxydes de fer (hématite et magnétite) a lieu. Elle inclut la zone de réserve thermique et la zone de réserve chimique (T ≈ 950 °C). En bas de cette zone, le système FeO-Fe-CO-CO2 est proche de l'équilibre chimique et thermique.
- La partie inférieure, zone d'élaboration, où la combustion du carbone a lieu, la réduction des oxydes de fer se poursuit jusqu'à ce qu'elle soit complète. Les éléments solides sont fondus et ensuite envoyés pour être évacués du fourneau. Elle inclut aussi la zone cohésive.

Les deux sections sont interconnectées par des flux de matières et de gaz.

Cette subdivision du haut fourneau en deux parties est tout à fait correcte puisque les bilans matières et énergie dans chaque zone sont consistants avec la continuité des bilans massiques et thermiques des deux zones. Pour que cela reste vrai, il faut que certaines conditions soient vérifiées :

- la masse de chaque élément sortant de la zone supérieure doit être égale à la masse qui rentre dans la zone inférieure.
- L'enthalpie de la charge sortante de la zone supérieure doit être égale à l'enthalpie rentrante dans la zone inférieure.

Le modèle se présente sous la forme de bilans matières et énergie dans les deux zones. Les équations traduisant les bilans de matières sont : • Bilan d'oxygène de la zone d'élaboration :

$$\begin{split} m^{0}_{Oxydes \, de \, Fer} + m^{0}_{Humidit\acute{e}} + m^{0}_{Autres \, Compos\acute{e}s \, Entr\acute{e}s \, Haute \, ZE} \\ &= m^{0}_{Sortie \, Basse \, ZE} + m^{0}_{Fe2O3} + m^{0}_{Oxydes \, de \, Carbone \, Sortie \, Haute \, ZE} \\ &+ m^{0}_{Poussières \, Sortie \, Haute \, ZE} \end{split}$$

• Bilan du carbone du coke

$$m_{Coke}^{C} = \%C. m_{Coke} = m_{Réduction \ des \ Oxydes}^{C} + m_{Oxydes \ de \ Carbone}^{C}$$

• Bilan d'azote :

$$m_{Vent}^{N2} = m_{Gueulard}^{N2}$$

• Bilan d'oxygène de la zone de préparation :

$$m_{Oxydes\ de\ Fer}^{O} + m_{Vent}^{O} + m_{Humidit\acute{e}\ Entr\acute{e}\ ZP}^{O} + m_{Autres\ Composés\ Entrée\ ZP}^{O}$$
  
=  $m_{Oxydes\ de\ Carbone}^{O} + m_{Humidit\acute{e}\ Sortie\ ZP}^{O}$ 

Consommation du vent sec

$$Conso_{Sec}^{Vent} = Conso_{Combustion}^{Vent} + Conso_{Réduction}^{Vent}$$

Débit de vent sec

$$V_{Sec}^{Vent} = 4,76. (V_{Combustion}^{O} + V_{Réduction}^{O} - V_{Gaz \ de \ Suroxygénation}^{O})$$

- Taux d'injection :
- Taux de vapeur d'eau :

$$Taux_{Vapeur Eau} = \frac{V_{Humidit\acute{e}}^{Vent}}{V_{Humide}^{Vent}}$$

- Taux d'oxygène de suroxygénation : paramètre imposé
- Débit de gaz de gueulard humide

$$V_{Humide}^{Gueulard} = V_{Sec}^{Gueulard} + V_{Vapeur Eau}^{Gueulard}$$

• Production de fonte

$$m_{Oxydes \ de \ Fer}^{Fe} + m_{Ferraille}^{Fe} = m_{Fonte}^{Fe} + m_{Laitier}^{Fe} + m_{Poussières}^{Fe}$$
  
 $m_{Fonte} = 1000 \text{ kg}$ 

Les équations traduisant les bilans d'énergie sont :

 Bilan thermique de la zone de préparation à partir du rapport entre les besoins d'échauffement de la charge à 950°C et l'enthalpie du gaz présent au niveau de la zone de réserve chimique :

$$Q_{Chaleur}^{Charge\,950^{\circ}C} = Q_{Chaleur}^{Gaz}$$

Bilan thermique de la zone de préparation à partir de la température du gueulard :
  $Q^{Gaz}_{Chaleur \ Entrée \ Basse \ ZP}$ 

$$= Q_{Chaleur Gueulard}^{Gaz} + Q_{Chaleur Sortie Basse ZP}^{Charge 950^{\circ}C} + PT_{Zone Préparation}$$

• Bilan thermique de la zone d'élaboration :

 $Q_{Chaleur Entrée Haute ZE}^{Chaleur Entrée Haute ZE} + Q_{Chaleur Combustion ZE}^{Gaz}$ =  $Q_{Chaleur Sortie Haute ZE}^{Gaz} + Q_{Chaleur Sortie Basse ZE}^{Fonte+Laitier}$ +  $PT_{Zone Elaboration}$ 

• Bilan thermique de la zone des tuyères :

 $Q_{Chaleur\ Combustion}^{Gaz} = Q_{Chaleur\ Gueulard}^{Gaz} + Q_{Chaleur\ Sortie\ Basse\ ZP}^{Charge\ 950^{\circ}C}$ 

• Pertes thermique totales :

$$PT_{Deux Zones}^{Totale} = Q_{Chaleur Produite}^{Totale} - Q_{Chaleur Consommée}^{Totale}$$

La répartition de ces pertes entre la zone de préparation et élaboration :

 $PT_{Totale} = PT_{Zone \ Préparation} + PT_{Zone \ Elaboration}$  $PT_{Zone \ Préparation} = \% \ (PT_{Zone \ Préparation}) \cdot PT_{Totale}$ 

Cette formulation mathématique du haut fourneau lui confère une grande flexibilité. Elle permet de faire des travaux de prospection ainsi que l'examen et l'analyse des résultats du fonctionnement du haut fourneau.

#### b) Le logiciel ASPEN Plus

ASPEN Plus pour <u>A</u>dvanced <u>S</u>ystem for <u>P</u>rocess <u>Eng</u>ineering est un logiciel de diagramme de flux (bilans de masse et d'énergie) utilisé en génie des procédés. Il permet, en régime permanent, de simuler des procédés industriels complets (sidérurgiques, de production de l'électricité, chimiques, pétrochimiques de cimenterie, etc.) et de les décrire en prenant en considération un grand nombre de paramètres physico-chimiques et en respectant les bilans de matière et d'énergie.

Il a été initialement développé, dans les années 1970, au Massachussetts Institute of Technology (MIT) dans le cadre de recherche en collaboration avec le département de l'énergie américain. Le fruit de ces travaux de recherche a été ensuite repris par la société ASPEN Technology qui a poursuivi son développement et l'a commercialisé. De par sa grande flexibilité et son large spectre d'applications, il est utilisé aujourd'hui dans le monde entier en recherche et dans l'industrie pour des études de dimensionnement et de simulation.

C'est un outil de simulation 0D ou 1D, c'est-à-dire qu'il ne prend pas en compte la géométrie des procédés, à l'exception d'une dimension (hauteur de colonne, longueur de conduite).

Son utilisation est basée sur l'utilisation d'unités opératoires. Chaque unité correspond à une opération unitaire par exemple réaction chimique, mixeur, séparateur,
échangeur de chaleur, distillateur, pompe.... Il dispose de bases de données et de modèles de calculs de propriétés physiques et chimiques des éléments ou de groupes d'éléments dans une même phase. Il permet la prise en compte de mélanges solide-solide, solide-liquide, solide-liquide-gaz, etc.

Il est construit autour d'une architecture séquentielle. Chaque opération unitaire est représentée par un sous-programme (intégré dans le logiciel) auquel on fournit les paramètres nécessaires, comme les données opératoires (températures, pressions, débits volumiques, massiques...) et qui, à partir de celles-ci, calcule les données de sortie. Ces programmes ont été écrits dans le respect du fonctionnement usuel de chaque unité. Une fois le procédé industriel décomposé en sous modules, ces derniers sont connectés entre eux via des flux de matières et d'énergie.

Il permet également de procéder à des études plus poussées, du type optimisation économique en prenant en compte les différentes contraintes économiques imposées au procédé étudié. Il offre un large choix de méthodes de calculs et est très flexible, notamment grâce à des fonctionnalités comme les Design Spec ou Calculator qui servent à imposer des spécifications sur certaines variables en faisant varier d'autres. On peut également y inclure des sous-programmes utilisateurs écrits en FORTRAN ou des couplages avec Excel.

## I – 5 Le modèle ASPEN Plus du haut fourneau.

Il convient de rappeler que ce travail de recherche s'inscrit dans la continuité des travaux antérieurs menés au sein de l'IJL. Par conséquent, cette étude a pu bénéficier des résultats de ces travaux et notamment de ceux réalisés par A.-M. losif (2006).

Le modèle développé traduit sous ASPEN Plus le Modèle Mathématique du Haut Fourneau (MMHF). Il s'agit d'un modèle de type systémique. Son principe, avec la division en zones de préparation et d'élaboration, est rappelé figure 10. Notre objectif n'était pas de faire des simulations 3D et de fournir des cartographies de température, flux de matières et compositions mais plutôt d'avoir un inventaire des entrées sorties (masses et énergie) avec le maximum de précision pour ensuite pouvoir connecter ce modèle à l'ensemble des autres modèles des procédés formant la filière complète.

La littérature fait état de nombreux modèles destinés à simuler le fonctionnement du haut fourneau. Les plus sophistiqués sont basés sur des approches de modélisation multiphysiques du type MFN (mécanique des fluides numériques, CFD en anglais). Parmi ces études, on citera Hatano and Kurita (1980), Sugiyama and Sugata (1987), Takatani et al. (1994), Austin et al. (1997a, 1997b). Ces derniers proposent un modèle mathématique dans lequel en plus des solides, des gaz et de la phase liquide, est prise en compte une quatrième phase, celle des poussières : les flux de matières, les échanges thermiques et les réactions

36

entre les quatre phases, y compris les interactions interphases, sont calculés simultanément. Plus récemment, une autre approche, basée sur la modélisation systémique, a été adoptée par Schultmann et al. (2004) pour décrire le haut fourneau. Cette approche systémique, plus simple, est plus pertinente quand le réacteur peut être subdivisé en sections selon les phénomènes physico-chimiques qui se manifestent. Dans leur modélisation, Schultmann et al. ont considéré les réactions à l'équilibre thermodynamique (réacteur de Gibbs).

Dans notre modèle, les 17 équations du modèle MMHF sont reprises et résolues. Toutes les réactions chimiques importantes sont prises en compte en suivant une approche dite stoechiométrique et non cinétique : on se donne des taux de conversion pour chaque réaction. Par exemple, en bas de la zone de préparation, la conversion d'hématite en magnétite est totale et la conversion de la wüstite s'approche de celle de l'équilibre wüstite / fer, avec un écart à l'équilibre (ou idéalité) donné par le facteur  $\omega$ . En zone d'élaboration, les réactions se poursuivent jusqu'à obtenir la composition de la fonte visée.



Figure 14 : le sectionnement du haut fourneau en deux zones ainsi que les flux de matières qui les lient.

### a) Entrées – sorties du modèle

Un certain nombre de paramètres est nécessaire pour la marche du modèle. Ces données sont introduites dans le modèle et à partir de celles-ci d'autres grandeurs physiques sont calculées qui constituent les sorties du modèle. Toutes les valeurs correspondent à la production d'une tonne de fonte. Le modèle est en régime permanent. Le tableau ci-dessous récapitule les entrées-sorties du modèle Aspen (figure 15).



## Figure 15 : Paramètres d'entrées nécessaires au modèle ASPEN et données de sorties, calculées par le modèle.

Grâce au modèle, on peut prédire les performances du haut fourneau sous différentes conditions opératoires. Ainsi, on peut analyser l'effet de la variation d'un ou plusieurs paramètres d'entrée et par exemple tester différents combustibles (charbon

pulvérisé, fuel ou gaz naturel) ou l'influence d'une modification de la composition de la charge minérale.

#### b) Principe général du calcul

Les bilans thermiques supposent une température de la fonte connue et la quantité de coke est calculée comme celle nécessaire pour boucler les bilans. Pour les bilans matières, c'est la donnée 1 tonne de fonte et sa composition qui est utilisée pour déterminer les entrées de la charge minérale qui feront boucler les bilans de masse.

Toutes ces données d'entrées sont introduites dans une feuille de calcul Excel intégrée au modèle Aspen. Aspen récupère les données de ce fichier et ensuite les affecte aux paramètres correspondants pour pouvoir faire les calculs assurés par les Calculators (sous-programme en Fortran) et les Design Spec.

### I – 6 Validation du modèle

#### a) Travaux antérieurs

Ce modèle, tel que développé par A.-M. Iosif, a été validé par comparaison de certains résultats calculés à des données industrielles de marche d'usine (cas de l'usine de Sollac-Fos) ou de données de la littérature (haut fourneau standard considéré par le groupe SP9 du projet ULCOS). Les résultats de cette validation figurent dans losif et al. (2006) et Mirgaux (2009).

#### b) Nouvelle validation

Au début de notre étude, nous avons repris le modèle haut fourneau et lui avons apporté quelques premières modifications pour y inclure de nouvelles fonctionnalités, notamment la possibilité d'injecter du fioul lourd au lieu du charbon pulvérisé. Il nous a fallu modifier et rectifier le calculateur CDFONTE, pour correctement tenir compte de la quantité du carbone qui provient du fioul.

Pour conforter la validation du modèle, nous avons entrepris de simuler le fonctionnement du haut fourneau Voestalpine en Autriche, dont les données de marche nous ont été communiquées par Voestalpine sur la base d'un formulaire que nous leur avions adressé.

Malheureusement, les données recueillies n'étaient en l'état pas satisfaisantes pour aboutir à une simulation correcte, ce que nous avons attribué à certaines incohérences entre certaines de ces données. En effet, une vérification à l'aide de l'outil MMHF nous a montré que le bilan matière n'était pas été vérifié et que la valeur des pertes thermiques mesurée n'était pas cohérente pour assurer le fonctionnement du haut fourneau. Les deux paramètres influents sur lesquels nous pouvions jouer étaient, d'une part, la répartition des pertes thermiques entre zone de préparation et zone d'élaboration (la seconde, dont la température est globalement plus élevée et la surface externe plus grande représentant la majeure partie des pertes) et, d'autre part, l'écart à l'idéalité  $\omega$ , paramètre bien sûr non mesuré et qui reflète l'efficacité de la pré-réduction en zone de préparation. Nous avons donc considéré deux scénarios (tableau 1). Le premier se base sur l'hypothèse que les pertes mesurées sont bonnes, avec une répartition supposée de 85 % pour la zone d'élaboration et 15 % pour la zone de préparation, et avec un écart à l'idéalité fixé à 0,055, et le deuxième sur l'hypothèse d'un écart à l'idéalité plus classique, pris à 0,017 et de pertes thermiques estimées à 350 MJ (avec D. Sert, ArcelorMittal) avec une répartition de 90 % pour la zone d'élaboration et 10 % pour la zone de préparation.

	Scenario 1	Scenario 2
Oméga	0,055	0,017
Pertes MJ	235	350
Répartition (%) parties inférieure/supérieure	85 / 15	90 / 10

### Tableau 1 : Extrait des données des deux scénarios de validation.

Faute de données plus fines, nous n'avons pu trancher entre ces deux scénarios qui donnent des résultats globalement voisins et satisfaisants. Le tableau 2 récapitule ces résultats. Toutes les valeurs sont relatives à la production d'une tonne de fonte.

Produits	Valeurs expérimentales	Scénario 1	Scenario 2	Erreurs relatives* [%]	Erreurs relatives* [%]
Fonte					
Composition [%mass.]					
С	4,424	4,426	4,426	0,0	0,0
Si	0,387	0,387	0,387	0,0	0,0
Mn	0,742	0,756	0,756	-1,9	-1,9
Р	0,073	0,039	0,039	46,6	46,6
S	0,054	0,054	0,054	0,0	0,0
Laitier [kg]	267,1	252,3	251,8	5,5	5,7
Composition [%mass.]					
CaO	36,25	35,30	35,30	2,6	2,6
MgO	9,27	9,95	9,97	-7,4	-7,6
AL <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10,82	11,09	11,05	-2,5	-2,2
SiO <sub>2</sub>	37,44	38,48	38,45	-2,8	-2,7
Na <sub>2</sub> O	0,49	0,30	0,3	39,1	39,3
K <sub>2</sub> O	1,42	1,48	1,48	-4,2	-4,2
CaO/SiO <sub>2</sub>	0,97	0,92	0,92	5,2	5,2
Gaz du gueulard [Nm <sup>3</sup> ]	1523	1549	1544	-1,7	-1,4
Température du gaz [°C]	149	144	143	3,0	4,1
Composition [%vol]					
СО	21,81	22,48	21,11	-3,1	3,2
CO2	22,51	22,33	23,20	0,8	-3,1
H2	4,40	4,65	4,66	-5,6	-5,8
N2	51,28	50,54	51,03	1,4	0,5
Rendement CO	0,49	0,50	0,48	-2,0	3,2
Rendement H <sub>2</sub>	N/A	0,41	0,41		
Charge minérale [kg]	1607	1643	1643	-2,3	-2,3
Coke (sec) [kg]	374	371	365	1,0	2,4
Volume du vent [Nm <sup>3</sup> ]	1003	924	930	7,8	7,2

Tableau 2 : Résultats des simulations de validation.

Nous constatons que les erreurs relatives entre les valeurs obtenues et les valeurs mesurées sont majoritairement autour de 5 %, à l'exception du cas de P et de Na<sub>2</sub>O où on trouve des écarts très importants que nous allons commenter. Il faut avoir à l'esprit qu'il s'agit d'une comparaison de données industrielles moyennées (une moyenne sur 28 jours dans notre cas).

La quantité de coke nécessaire pour produire une tonne de fonte à 1476°C calculée par le premier scénario est de 370 kg et par le deuxième on trouve 365 kg, alors que la valeur industrielle est de 374 kg. Le léger écart peut provenir de la valeur d'  $\omega$  utilisée, de la non prise en compte des poussières ainsi que la valeur expérimentale du pouvoir calorifique du coke.

Concernant  $\omega$ , on note que le premier scénario, avec un  $\omega$  faible, donne ici une valeur de la consommation en coke plus proche de la valeur mesurée que le second. On observe que la composition du gaz du gueulard, dont la prédiction nous intéresse au premier chef pour la suite de ce travail, est bien reproduite. Les valeurs calculées par le modèle sont très proches des valeurs mesurées, avec des erreurs relatives inférieures ou égales à 3 % pour CO, CO<sub>2</sub> et N<sub>2</sub> et 5 % pour H<sub>2</sub>.

Pour le laitier et sa composition, les teneurs en CaO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et SiO<sub>2</sub> sont très proches des valeurs industrielles tandis que la teneur en MgO s'écarte légèrement de la valeur mesurée. Ces éléments sont apportés principalement par le minerai et les boulettes. Ces erreurs résultent vraisemblablement des approximations faites sur les compositions.

Le grand écart constaté au niveau de Na<sub>2</sub>O, provient de la non vérification du bilan matière pour ce composé si l'on s'en tient aux chiffres « usine » obtenus. En effet, la quantité de Na<sub>2</sub>O enfournée est de 773 g alors qu'en sortie, on note 1319 g, alors même que ce composé est normalement inerte dans le haut fourneau. Nous avons pour la simulation pris comme valeurs d'entrée 773 g. A la sortie on calcule environ 770 g. L'écart calcul/mesures est donc bien imputable aux mesures dans ce cas. Sachant que Na<sub>2</sub>O est apporté par 3 flux (minerai, boulettes et aggloméré) et est récupéré au niveau du laitier, on peut supposer que la principale cause de cet écart réside dans les incertitudes de mesures. A l'entrée on a trois sources d'erreurs alors qu'à la sortie on n'en a qu'une.

Il est à noter que les valeurs utilisées pour le pouvoir calorifique inférieur du coke et  $\omega$  influencent directement la composition et la température finale du gaz de gueulard, ainsi que la masse de coke nécessaire.

Les résultats relatifs à la fonte et sa composition sont bons à l'exception de la teneur en P. Rappelons que le principe du calcul est de viser une composition connue de la fonte mais que celle-ci est cependant recalculée pour que l'ensemble des bilans soient satisfaits. On doit ici à nouveau faire remarquer que les données usine ne vérifient pas le bilan matière

42

pour cet élément : on fait entrer 886 g de P et à la sortie on mesure 730 g. A l'encontre de Na<sub>2</sub>O, le phosphore réagit dans le haut fourneau selon les deux réactions suivantes :

$$P_2O_5 + 3 \text{ CaO} \rightarrow \text{ Ca}_3P_2O_8$$

 $Ca_{3}P_{2}O_{8} + 5C \rightarrow 5CO + 3CaO + P_{2}$ 

Les données recueillies ne précisent pas à quelles formes (P, P<sub>2</sub>, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) du phosphore elles correspondent. Finalement, même après avoir testé toutes les possibilités, il n'a pas été possible de vérifier le bilan en P à partir des données expérimentales.

## I – 7 Conclusion

En conclusion, exception faite des teneurs en P de la fonte et Na<sub>2</sub>O du laitier qui différent significativement entre mesures et calculs mais pour lesquelles les données mesurées peuvent être légitimement remises en question, on peut considérer que la simulation du fonctionnement du haut fourneau de Voestalpine est satisfaisante. Elle constitue, en sus de celles effectuées antérieurement à notre étude, une nouvelle validation du modèle de haut fourneau sous Aspen Plus et montre que celui-ci est suffisamment robuste pour traiter des installations différentes.

## II - Haut fourneau à recyclage

## **II – 1 Introduction**

Le haut fourneau à recyclage est une manière alternative de faire fonctionner le haut fourneau qui présente des avantages majeurs par rapport au haut fourneau classique. Il permet de :

- réduire les émissions de CO2 en réduisant la mise au mille coke ;
- réduire simultanément la consommation énergétique nécessaire pour produire la fonte.

L'idée du recyclage consiste à partir d'un haut fourneau classique en l'adaptant pour que le recyclage du gaz du gueulard soit possible sans que la marche ne soit perturbée ou qu'apparaissent des problèmes liés à un fonctionnement qui représenterait un danger. La figure suivante (figure 16) donne un schéma conceptuel du nouveau procédé. Le principe est de faire recirculer le gaz du gueulard et, après avoir capturé le  $CO_2$  qu'il contient, de réinjecter le mélange riche en CO et H<sub>2</sub> au niveau des tuyères et, éventuellement, au niveau du ventre (shaft en anglais, plus haut). Pour éviter que N<sub>2</sub> (50 % environ du gaz de gueulard en fonctionnement normal) ne s'accumule dans le système, il est en outre nécessaire d'opérer le haut fourneau sous O<sub>2</sub> et donc d'injecter de l'oxygène au lieu de l'air. Il faut aussi trouver le bon moyen de préchauffer le gaz recyclé et / ou l'oxygène injecté.



Figure 16 : Schéma de principe d'un haut fourneau à recyclage avec système de capture du CO<sub>2</sub> et réinjection à deux niveaux.

#### II – 2 Intérêt de la technologie du recyclage

Le pouvoir réducteur du gaz sortant du haut fourneau n'est pas totalement épuisé. En effet, en marche classique seulement la moitié du monoxyde du carbone, gaz réducteur, est utilisé pour la réduction indirecte de la charge (Nogami, 2005). Le gaz de gueulard est ainsi typiquement composé de 51% de N<sub>2</sub>, 23% de CO<sub>2</sub>, 22% CO et 4% de H<sub>2</sub>.

Le haut fourneau avec recyclage permet d'exploiter ce manque à gagner en réinjectant une partie de ce gaz dans le fourneau. En faisant ainsi on réduit la mise au mille coke et par conséquent la quantité émise de  $CO_2$  par tonne de fonte. Cette technique permet de réaliser jusqu'à 100 kg (de 400 à 300 kg/t<sub>fonte</sub>) d'économie dans la consommation du carbone, ce qui représente une réduction de 25% des émissions de  $CO_2$  sans stockage de  $CO_2$  et 75% avec stockage (J-P. Birat, 2008).

Bien qu'elle soit d'actualité, l'idée de recycler les gaz de gueulard n'est pas réellement nouvelle puisque, comme le rappellent Van Der Stel et coll. (2013) dans un article récent, Lance avait préconisé dès 1920 l'injection de gaz réducteur chaud au bas du haut fourneau.



Figure 17 : Historique du recyclage des gaz de gueulard (van der Stel, 2013).

Le fonctionnement du haut fourneau est cependant profondément modifié et plusieurs tentatives, sous différentes configurations (cf figure 17) ont été testées sans s'avérer concluantes, en dépit de réels gains sur la mise au mille coke. La seule exploitation commerciale du concept fut celle de Toulachormet en URSS à la fin des années 1980. Le

gaz décarbonné recyclé était réchauffé à 1200°C dans les cowpers (système de chauffage des gaz), la consommation de coke avait diminué de 39%, mais les tuyères étaient très endommagées. Plus récemment, le concept a été repris dans le cadre du projet ULCOS (ULCOS TGR-BF, 2004-2010) en vue de réduire les émissions de CO<sub>2</sub> sidérurgiques.

Les études conduites dans ce cadre ont comporté un volet modélisation (simulation à l'aide du modèle Mogador) et un volet expérimental (essais sur pilote LKAB-MEFOS dit EBF – Experimental Blast Furnace – à Lulea, en Suède).

## II - 3 Campagnes au haut fourneau pilote de Lulea

Ce haut fourneau permet la production d'1,5 t de fonte par heure. Il a été modifié pour les tests ULCOS de 2007 et 2010 afin de permettre un fonctionnement avec recyclage. A cette fin, de nouvelles unités de traitement chimique et thermique des gaz ont été connectées à l'installation classique, dont :

- une unité pour le chauffage de gaz injectés au niveau des tuyères et du ventre,
- une unité pour la séparation du CO<sub>2</sub> du gaz du gueulard. La technologie retenue, proposée par Air Liquide, est le VPSA (Vacuum Pressure Swing Adsorption), une technologie basée sur des cycles d'adsorption / désorption contrôlés par des variations de pression.

Le haut fourneau était pour les essais alimentés à 70% en aggloméré et 30% en boulettes. L'injection de charbon pulvérisé (Pulverized Coal Injection, PCI) a varié de 130 à 170 kg/t<sub>fonte</sub>. Le haut fourneau était mis en route et stabilisé en marche normale, avant de basculer vers une marche avec recyclage à 1 ou 2 niveaux. 4 versions on été testées :

- V1 : le gaz recyclé est injecté à deux niveaux, pour partie, froid aux tuyères, avec l'oxygène et le PCI et, pour partie, chaud au ventre du haut fourneau,
- V2 : le gaz recyclé est réchauffé en 2 étapes, avec un échangeur et un réacteur d'oxydation partielle. Cette version était difficile à faire fonctionner et donnait de moins bons résultats, elle a été abandonnée,
- V3 : le gaz recyclé et réchauffé est entièrement injecté à un seul niveau aux tuyères, avec l'oxygène et le PCI,
- V4 : le gaz recyclé est injecté chaud à deux niveaux, pour partie aux tuyères avec l'oxygène et le PCI et pour partie au ventre.

La figure 18 montre les principaux résultats opératoires obtenus lors de la campagne de 2007. La courbe bleue figure la consommation totale (coke + PCI) par tonne de fonte, la courbe verte le débit total de gaz recyclé ( $Nm^3/t_{fonte}$ ) et la bleue le gain relatif sur la

consommation en carbone totale. Les oscillations reflètent les modifications des conditions opératoires. On note que le gain sur la mise au mille carbone augmente avec le débit de gaz recyclé et qu'il lui est assez bien corrélé. On observe aussi que la consommation en réducteurs (coke + PCI) passe de 530 kg/t<sub>fonte</sub> en marche normale à 470 avec un recyclage à 1 niveau et à 410 avec un recyclage à 2 niveaux, configuration qui dans ce cas donne les meilleurs résultats mais avec un débit total de gaz recyclé supérieur.



Figure 18 : Résultats de la campage d'essais de 2007, bleu (réducteurs), vert (gaz recyclé) et rouge (gain en carbone) (Van der Stel, 2013).

La figure 19 correspond aux essais en versions 1 et 3 de la campagne de 2009 et montre des résultats encore meilleurs, sans doute dus à l'expérience acquise qui a permis d'optimiser les marches avec recyclage. On baisse la consommation en réducteurs jusqu'à 400 kg/t<sub>fonte</sub>. Les résultats en version 4, à 2 niveaux et pour les mêmes débits de recyclage, sont voisins (de l'ordre de 410 kg/t<sub>fonte</sub>).



Figure 19 : Résultats de la campagen d'essais de 2007, bleu (réducteurs), vert (gaz recyclé) et rouge (gain en carbone) (Van der Stel, 2013).

Ces campagnes ont donc démontré qu'il était, à l'échelle du pilote, possible de faire fonctionner de manière stable et tout à fait satisfaisante, sans problème opératoire notable, un haut fourneau à recyclage. Le gain sur la consommation en carbone a atteint 25% en version 3. La réduction des émissions de  $CO_2$  au niveau du haut fourneau est identique. Si l'on tient compte du fait que le gaz recyclé n'est plus disponible comme source d'énergie dans le reste de l'usine intégrée et qu'il doit être remplacé dans cette fonction par du gaz naturel, le gain en  $CO_2$  est de 15% pour 1 t de bobine laminée à chaud. Si le  $CO_2$  capturé est stocké (Carbon Capture and Storage, CCS) on obtient une réduction de 60% des émissions de  $CO_2$  par rapport à une usine intégrée utilisant un haut fourneau conventionnel (van der Stel, 2013).

## II - 4 Etude bibliographique du haut fourneau à recyclage

Comme le haut fourneau à recyclage est un procédé relativement récent, les travaux de recherche sur le sujet restent encore très limités. Dans ce qui suit nous passons en revue les principales publications traitant le sujet.

#### a) Travaux ULCOS

Dans le cadre de la première phase du projet ULCOS (ULCOS –I, allant de 2004 jusqu'à 2009) qui était principalement axée sur la recherche scientifique, des travaux de simulations ont été conduits afin, dans un premier temps, de concevoir et développer des procédés et, dans un deuxième temps, de valider les choix en se basant sur plusieurs critères, la stabilité du/des nouveau(x) procédé(s) dans leurs nouvelles versions, le potentiel de réduction des émissions de CO<sub>2</sub>, la consommation d'énergie, l'impact sur l'environnement

MOGADOR, outil de simulations, développé par ArcelorMittal en interne, a été utilisé pour conduire ces études. Il est basé sur la méthode des volumes finis. Grâce à cet outil numérique, de nouveaux procédés ont été simulés sous différentes configurations et hypothèses et ensuite comparés et validés. La figure 16 donne un exemple de résultats de simulations pour le haut fourneau avec différents points d'injection du gaz recyclé.



Figure 20 : Résultats de calculs pour des injection à différents niveaux en utilisant l'outil Mogador (van der Stel, 2013).

#### b) Etude de Nogami et al. (2005)

Nogami et al. (2005) ont développé un modèle mathématique 2D, résolu numériquement par une méthode du type volumes finis. Ce modèle est issu de celui de Austin et al. (1997a et b) et prend en considération quatre types de phases : solide, liquide, gaz et poussières. Les auteurs ont repris ce modèle pour, d'une part, l'améliorer sur certains aspects et, d'autre part, pour s'en servir afin de comparer le fonctionnement d'un haut fourneau classique avec celui d'un haut fourneau à recyclage. On note cependant que dans la simulation présentée, le recyclage du gaz du gueulard est associé à d'autres changements : ajout de déchets plastiques aux tuyères à la place du PCI et introduction d'aggloméré composite contenant des fines de charbon. Enfin, le recyclage s'effectue à 2 niveaux : avec l'oxygène et le PCI aux tuyères et au niveau de la cuve après réchauffage par oxydation partielle. Il n'y a pas de données fournies sur les quantités et les positions d'injections.

La figure 21 compare la progression du degré de réduction global de la charge pour les deux configurations. On remarque que les lignes d'iso-réduction, dans le cas avec recyclage, sont, à partir de 0,3, bien resserrées et que la réduction est quasi-achevée bien plus haut. Cela s'explique par le fait que dans le cas du recyclage, on a une concentration en gaz réducteurs bien plus élevée que dans le cas classique (cf figure 23 plus loin), ce qui permet d'effectuer la réduction de la charge plus rapidement que dans le cas conventionnel, malgré une température inférieure (figure 22).



Figure 21 : Cartes du degré de réduction de la charge.

Les courbes en trait discontinus représentent les limites de la zone cohésive. On remarque que dans le cas avec recyclage, les courbes se déplacent très nettement vers le bas. C'est un effet du fort changement de la thermique du four, comme l'illustre la figure 22.



Figure 22 : distribution des températures à l'intérieur du haut fourneau en °C.

La figure 23 compare les concentrations en CO et H<sub>2</sub>. Dans le cas conventionnel, à la sortie des tuyères, le gaz contient 35% de CO et 2% de H<sub>2</sub>, le complément étant de l'azote. Ces résultats sont en parfaite cohérence avec les données fournis par Philbert (1997) (la même répartition des gaz au niveau des tuyères) et aussi avec les résultats de nos simulations (voir partie résultats recyclage). Dans le cas avec recyclage on remarque que la teneur en ces réducteurs augmente considérablement, ce qui correspond à la fois à l'apport supplémentaire par le gaz recyclé et à l'absence d'azote. L'augmentation de la teneur en hydrogène résulte de l'injection des plastiques. On note qu'avec recyclage une large zone du four, entre la fin de la réduction et la zone cohésive, semble comme inutilisée. Le fonctionnement du haut fourneau est clairement modifié dans son ensemble.



Figure 23 : Distribution de la concentration de CO et H2 en % molaire

Les auteurs soulignent en conclusion tout l'intérêt du recyclage : dans leur cas, une augmentation de la productivité de 14%, une baisse de la consommation en agents réducteurs de 2,5% et une baisse de la quantité en carbone sortant de 43%.

#### c) Etude de Wu et al. (2011)

L'étude de Wu et al. (2011) ne concerne pas directement le haut fourneau mais le four à cuve de pré-réduction du procédé COREX. Ce procédé alternatif au haut fourneau réalise l'élaboration de la fonte en deux réacteurs. Dans le second, on termine la réduction et on fond la charge sortant du premier réacteur tandis qu'on brûle et gazéifie du charbon. Dans le premier on pré-réduit la charge ferrifère par les gaz réducteurs issus du second. On obtient un pré-réduit solide wüstite-fer. Ce réacteurs est donc voisin des fours de réduction directe et de la zone de préparation du haut fourneau. C'est pour cette raison et aussi parce que les auteurs se sont intéressés au recyclage du gaz de gueulard de ce réacteur que ce travail est mentionné ici.

Les auteurs ont développé un modèle mathématique bidimentionnel en régime permanent du four de préréduction, qui inclut la prise en compte des écoulements du gaz et du solide, les échanges thermiques et la réduction du gaz à l'eau. Après avoir validé leur modèle ils ont optimisé une introduction du gaz réducteur à 2 niveaux 20% aux tuyères habituelles et 80% plus bas dans le réacteur, juste au-dessus de l'extraction du pré-réduit. Enfin, point qui nous interesse plus directement, ils ont comparé le fonctionnement « normal » de ce four optimisé avec un cas où le gaz de gueulard (38% CO, 36% CO<sub>2</sub>, 13% H<sub>2</sub>, 13% H<sub>2</sub>O) est recyclé après élimination du CO<sub>2</sub> et de l'eau. Ce gaz est réchauffé à 927 K et complété par un gaz réducteur frais à 1323 K issus du four de fusion –gazéification pour obtenir un mélange à 1123 K comme en fonctionnement normal. Le besoin en gaz frais en réduit de 51% ce qui, d'après les auteurs, devrait entrainer une baisse de 540Nm<sup>3</sup>/t<sub>fonte</sub> des émissions de CO<sub>2</sub> du procédé global.

La figure 24 synthétise les résultats obtenus en ce qui concerne le fonctionnement interne du four avec et sans recyclage des gaz de gueulard.



Figure 24 : Résultats de simulation, a) distribution de la fraction massique de CO, b) distribution de la fraction massique de H<sub>2</sub>, c) distribution de température des solides, d) distribution du degré de réduction de la charge, dans le cas classique et avec recyclage.

Le champ de température (figure 24 c) est globalement peu affecté par le recyclage sauf au bas du réacteur. On note par contre que le degré de réduction (FeO en Fe, figure 24 d) est significativement amélioré par le recyclage : +12% en moyenne et avec une réduction de l'hétérogénéité radiale. Ceci est dû à l'augmentation de la teneur en CO et H<sub>2</sub> au niveau des injections et en particulier de celle située au bas du four (figure 24 a et c).

Compte-tenu de la température élevée régnant dans cette zone, la cinétique de réduction y est favorisée. L'effet est moindre dans la partie supérieure, plus froide. Pour H<sub>2</sub>, la zone de réduction efficace est moins étendue qu'avec CO parce qu'H<sub>2</sub> est plus réactif et est consommé plus près de son introduction. On remarquera que l'augmentation de la teneur en H<sub>2</sub> et CO avec recyclage par rapport au cas sans recyclage est bien moindre que dans le d'un haut fourneau, ceci provient du fait que le four de pré-réduction est exempt d'azote, même en configuration sans recyclage. On ne peut pas bien sûr comparer directement ces résultats avec ceux (Nogami et coll., 2005) relatifs au haut fourneau puisque les réacteurs sont différents mais on constate ici aussi l'intérêt du recyclage pour améliorer l'avancement de la réduction en phase solide par le gaz.

#### d) Etude Zhang et al. (2010)

Zhang et al. (2010) ont adopté une approche similaire à la nôtre, basée sur la modélisation systémique du haut fourneau en utilisant ASPEN Plus. Leur approche se base sur l'utilisation de réacteurs dans lesquels, les réactions sont considérées à l'équilibre (réacteur dit de Gibbs dans Aspen Plus). Hormis les flowsheets du haut fourneau, peu de détails sont donnés sur la modélisation elle-même. Celle-ci ne considère pas l'usine dans son ensemble, simplement le haut fourneau dans 3 configurations : classique, haut fourneau à recyclage sous air et haut fourneau fonctionnant sous oxygène pur. Le tableau ci-dessous rapporte les principaux résultats obtenus par les auteurs.

-	Conventional BF <sup>a)</sup>	TGR BF	Oxygen-BF	Unit
C demanding	453.72	404.50	431.60	kg/THM
Thermal reserve zone $T$	1000	1050	700-850	°C
Exit C as CO <sub>2</sub>	261.68	48.85	143.92	kg/THM
C for downstream	192.04	355.65	287.68	kg/THM
BFG enthalpy	3431.91	3982	3896.15	$kJ/M^3$
Heat lost	451.64	474.2	338.73	MJ/THM
BF efficiency	42.75	44.37	49.16	kg/THM

a) Concluding from on site data, and regulated with Aspen Plus.

#### Tableau 3 : Analyse comparative entre les différentes configurations.

Le haut fourneau à recyclage (TGR-BF) obtient les meilleurs résultats en termes de consommation de carbone et donc aussi d'émissions de CO<sub>2</sub> (-213 kgCO2/t<sub>fonte</sub>). Par contre

son efficacité énergétique est moins bonne que celle du haut fourneau sous oxygène pur. Notons cependant que les consommations énergétiques de la capture du  $CO_2$  et la séparation de l'air n'ont pas été prises en compte. Il est aussi dommage que le cas du haut fourneau à recyclage sous  $O_2$  pur, le plus prometteur, n'ait pas été traité car jugé trop complexe.

## II – 5 Modélisation du haut fourneau à recyclage sous Aspen Plus

Le modèle Aspen du haut fourneau à recyclage a été construit à partir du modèle du fourneau classique précédemment décrit en le modifiant sur plusieurs points pour tenir compte de la nouvelle configuration. Les principales modifications sont les suivantes :

- Introduction du courant de gaz recyclé,
- Ajout de l'unité de traitement du gaz pour la capture de CO<sub>2</sub>,
- Introduction d'oxygène pur au lieu du vent et modification du modèle de combustion aux tuyères associé,
- Modification des méthodes de calculs dans les différents calculateurs

## a) Traitement et recyclage du gaz

A sa sortie du haut fourneau, le gaz du gueulard contient en général - dans le cas d'un fourneau classique - entre 21 et 25 % de CO, 20 et 22% de CO<sub>2</sub>, environ 50 % de N<sub>2</sub> et le reste se partage entre la vapeur d'eau et du H<sub>2</sub> (Peacey, 1979).

Ce gaz relativement chaud (une centaine de degrés Celsius) présente un intérêt considérable tant du point de vue énergétique que chimique (pouvoir réducteur). A l'heure actuelle, il est utilisé, soit pour produire de l'électricité, soit comme source de chaleur pour chauffer le gaz injecté au niveau des tuyères, soit les deux combinés.

Dans le cas du haut fourneau avec recyclage ULCOS, après avoir séparé l'humidité du gaz, celui-ci est partagé en deux flux :

- l'un (à peu près 2% du gaz total) est exporté vers les cowpers (système de chauffage des gaz) où il est brûlé pour préchauffer le gaz injecté aux tuyères,
- l'autre est dirigé vers une unité de séparation du CO<sub>2</sub> avant d'être recyclé aux tuyères. Le procédé de séparation considéré est celui retenu à Lulea : le VPSA (Vacuum Pressure Swing Adsorption).

Les autres composants du gaz (CO,  $H_2$ ,  $N_2$ ) ne subissent pratiquement aucun traitement.

Les performances globales de l'unité de capture de CO<sub>2</sub> (VPSA) sont présentées dans le tableau ci-dessous qui indique le taux de récupération des différents composants.

Performance du VPSA						
Eléments	CO₂ à la sortie du VPSA	CO récupéré	N₂ récupéré	H₂ récupéré		
% du gaz initial	2,6 – 2,7	86,4 - 88,2	87,8 - 89	98,6 - 99,9		

## Tableau 4 : Performances du VPSA.

Dans la modélisation, ces performances ont été respectées. Le principe est de se fixer une fraction en  $CO_2$  donnée, dans le gaz recyclé (dans notre cas 2,7% de  $CO_2$ ).

La composition chimique ainsi que la température du gaz recyclé dans le haut fourneau au niveau des tuyères et du shaft a pu être mesurée à l'occasion des tests réalisés à Lulea. Elles sont données dans le tableau ci-dessous.

Niveau	Tuyères	Shaft			
Température en °C	1100	950			
Composition en % CO CO <sub>2</sub> H <sub>2</sub> N <sub>2</sub>	53 2,6 - 6,8 - 30,2 -	59,6 - 2,7 - 8,7 - 35,6			

## Tableau 5 : Composition du gaz réinjecté au niveau des tuyères et shaft.

Dans le modèle, la composition du gaz de recyclage injecté au niveau des tuyères du ventre résulte du modèle du VPSA. La température est quant à elle une donnée.

## b) Fonctionnement à l'oxygène pur

Enfin, il est important de noter que dans le cas d'un haut fourneau à recyclage le vent (air chaud) n'est plus utilisé. Il est remplacé par de l'oxygène pur dont la pureté est de l'ordre de 99%. Cette technique permet d'éviter le « N<sub>2</sub> build up » : il ne faut pas qu'avec le recyclage de l'azote ne s'accumule dans le réacteur. De plus, il n'est plus nécessaire de chauffer l'azote, ce qui diminue la demande énergétique.

Un petit volume d'azote est cependant introduit comme gaz transporteur du charbon pulvérisé injecté en bas du fourneau.

La figure 25 ci-dessous illustre le principe du modèle du haut fourneau à recyclage.



Figure 25 : Schéma de principe du modèle du haut fourneau à recyclage.

### c) Hypothèses pour les simulations

Afin de pouvoir simuler les différents scénarios, il était essentiel de faire certaines hypothèses qu'on peut résumer par :

 Pour l'ensemble des simulations conduites dans le cadre de ce travail, les données expérimentales des campagnes de Lulea ont été prises comme données de marche de nos simulations. Elles sont issues du rapport ULCOS,

- Les données manquantes (notamment les compositions de certains flux) ont été complétées en utilisant la base de données du groupe SP9 d'ULCOS, soit celles d'un haut fourneau virtuel représentant la moyenne des hauts fourneaux européens,
- Les pertes thermiques ainsi que leur répartition sont celles indiquées et estimées lors de la campagne expérimentale dans le cas où elles sont mentionnées,
- La valeur de l'écart à l'idéalité  $\omega$  est prise égale à :
  - ✓ 0,04 pour le cas de référence
  - ✓ 0,02 pour le recyclage à un seul niveau.
  - ✓ 0 pour les cas où le recyclage est effectué à deux niveaux.

Ces valeurs sont des estimations.

### II - 6 Résultats et discussion

Dans cette partie, on présente les résultats liés aux différentes études menées sur le haut fourneau à recyclage. Comme expliqué précédemment, le recyclage peut être effectué soit à un seul niveau (au niveau des tuyères en utilisant les anciennes canalisations) ou à deux niveaux (tuyères et shaft en perçant des trous additionnels dans la coque du fourneau). Le recyclage à un seul niveau a l'avantage de réduire les coûts d'investissement puisqu'on utilise les canalisations déjà existantes. Par contre, il demande un fonctionnement du haut fourneau à des températures de flamme plus basses ou l'utilisation d'un charbon pulvérisé à faible pouvoir calorifique pour atteindre des taux de consommation en carbone plus compétitives. Le recyclage à deux niveaux, quoique correspondant à un investissement supérieur, a été envisagé comme susceptible d'atteindre de meilleurs performances.

Dans un premier temps, nous avons cherché à comparer les résultats de nos simulations aux données expérimentales disponibles grâce à la campagne expérimentale sur l'installation pilote à Luleå de 2007 que nous avions à notre disposition.

Dans un deuxième temps, nous avons fait varier, de manière plus théorique, les taux de recyclage à un et à deux niveaux de manière à en connaître plus précisément les effets.

## a) Vérification préliminaire : influence du débit de gaz recyclé sur la mise au mille coke

Dans le but de s'assurer que le modèle reproduit bien la tendance générale constatée dans le cas de recyclage à deux niveaux : plus on recycle, moindre est la consommation de coke, on a procédé à une série de simulations préliminaires en faisant varier le débit du volume recyclé. La méthode consiste à partir d'un haut fourneau en fonctionnement conventionnel, puis à augmenter progressivement le débit de gaz total injecté aux deux niveaux. La figure 26 met bien en évidence l'effet positif du recyclage sur la consommation de coke.





#### b) Simulations de validation

Avant de procéder aux simulations avec recyclage, nous avons d'abord validé le modèle en considérant les données de références issues de la marche conventionnelle du haut fourneau pilote de Lulea. Une fois le modèle validé pour ce cas de référence nous avons simulé les différents cas pour lesquels nous disposions de données assez complètes (campagne 2007). La liste des essais et leurs principales caractéristiques sont données dans le tableau 8.

Scenarios		Pof	Cas							
		nei	1	2	3	4	5	6	7	8
Marche Recyclage conventionnelle 1 - niveau		Recyclage 2 - niveaux								
Charbon pulvérisé	kg/thm	134.8	131.2	127.7	132.7	131.8	171.9	171.2	154.9	172.7
Gaz recyclé	Nm <sup>3</sup> /thm	0	614	657	907	1064	1043	1028	979	1034
Taux de recyclage	%	0	69,1	71,9	84,7	89,1	89,2	86,9	86,7	86,3

### Tableau 6 : Liste des cas simulés.

Le taux de recyclage est défini comme la quantité de gaz envoyée dans la boucle de recyclage (en amont du VPSA) sur la quantité de gaz de gueulard.

On constate que d'un cas à l'autre la quantité du charbon pulvérisé ainsi que le débit de gaz recyclé varient. A ces paramètres, il faut rajouter le fait que les pertes thermiques varient aussi d'un cas à l'autre. Une étude théorique prenant en compte l'influence du volume du gaz recyclé sur les pertes thermiques a été conduite. Elle sera plus détaillée un peu plus loin.

### c) Résultats : comparaison simulations et expériences

Pour faciliter la présentation des résultats, nous avons reporté les valeurs calculées les plus significatives sur un flowsheet du haut fourneau. L'ensemble des simulations est donné en Annexe I et seuls les cas de références et n°4 sont reproduits figures 27 et 28.



### Figure 27 : Résultats des simulations pour le cas de réference.



Figure 28 : Résultats des simulations pour le cas 4.

Les résultats des simulations sont dans l'ensemble en bon accord avec les données expérimentales (l'écart relatif varie entre 5 et 8 %). Seuls la température de flamme et les fractions de  $H_2$  dans les gaz présentent dans certains cas une erreur supérieure.

Concernant la température de flamme adiabatique (RAFT), on ne dispose pas de détails sur la méthode suivie pour son évaluation. Il ne s'agit pas d'une mesure directe. D'après nos calculs, sa valeur varie entre 2000°C et 2200 °C. elle est donc plus élevée que celle « expérimentale » mais en cohérence avec la bibliographie. Si l'on utilise par exemple la corrélation donnée par Burteaux (M 7 400) pour la déterminer:

Tf (°C) = 
$$1455 + 0.8 T_v - 5.9 (H_2O)_v + 3.67 (Ox) - EI$$

avec :

- Tv température du vent,
- (H<sub>2</sub>O)<sub>v</sub> eau du vent en g/m<sup>3</sup> de vent,
- (Ox) suroxygénation du vent en m<sup>3</sup>/ 1000 Nm<sup>3</sup> de vent,
- El effet refroidissant global des injections de combustible, dû principalement à leur chaleur de craquage. La valeur de ce paramètre dépend de la nature du gaz injecté (fuel, gaz naturel, gaz de cokerie, charbon).

On calcule une température de flamme à partir de cette équation de l'ordre de 2300°C.

En ce qui concerne les écarts entre les valeurs calculées et mesurées au niveau des teneurs en H<sub>2</sub>, il est probable que l'origine de ces différences provienne d'une méconnaissance du niveau de l'humidité de la charge. En effet, du fait que nous ne disposions pas de toutes les données nécessaires pour procéder aux simulations, les données expérimentales manquantes ont été remplacées par les données standard utilisées par le groupe SP9 d'ULCOS. Les sources d'H<sub>2</sub> sont l'humidité, le coke et le charbon. Une différence sur leur composition, notamment l'humidité, peut expliquer l'écart remarqué au niveau des fractions en H<sub>2</sub>. Cet écart n'est pas dû à la modélisation du recyclage, puisque pour la première simulation (Réf, fonctionnement classique du haut fourneau) la proportion de H<sub>2</sub> dans le gaz dépasse aussi la valeur expérimentale.

En se basant sur l'ensemble des résultats, et avec les réserves émises, on peut estimer que le modèle est validé pour simuler un haut fourneau à recyclage.

#### d) Taux de recyclage et quantité d'agents réducteurs

La figure 29 compare la quantité d'agents réducteurs (CO+H<sub>2</sub>) exprimée en pourcentage volumique dans le gaz recyclé dans les différents cas expérimentaux et simulés, les valeurs sont en bon accord. On remarque qu'aux plus forts taux de recyclage (typiquement plus de 85%, cas 4 et 8, la fraction de gaz réducteur atteint une limite (environ 60%, le modèle

surestimant un peu celle-ci) qui est peu influencée par la quantité de charbon (PCI) injectée. Une interprétation possible de ce résultat est que le système atteint ses limites en termes de valorisation du gaz recyclé, et qu'il devient alors inutile d'augmenter le taux de recyclage. Dans ces conditions ajuster le PCI ne fait qu'affecter la demande en coke, tandis que la demande en carbone n'évolue plus une fois cette limite atteinte.



Figure 29 : Comparaison des données expérimentales et résultats des calculs pour les agents réducteurs (CO+H<sub>2</sub>).

Cet effet se retrouve sur la figure 30 qui représente l'évolution de la consommation en coke et en carbone total pour l'ensemble des simulations.



#### Figure 30 : Comparaison des données expérimentales et résultats des calculs.

On note à nouveau un assez bon accord entre mesure et calculs. Les écarts sont suivants les cas positifs ou négatifs, ce qui peut résulter des variations sur la détermination des pertes thermiques (voir plus loin). Mais on remarque surtout que pour une quantité de charbon injectée donnée (ex. environ 130 kg/t<sub>fonte</sub> pour les cas de référence et 1 à 4), le besoin en carbone est réduit de 15% pour un taux de recyclage de 70% (cas 1 et 2) et varie de 21% pour atteindre environ 355 kg/t<sub>fonte</sub> quand le taux de recyclage est proche de sa limite (90%).

Ceci montre à nouveau tout l'intérêt du recyclage en termes de carbone consommé (et donc de  $CO_2$  émis). Les besoins en coke les plus bas (<300 kg/t<sub>fonte</sub>, cas 3 à 8) correspondent à des injections de PCI qui les compensent de sorte que la demande en carbone totale reste identique. L'intérêt économique demeure, compte-tenu du coût du charbon inférieur à celui du coke.

Il est plus difficile de se prononcer sur les performances relatives du recyclage à un niveau ou à deux niveaux, l'ensemble des conditions opératoires n'étant pas directement comparables. Van der Stel et coll. (2013) ont d'ailleurs relevé des performances au final voisines pour les deux configurations.

#### e) Etudes théoriques

#### e-1 Pertes thermiques

Comme on l'avait mentionné auparavant, les pertes thermiques varient d'un cas à l'autre. Elles nous étaient données dans le cas des simulations des essais de la campagne sur le haut fourneau pilote de Luleå de 2007, sans toutefois qu'on sache précisément comment elles avaient été déterminées. Mais, souhaitant tester théoriquement l'effet de leur répartition, il était nécessaire de chercher à les calculer puisque ces pertes thermiques influent sensiblement sur le bilan thermique et donc sur les besoins en combustibles du haut fourneau.

L'analyse des tracés des pertes thermiques en fonction des volumes injectés pour les essais de 2007 nous a permis d'identifier une tendance et d'en déduire des corrélations que nous avons utilisées ensuite pour nos calculs théoriques.

La figure 31 regroupe l'ensemble des pertes thermiques mesurées : pertes au niveau de la zone de préparation (zone supérieure du haut fourneau) pertes au niveau de la zone d'élaboration (zone inférieure) et pertes totales.



Figure 31 : Pertes thermiques du haut fourneau expérimental de Lulea (2007) en fonction du débit de gaz total pour différentes conditions opératoires : pertes globales (x), de la zone de préparation (△), et la zone d'élaboration (o).

A partir de ce graphe, une tendance concernant les pertes thermiques dans la zone de préparation se dessine : une évolution linéaire en fonction du débit de gaz total recyclé. On

en a déduit la corrélation suivante qui estime les pertes thermiques dans la partie supérieure du haut fourneau dans la gamme de débits de gaz total compris entre 900 et 1400  $\text{Nm}^3/t_{\text{fonte}}$ :

$$y = 0,281x - 187,82$$

où, y représente les pertes thermiques de la partie supérieure (MJ/t métal liquide) et x représente le débit total du gaz injecté (Nm<sup>3</sup>/t métal liquide) dans le haut fourneau (ventre et tuyères).

En suivant l'idée que les pertes thermiques d'une zone donnée peuvent être liées au débit de gaz qui la traverse, on a tracé les pertes thermiques dans la zone inférieure (zone d'élaboration) en fonction du gaz total injecté au niveau des tuyères.



Figure 32 : Pertes thermiques inférieures en fonction du débit de gaz injecté au niveau des tuyères pour différents cas.

La figure 32 montre qu'une corrélation polynomiale de deuxième ordre peut rendre compte de la tendance observée pour des débits allant de 800 à 1200  $\text{Nm}^3/t_{\text{fonte}}$ :

$$z = -3, 2.10^{-3} w^2 + 6,5112 w - 2566,7$$

où z représente les pertes thermiques (MJ/ $t_{fonte}$ ) dans la zone d'élaboration et w le débit de gaz total injecté des tuyères (Nm<sup>3</sup>/ $t_{fonte}$ ).

Ces corrélations empiriques ont été ensuite été insérées dans le modèle ASPEN afin de prédire au mieux l'évolution des pertes thermiques en fonction des conditions opératoires.

L'introduction de ces corrélations dans le modèle ne change finalement que très peu les résultats du modèle (consommation de coke par exemple) dans les cas précédemment simulés mais elle permet l'extrapolation à des fonctionnements différents.

#### e-2 Influence de la répartition du gaz recyclé

Pour cette série de simulations utilisant les corrélations, partant d'une marche classique (Ref), nous sommes passé au recyclage de la même quantité de gaz injectée en totalité aux tuyères (SVC-2L-1), puis à différentes répartitions de cette même quantité entre les deux niveaux. La quantité du charbon injectée est maintenu constante. La quantité de coke nécessaire est calculée par le modèle et son évolution selon les cas est reportée sur la figur 33.



Figure 33 : Evolution des besoins en coke pour différentes répartitions d'un volume constant de gaz recyclé.

On constate que, si l'effet positif du recyclage sur la demande en coke est à nouveau vérifié, il n'en est pas de même pour l'effet du recyclage à deux niveaux. Une proportion croissante de gaz recyclé injectée au niveau supérieur (ventre) n'améliore pas les résultats par rapport à la seule injection aux tuyères, au contraire. Cet effet n'étant pas attendu puisque les premiers essais (2007) à Luleå avaient semblé montrer l'inverse. Notons cependant que les essais ultérieurs (rapportés par Van de Stel et coll., 2013) n'avaient pas confirmé cette tendance puisque les meilleurs résultats étaient au même niveau pour les deux configurations. Il est difficile de trancher et d'interpréter l'effet sur des bases physiques, il faudrait disposer d'un modèle plus détaillé, au moins discrétisé sur la hauteur du réacteur. Une explication de nos résultats lors d'une injection à deux niveaux pourrait être un effet refroidissant d'une injection d'un plus grand volume de gaz dans la zone supérieure.

## **III - Conclusions**

Nous avons développé un modèle du haut fourneau à recyclage implémenté dans le logiciel Aspen Plus. Ce modèle est dérivé d'un modèle de simulation d'un haut fourneau classique qui a été validé sur plusieurs cas industriels. Le modèle divise le haut fourneau en zone de préparation et zone d'élaboration, tient compte des principales réactions chimiques mises en jeu et détermine les besoins en carbone pour satisfaire le bilan thermique du réacteur. Le gaz du gueulard est recyclé, le CO<sub>2</sub> contenu est capturé et réinjecté à un ou deux niveaux (tuyères et ventre) en présence d'oxygène au niveau des tuyères. Ce modèle du haut fourneau à recyclage a été validé par comparaison aux données mesurées lors d'une campagne de tests sur le haut fourneau pilote de Lulea (Suède). Les résultats montrent une baisse significative du besoin en carbone du haut fourneau à recyclage par rapport à un haut fourneau classique. Una gain maximum d'environ 20% est obtenu pour un taux de recyclage d'environ 90%. Les émissions de CO<sub>2</sub> sont alors réduites d'autant. Après avoir introduit un calcul empirique des pertes thermiques des zones supérieure et inférieure du haut fourneau, nous avons pu tester l'effet de la répartition de l'injection du gaz recyclé entre tuyères et ventre. L'injection à deux niveaux ne semble pas plus favorable que celle au seul niveau des tuyères.

# Partie B : Filière Sidérurgique Globale
# **I – Introduction**

La production de l'acier nécessite la transformation des matières premières en un certain nombre de produits intermédiaires (fonte, acier liquide) avant de produire l'acier final à la nuance et avec les caractéristiques recherchées.

La figure 34 donne le synoptique du procédé, une représentation schématique de la filière sidérurgique classique, de la transformation du minerai de fer et du charbon jusqu'aux demiproduits (tôles, barres) en acier sortant d'une usine sidérurgique intégrée.



Figure 34 : La filière sidérurgique intégrée : procédés de transformation et les flux de matières qui les relient (d'après endress.com).

Cette filière intégrée comporte une succession d'opérations :

 la préparation du minerai qui, après un broyage et criblage, subit une opération d'agglomération (sintering) et prend la consistance d'un gâteau poreux, qui est ensuite brisé en blocs d'aggloméré,

- la préparation du coke à partir de charbon dans une cokerie : le charbon est débarrassé de ses matières volatiles et acquièrt les caractéristiques mécaniques nécessaires à sa fonction dans le haut fourneau,
- la transformation du minerai aggloméré en fonte liquide dans le haut fourneau, telle qu'elle a été décrite en première partie. Ces trois étapes constituent la filière d'élaboration de la fonte (ironmaking),
- l'étape suivante est la conversion de la fonte liquide en acier liquide (fer liquide faiblement allié) : opération complexe d'affinage de la fonte (réduction des teneurs en carbone, silicium, phosphore) soit par des réactions d'oxydation par soufflage d'oxygène soit par des réactions métal-laitier (déphosphoration ; extraction sélective des constituants d'une phase par une seconde phase, dans ce cas le laitier assure cette fonction). Ces réactions ont lieu dans le convertisseur et dans des poches d'affinage.
- l'acier liquide est ensuite coulé (coulée continue) en brames (produits plats) ou autres demi-produits (blooms, billettes),
- enfin les dernières étapes sont des étapes de mise en forme (laminage à chaud en bobines, puis laminage à froid) et de traitement de surface (galvanisation), qui diffèrent selon les produits fabriqués.

Dans notre travail nous nous sommes limités à l'étude des quatre procédés mis en œuvre pour la production d'acier liquide: la cokerie, l'agglomération, le haut fourneau et le convertisseur.

Lorsque ces quatre procédés sont reliés entre eux et regroupés sur un même site on parle d'usine intégrée classique. Ces usines sont le plus souvent côtières et produisent typiquement 5 Mt d'acier par an.

C'est en effet dans cette ensemble d'opération industrielles qu'est consommé l'essentiel de l'énergie nécessaire à la fabrication de l'acier (typiquement 20 GJ/t de bobine laminée à chaud) et qu'est émis l'essentiel du  $CO_2$  sidérurgique (typiquement 1,8 à 2  $t_{CO2}$  par tonne de bobine laminée à chaud) (Birat, 2008).

Cette seconde partie de notre étude est consacrée à la modélisation systémique (en utilisant le logiciel ASPEN Plus) de l'usine intégrée classique. L'objectif est de proposer un simulateur de l'usine sidérurgique, qui intègre l'ensemble des procédés et leur association via des flux de matières et d'énergie, et qui puisse ensuite être utilisé à des fins d'optimisation (énergétique, environnementale, ou de consommation de matières premières).

Ce type d'approche a été peu publié dans la littérature. On peut néanmoins citer quelques travaux récents :

- Schultmann, et coll., 2004, ont adopté une approche systémique en utilisant l'outil KOSIMEUS pour la modélisation et simulation. Il est basé sur le calcul des bilans de masses et d'énergie. Il a aussi été utilisé au niveau industriel à des fins d'assistance à la prise de décision relative à la production et aussi d'optimisation environnementale. Ces auteurs ont considéré le cas où les poussières de haut fourneau sont recyclées à l'agglomération et où les déchets plastiques sont injectés comme source de carbone au haut fourneau. Ils ont montré comment cette injection de plastiques au niveau du haut fourneau influait non seulement sur le fonctionnement du haut fourneau mais également sur l'usine d'agglomération. La composition des poussières du haut fourneau et de l'agglomération (Zn et chlorures notamment) s'en trouve modifiée, mais ce fonctionnement est possible et économiquement intéressant.
- Grip, et coll., 2013, proposent un modèle mathématique (qui a connu des évolutions depuis sa première version en 1987) capable de simuler l'ensemble de l'usine intégrée et aussi son environnement en prenant en compte l'unité de production d'électricité et de chaleur. Avec cet exemple d'usine intégrée qui s'inscrit dans le cadre de l'écologie industrielle, c'est-à-dire la revalorisation des flux en réduisant au maximum les déchets et à l'aide les méthodes mathématiques d'optimisation, ils disposent d'un outil simple et puissant pour optimiser l'utilisation énergétique. La figure 2 donne une vue de l'ensemble du parc industriel considéré.



Figure 35 : L'usine intégrée de Lulea, à gauche le flow sheet, à droite la photo aérienne du site (Grip, 2013).

 Larsson, et coll., 2006, ont proposé un modèle mathématique qui simule l'ensemble de la filière intégrée pour l'usine de SSAB basée à Lulea, Suède. Il est utilisé pour des calculs d'énergie et de matières pour l'usine entière et peut être un outil complémentaire à la prise de décision à des fins d'optimisation énergétique, économique et environnementale. La figure 36 donne l'énergie et les émissions de CO<sub>2</sub> pour les différentes configurations qu'ils ont étudiées. On notera la corrélation complète entre consommation énergétique et émissions de CO<sub>2</sub>.



Figure 36 : Variation de la consommation énergétique et des émissions de CO<sub>2</sub> selon différents scénarios. (Larsson, 2006)

Les sections suivantes sont tout d'abord consacrées à la présentation des différents procédés (agglomération, cokerie, convertisseur, le haut fourneau ayant déjà été présenté) et leur modélisation, avant de passer à l'intégration globale des modèles et à l'application de la démarche à quelques études de cas.

# II – Les procédés composants la filière sidérurgique classique

#### Introduction

La filière globale de la production d'acier considérée dans cette étude est composée de quatre procédés (figure 37) :

- Le haut fourneau
- La cokerie
- L'agglomération
- Le convertisseur



Figure 37 : Schéma d'ensemble de l'usine sidérurgique intégrée avec les flux de matières et d'énergie (Larsson, 2006).

#### II - 1 L'agglomération

#### a) Présentation

Le minerai de fer brut présente rarement les caractéristiques nécessaires (teneur en fer, granulométrie, réductibilité, tenue mécanique) à son introduction directe dans le haut fourneau. Le minerai est donc préalablement transformé en un produit mieux adapté (boulettes ou aggloméré principalement).

La fonction principale d'une usine d'agglomération est donc de transformer et de préparer la charge minérale avant le haut fourneau. Elle assure l'amélioration de la nature physique, chimique et/ou minéralogique des matières premières pour pouvoir diminuer la mise au mille, augmenter la qualité de la fonte produite et améliorer la productivité. Son principe est de porter le minerai, sous forme de micro-boulettes, à haute température (1200°C) pour, d'une part, en éliminer les matières volatiles et, d'autre part, provoquer une fusion partielle de la charge qui conduit à une agglomération des particules. Un gâteau plus ou moins poreux est formé, qui est ensuite cassé et criblé à chaud pour produire les blocs d'aggloméré envoyés au haut fourneau.







Parmi ces installations on note :

- le parc d'homogénéisation et une installation de dosage où on prépare la charge des matières premières (minerai de fer, castine, etc.),
- un tambour dans lequel s'effectue la nodulisation du mélange après addition d'eau,
- une hotte d'allumage où a lieu la combustion de gaz combustible,
- la grille mobile d'agglomération,
- le criblage à chaud et le criblage à froid,
- le refroidisseur circulaire : grille au travers de laquelle on souffle de l'air pour refroidir le produit,
- le système de traitement des fumées qui comporte des électrofiltres pour le dépoussiérage principal, une installation de traitement pour la réduction des polluants des fumées, et des filtres à manches.

#### b) Phénomènes physiques

Différents types de modélisation de l'opération d'agglomération ont été proposés dans la littérature, de ceux fondés sur une description détaillée des processus physico-chimiques et thermiques (Patisson et coll., 1991) à ceux plus globaux destinés à calculer les bilans matières et énergie. Parmi ces derniers, on peut citer les travaux récents de B. Vanderheyden et coll. (2001) et F. Schultmann et coll. (2004). Ces modèles cependant ne fournissent pas un calcul détaillé de la totalité des émissions d'une usine d'agglomération. A l'IJL, losif a réalisé une modélisation physico-chimique simplifiée de l'usine d'agglomération sous Aspen, que nous avons reprise dans notre étude.

Le tableau 7 donne les principaux phénomènes physico-chimiques intervenant dans la chaine d'agglomération ainsi que les températures à partir desquelles ces phénomènes se produisent.

Phénomènes	Température [°C]
Séchage : départ de l'eau micro-boulettage et de l'humidité des minerais	< 200
Déshydratation de la limonite (Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> hydraté) et de la goethite (FeOOH)	300
Départ des matières volatiles	300 - 500
Déshydratation de la chlorite (Fe(ClO <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> hydratée) Décarbonatation de la sidérose (FeCO <sub>3</sub> )	530
Réduction par CO de l'hématite en magnétite	600
Début de la combustion	700
Décarbonatation de la castine	900
Formation de ferrites de calcium en phase solide Formation du laitier primaire	1150
Dissolution des minerais dans le laitier	1200 – 1350
Précipitation dans le laitier vitreux Formation de silicates et de ferrites de calcium	1150
Réoxydation de la magnétite Formation de microfissures dans la phase vitreuse	500

# Tableau 7 : Processus physico-chimiques intervenant sur la chaine d'agglomération<br/>(Patisson, 1987).

Vu la complexité du procédé d'élaboration de l'aggloméré et le fait que ce n'est pas l'objet principal de ce travail, nous nous contenterons d'énoncer les principaux points concernant la modélisation de l'unité agglomération sous Aspen Plus.

- Séchage de la charge : pour la modélisation nous avons considéré que l'eau contenue dans la charge s'évaporait à 200°C (fin du séchage)
- Décarbonatation de la castine : cette réaction est endothermique et supposée totale par rapport au carbonate de calcium contenu dans les matières solides.

$$CaCO_3 \rightarrow CO_2 + CaO$$

 Formation des silicates de calcium : la réaction est exothermique et considérée totale par rapport à SiO<sub>2</sub>

$$CaO + SiO_2 \rightarrow CaSiO_3$$

 Formation des ferrites de calcium : c'est le CaO issu de la réaction précédente qui est consommé dans cette réaction. Elle est exothermique et se produit après la formation des silicates de calcium (ordre respecté dans la simulation) et est totale par rapport à CaO

$$Fe_2O_3 + CaO \rightarrow CaFe_2O_4$$

- Formation des espèces polluantes dans les fumées : celles-ci sont calculées à partir de corrélations (losif et coll., 2008).
- Combustion : les réactions prises en compte pour la combustion sont les suivantes

$$C + O_2 \rightarrow CO_2,$$
  

$$C + CO_2 \rightarrow 2CO,$$
  

$$H_2 + \frac{1}{2}O_2 \rightarrow H_2O.$$

Le rapport CO/(CO+CO<sub>2</sub>) est pris égale 0,15 (Marlière, 2005). La combustion de l'hydrogène est considérée comme étant totale par rapport à l'hydrogène.

Le modèle est capable de quantifier les polluants émis par l'usine. Il est sensible à la variation de la mise au mille et tient en compte le recyclage des différents produits pour permettre d'obtenir un aggloméré de qualité imposée pour le haut fourneau. Nous renvoyons le lecteur à losif (2006) pour une présentation détaillée de ce modèle, de ses résultats et de sa validation.

#### c) Données d'entrées-sorties

La figure 39 synthétise l'ensemble des paramètres d'entrées-sorties nécessaire au modèle de l'agglomération.



Figure 39 : Synthèse des entrées-sorties du modèle de l'usine d'agglomération.

Le tableau 8 ci-dessous précise les flux massiques introduits dans le modèle par référence au fonctionnement d'unité d'agglomération Sollac-Fos.

Donnée industrielles		Données introduites dans le modèle			
Bilan de matières					
Allumage	Gaz de cokerie	51 MJ/t <sub>agglo.</sub>	Gaz de cokerie	51 MJ/t <sub>agglo</sub>	
Combustion	Poussier de coke charbon	28,5 kg/t <sub>agglo.</sub> 17,9 kg/t <sub>agglo.</sub>	Poussier de coke charbon	28,5 kg/t <sub>agglo.</sub> 17,9 kg/t <sub>agglo.</sub>	
Matières premières	Hématite	818 kg/t <sub>agglo.</sub>			
	Magnétite	8 kg/t <sub>agglo.</sub>	Minerai de fer	826 kg/t <sub>agglo.</sub>	
	Fe++	3,3 %			
	Boues	14 kg/t <sub>agglo.</sub>	Boues	14 kg/t <sub>agglo.</sub>	
Produits de recyclage	Poussières HF	9 kg/t <sub>agglo.</sub>	Poussières HF	9 kg/t <sub>agglo.</sub>	
	Recyclés	13 kg/t <sub>agglo.</sub>	Mixte	34 kg/t <sub>agglo.</sub>	
	Recyclés	21 kg/t <sub>agglo.</sub>			
	Chaux	6 kg/t <sub>agglo.</sub>	Chaux	6 kg/t <sub>agglo.</sub>	
Fondants	Castine	129 kg/t <sub>agglo.</sub>	Castine	129 kg/t <sub>agglo.</sub>	
	Olivine	29 kg/t <sub>agglo.</sub>	Olivine	29 kg/t <sub>agglo.</sub>	
	Autres matériaux	12 kg/t <sub>agglo.</sub>	-		
Fines de retour	Fines à chaud	360 kg/t <sub>agglo.</sub>	Fines à chaud	360 kg/t <sub>agglo.</sub>	
	Fines à froid	85 kg/t <sub>agglo.</sub>	Fines à froid	85 kg/t <sub>agglo.</sub>	
Apport de matière	)	1550,4 kg/t <sub>agglo.</sub>	1538,4 kg/t <sub>agglo.</sub>		
Humidité (6,5%)	Eau de nodulisation	107,6 kg/t <sub>agglo.</sub>	Eau de nodulisation	106,7 kg/t <sub>agglo.</sub>	
Apport total de chaine	matière sur la	1658 kg/t <sub>agglo.</sub>	1644 k	kg∕t <sub>agglo.</sub>	

# Tableau 8 : Données industrielles pour l'usine d'agglomération Sollac-Fos utiliséesdans le modèle (Arcelor-Research, 2004)

# II – 2 La cokerie

#### a) Introduction

Cette unité a pour fonction la transformation du charbon naturel en coke, matériau carboné mieux adapté au fonctionnement du haut fourneau.

Plus précisément, les avantages de ce procédé sont de :

- réduire le taux de matières volatiles du charbon,
- fritter les grains de charbon, lors du passage par la phase plastique de façon à obtenir une résistance mécanique du coke suffisante,
- avoir une granulométrie du produit adaptée au haut fourneau (diamètre de moins de 80 mm), qui assure une bonne perméabilité,
- récupérer les hydrocarbures sous forme de gaz et de goudrons, pour être valorisés.

La cokéfaction est essentiellement une pyrolyse, c'est-à-dire une cuisson en l'absence d'oxygène. Elle consiste à chauffer le charbon à haute température, à l'abri d'air, puis « éteindre » le coke produit en versant de l'eau pour le refroidir et éviter qu'il ne brûle au défournement.

La figure 40 donne une vue schématique d'une usine de cokéfaction classique.



Figure 40 : Schéma d'une cokerie (losif, 2006).

A partir de ce schéma on peut identifier principalement cinq unités:

<u>Stockage, préparation, pré-concassage du charbon :</u> déchargement du charbon, stockage sur des parcs, concassage du charbon pour l'amener à une granulométrie de 0 – 10 mm.

<u>Fours à coke :</u> Il s'agit de batteries à cellules, chaque batterie comprend 20 à 40 cellules. Les cellules sont des tranches parallélépipédiques verticales d'épaisseur horizontale faible devant les deux autres dimensions, chauffées par combustion de gaz de cokerie (principalement CO et H<sub>2</sub>) et/ou de gaz du gueulard provenant du haut fourneau suivant la disponibilité de l'usine. Ces cellules sont connectées à un réseau de tuyauteries destiné à recueillir les gaz émis par la cokéfaction. L'énergie thermique des fumées à leur sortie est récupérée en les faisant passer dans des régénérateurs. L'énergie récupérée permet le préchauffage de l'air et du gaz combustible nécessaires à la combustion.

Après chargement des batteries, les portes sont hermétiquement fermées, puis la charge est progressivement chauffée par passage de fumées chaudes dans les carneaux qui enveloppent chaque cellule.

La durée du processus est de 15 à 20 heures (voire 24 heures) suivant la largeur des cellules et la quantité de coke produite.

La tour d'extinction : Le refroidissement est fait par arrosage avec de l'eau dans la tour d'extinction humide. Le coke incandescent à 1000°C, est chargé dans des wagons à coke et amené sous la tour d'extinction humide où il subit une aspersion par quelques tonnes d'eau. Le coke est alors "éteint", une partie de l'eau se vaporise et va s'échapper par la tour. Après égouttage, le coke est déversé sur le quai à coke puis criblé.

<u>L'installation de traitement du gaz</u>: A la sortie du four, le gaz est chargé en goudrons, huiles légères, ammoniaque, naphtalène, sulfure d'hydrogène et acide cyanhydrique. Pour pouvoir l'utiliser comme combustible, le gaz doit subir une étape importante d'épuration. Il subit un traitement spécial en passant successivement dans différentes tours pour séparer les goudrons et les suspensions, enlever le NH<sub>3</sub> par lavage par une solution aqueuse d'acide sulfurique.

#### b) Modélisation

Toutes ces sous-unités ont été modélisées sous Aspen Plus. Le modèle tient compte des principales transformations physico-chimiques mises en jeu dans le procédé.

Le point principal est de savoir prédire la composition des gaz de pyrolyse. Des corrélations en fonction de la teneur en matières volatiles (MV) du charbon ont été établies à cet effet (figure 41).



Figure 41 : Corrélations entre la composition du gaz de pyrolyse et le taux de matières volatiles sur sec. (losif, 2006)

Les autres corrélations de la modélisation sont détaillées dans la thèse d'losif (2006).

#### c) Données d'entrées-sorties du modèle Cokerie

Le modèle permet, à partir d'un certain nombre de données d'entrées, de calculer les flux de sortie (composition et quantité des matières composant le coke et le gaz de cokerie) (figure 42).



#### Figure 42 : Synthèse des entrées-sorties de l'usine de cokerie.

Dans le modèle global de l'usine, le modèle de cokerie sera particulièrement utile pour évaluer la quantité de charbon utilisée et déterminer les quantités de gaz de cokerie produit, pour obtenir une quantité de coke nécessaire au fonctionnement du haut fourneau.

#### II - 3 Le haut fourneau

Le lecteur est prié de se référer à la première partie de ce manuscrit.

#### II – 4 Le convertisseur

#### a) Introduction

Au niveau de ce procédé on réalise la transformation de la fonte liquide en acier. Le convertisseur est un réacteur industriel constitué essentiellement d'une coque en acier, garnie intérieurement de briques réfractaires. Il fonctionne en discontinu, avec des étapes de chargement, affinage et coulée du laitier et du métal.

Le métal liquide provenant du haut fourneau (la fonte) subit l'opération communément appelée « conversion ». Elle est réalisée par oxydation des éléments dissous (C, Si, Mn, Ti, P et S) dans le fer liquide ou solide. Cette opération d'affinage a pour objectif de diminuer les teneurs de ces éléments, dans des fourchettes prédéfinies (ex. de 4% à moins de 0,1% typiquement pour le carbone). Dans les convertisseurs actuels, on utilise à cet effet de l'oxygène pur soufflé par le haut au moyen d'une lance placée au-dessus du bain métallique. Pour un bon brassage du bain métallique, un gaz inerte (azote ou argon) est de plus injecté par la base du convertisseur.



La figure 43 schématise un convertisseur avec soufflage d'oxygène par le haut.

Figure 43 : Schéma d'un convertisseur à oxygène (BOF pour Basic Oxygen Furnace) (Astier, 1998).

La chaleur dégagée par les réactions d'affinage est suffisante pour compenser les pertes thermiques, pour échauffer et fondre toutes les additions nécessaires aux opérations métallurgiques et pour amener le métal à une température supérieure à sa température initiale.

L'ensemble des matières premières introduites dans le convertisseur sont rappelées par Béranger (1994) : (Tableau 9)

- La fonte liquide : elle arrive au convertisseur à une température approximative de 1370°C.
- Des additions contenant du fer (minerais et ferrailles, fonte solide...) introduites généralement à la température ambiante, destinées à ajuster le bilan thermique, pour obtenir la température d'acier visée.
- Des additions pour constituer le laitier et ajuster sa composition ; elles sont constituées de chaux et de dolomie cuite (CaO MgO). La chaux est utilisée pour favoriser le transfert dans le laitier du silicium et du phosphore contenus dans l'acier. La teneur en phosphore de l'acier est en effet un des critères de qualité du produit. La chaux permet de contrôler également la basicité du mélange (qui influe sur les réactions d'oxydation) en réagissant avec la silice. La dolomie permet de saturer le laitier en magnésie afin de limiter l'usure des réfractaires. Le laitier est essentiellement constitué de chaux, de silice et d'oxydes de fer.
- L'oxygène est injecté par une lance multi-trous. La présence d'oxygène dans l'acier liquide est due à la dissolution au cours du soufflage d'une certaine quantité de ce gaz dans l'acier. En pratique industrielle, la quantité d'oxygène nécessaire devant être injectée est calculée à partir de la composition de l'acier liquide et à travers des règles de priorité d'oxydation des éléments présents.
- L'injection d'azote pour favoriser le brassage du bain métallique. Une partie de ce gaz inerte peut se dissoudre dans le bain liquide et le reste se retrouve dans le gaz de convertisseur.

Entrée [kg/t <sub>acier</sub> ]	Enfournement de ferrailles minimal	Enfournement de ferrailles maximal	
Fonte liquide	926	850	
Ferrailles	121	212	
Minerai	30	3	
Chaux	24	22	
Dolomie	7	5	
Oxygène	62,4 (44 Nm <sup>3</sup> / t <sub>acier</sub> )	64,2 (45 Nm <sup>3</sup> / t <sub>acier</sub> )	
Sorties			
Acier	1000	1000	
Laitier	51	46	
Gaz	82 Nm³/ t <sub>acier</sub>	75 Nm³/ t <sub>acier</sub>	
Poussières	12	12	
Projections	4	4	

# Tableau 9 : Enfournements au convertisseur pour 1 tonne d'acier et en fonction de<br/>l'enfournement de ferrailles (Béranger, 1994).

#### b) Modèle du convertisseur sous Aspen Plus

Dans le convertisseur les principales réactions sont les réactions d'affinage. Ce sont des réactions d'oxydation très rapide provoquées par la mise en contact du métal liquide avec l'oxygène. Indépendamment du mode d'injection d'oxygène, les éléments dissous dans le métal liquide (C, Si, Mn, P) sont oxydés jusqu'à la consommation complète de O, et ainsi qu'inévitablement une partie du fer.

Dès le début de l'opération, le fer s'oxyde partiellement du fait de sa forte concentration dans le bain. D'après SOLLAC, 1976, c'est le FeO formé qui oxyde ensuite le silicium, le manganèse, le phosphore et le carbone. L'oxyde de fer restant remonte à la surface pour former le laitier. Le silicium de la fonte s'oxyde de façon irréversible et au bout de quelques minutes sa teneur dans le métal devient très faible. La silice formée se trouve dans le laitier. L'oxydation du manganèse et du silicium est simultanée. L'oxyde du manganèse gagne le

laitier et en fin d'opération une partie du MnO est décomposée et le manganèse repasse dans le bain.

Le principe du modèle du convertisseur est de commencer par s'imposer la composition de l'acier produit. Connaissant en outre les les flux de matières enfournées, on en déduit ceux restant disponibles pour former les autres produits : gaz et poussières.

Le tableau 4 récapitule l'ensemble des réactions, prises en compte dans le modèle, qui décrivent les phénomènes physico-chimiques intervenant dans la formation du laitier. Pour les autres composants, à savoir, le gaz et les poussières, le lecteur est invité à se référer à losif (2006).

Réaction	Commentaires	
Si + $O_2 \rightarrow SiO_2$	Totale par rapport à Si.	
$SiO_2 + 2CaO \rightarrow (CaO)_2SiO_2$	Totale par rapport à SiO <sub>2.</sub>	
$Mn + 1/2 O_2 \rightarrow MnO$	Totale par rapport à Mn.	
$2P + 5/2 O_2 \rightarrow P_2 O_5$	Totale par rapport à P.	
$P_2O_5 + 3CaO \rightarrow P_2O_5(CaO)_3$	Totale par rapport à $P_2O_{5.}$	
$S + O_2 \rightarrow SO_2$	Totale par rapport à S restant une fois S de l'acier est extrait.	
$SO_2 + 3Fe \rightarrow FeS + 2FeO$	Totale par rapport à SO <sub>2.</sub>	
FeS + CaO → CaS + FeO	Totale par rapport à FeS.	
Fe₂O₃ + 3C → 2Fe + 3CO	Déterminé par le rapport : $\frac{m_{Fe_2O_3}}{m_{Fe}} = 0.25 \frac{M_{Fe_2O_3}^{mol}}{M_{Fe}^{mol}}$	
$2Fe + O_2 \rightarrow 2FeO$	Totale par rapport au Fe.	

#### Tableau 10 : Principales réactions dans la formation du laitier.

Tous les autres éléments présents dans le laitier : CaO, MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub> sont apportés par les flux entrants au convertisseur.

Enfin, la modélisation du bilan thermique est simplifiée : on connait l'enthalpie des enfournements, dont la fonte introduite typiquement à 1350°C, on calcule les chaleurs des

réactions, notamment exothermiques d'oxydation, on se donne la température de l'acier (et le gaz sont supposés évacués à la même température) et la différence entre apports et besoins est attribuée aux pertes thermiques.

#### c) Données d'entrées-sorties du modèle du convertisseur

La figure suivante récapitule l'ensemble des paramètres d'entrées-sorties du modèle de convertisseur.



### Figure 44 : Synthèse des entrées-sorties du convertisseur.

Dans le modèle global d'usine, la première fonction du modèle de convertisseur sera de relier la quantité d'acier à la quantité en fonte, mais on l'utilisera aussi pour la quantité de laitier qu'il prédit, notamment dans le cas d'un recyclage de ce dernier.

# III – Démarche suivie pour le développement du modèle global de l'usine sidérurgique intégrée classique

### **III – 1 Introduction**

Comme on l'a dit auparavant, l'objectif de cette partie du travail était de développer sous Aspen un modèle global de l'usine intégrée, pour simuler, dans un premier temps, une configuration classique de l'usine et, dans un deuxième temps des configurations ou des fonctionnement alternatifs pouvant présenter des intérêts économiques, environnementaux ou énergétiques.

Le principe de la construction du modèle global est simple, il consiste à interconnecter les différents procédés cités auparavant par des flux les reliant.

La simulation de l'ensemble de l'usine intégrée avait déjà été abordée au laboratoire par losif (2006) lors de sa thèse. Pour ce faire, elle avait procédé de manière séquentielle : les calculs de chaque procédé étaient indépendants et conduits les uns après les autres en suivant le trajet des matières. Les résultats (flux) issus d'un procédé sont introduits dans le procédé suivant, et ainsi de suite jusqu'au convertisseur. L'inconvénient d'une telle approche est qu'elle ne permet pas de réaliser un véritable couplage entre les modèles et qu'elle ne peut rendre compte que de façon très partielle des multiples interactions entre les procédés qui interviennent dans la réalité d'une usine intégrée.

Afin de traduire au mieux la réalité et de pouvoir réaliser un couplage effectif entre les procédés, un modèle global sous ASPEN, un véritable simulateur d'usine, a été développé dans le cadre du présent travail. Ce simulateur a pu ensuite être exploité pour simuler quelques cas de fonctionnements choisis.

# III – 2 Méthode 1 : Utilisation de blocs hiérarchiques

Dans un premier temps la modélisation s'est orientée vers une approche hiérarchique sous Aspen : chaque modèle de procédé est reproduit dans un bloc dit hiérarchique indépendant et les différents blocs communiquent entre eux via un nombre limité de flux constituant les entrée/sortie de chaque bloc, comme le montre schématiquement la figure ci-dessous. Cette approche a notamment l'avantage de pouvoir gérer facilement des gros modèles qui peuvent être scindés en sous-modèles interconnectés (figure 45).



Figure 45 : Flowsheet Aspen du modèle hiérarchique global (seuls les flux de solides qui connectent les groupes hiérarchiques sont représentés).

L'utilisation des blocs hiérarchiques, que nous avons retenue au début de l'étude car elle semblait de prime abord être l'approche la plus adéquate et la plus rapide à développer, s'est finalement montrée difficile à mettre en œuvre en raison des problèmes rencontrés : conflits de variables entre les différents modèles, problème de convergence des modèles une fois connectés entre eux et problèmes liés à la lecture de données de marche.

Face à des verrous techniques propres au logiciel Aspen Plus et suite à ces difficultés qu'on n'a pu surmonter, un changement de méthodologie s'est révélé nécessaire. Il a ainsi été décidé de renoncer aux blocs hiérarchiques et de construire un modèle unique regroupant tous les modèles précédents sur un même plan.

## III – 3 Méthode 2 : Utilisation d'un seul flowsheet

Cette solution alternative consistait à mettre tous les procédés (avec leurs différents flux de matières et d'énergie) sur un même flowsheet.

Ce changement a nécessité un changement profond des codes, un lourd travail de récriture des modèles et de redéfinition de tous les paramètres, notamment les flux de matières, les flux d'énergie, ainsi que les calculators et design spec, pour éviter tout problème de conflit ou d'utilisation de variables par deux procédés. Utiliser une même variable dans plusieurs procédés peut influencer d'une façon imprédictible les résultats obtenus et rendre l'analyse presque impossible puisqu'on ne peut alors déterminer simplement quel procédé conditionne la variable.

Bien qu'il ait été très chronophage, ce changement d'approche s'est révélé salutaire car il nous a permis d'aboutir à un modèle d'ensemble qui fonctionne, converge et dont les résultats sont cohérents.

Nous avons alors enfin pu procéder à la simulation des quelques configurations jugées intéressantes qui sont présentées dans la partie suivante.

#### IV - Etudes de cas

#### Introduction

Une fois le modèle d'ensemble fonctionnant sous Aspen nous avons procédé à plusieurs études de cas, des cas qui présentent un intérêt économique, environnemental ou énergétique. Au total, en comptabilisant tous les scénarios, 10 simulations complètes ont été effectuées.

Dans ce qui suit, on détaille en quoi consiste chaque cas ainsi que le résultat recherché par la simulation. Les données d'entrées utilisées pour ces simulations sont à la base des données industrielles relatives à l'usine Sollac-Fos d'ArcelorMittal.

#### IV – 1 Cas 1 : Filière classique

Le premier cas correspond à celui d'un fonctionnement habituel de la filière sidérurgique classique. Tous les procédés sont pris dans leur configuration standard, tels qu'ils sont opérés dans les usines actuelles.

L'objectif de cette simulation était de s'assurer que le modèle global fonctionne, converge, que les résultats étaient cohérents, mais aussi de servir de cas de référence, de base de comparaison pour les simulations ultérieures de configurations différentes.

#### IV – 2 Cas 2 : Filière avec haut fourneau à recyclage

Ce cas consiste à remplacer le haut fourneau classique de la filière standard par le modèle du haut fourneau à recyclage, développé dans la première partie, toute en gardant le reste de la filière intacte. L'objectif était ici de vérifier que le modèle global fonctionnait bien avec la nouvelle version du haut fourneau et bien sûr également de comparer les résultats de la filière classique avec la filière avec recyclage, notamment en termes de mise au mille coke.

# IV – 3 Cas 3 : Recyclage de sous-produits : Substitution de matières premières

Le coût de revient d'une tonne d'acier évidement est un paramètre de premier ordre pour les sidérurgistes. Sa réduction peut s'envisager à plusieurs niveaux, en jouant sur certains paramètres comme les frais de fonctionnement de l'unité, les frais de personnel et l'achat et l'utilisation des matières premières.

Sur toute la filière et au niveau de chaque procédé on recense des produits et des sousproduits qui sont soit valorisés, soit considérés comme déchets, en fonction de l'équipement de l'unité et/ou la stratégie adoptée par le gestionnaire de l'usine.

Le laitier du convertisseur, par exemple, compte-tenu de sa composition intéressante, ses propriétés physiques et mécaniques a la particularité de pouvoir être réutilisé comme matière première pour produire l'aggloméré.

Nous avons donc considéré ce cas de recyclage pour en évaluer l'intérêt : tout le laitier du convertisseur est recyclé et introduit avec les matières premières de l'usine d'agglomération.

L'avantage de ce recyclage est principalement économique : la diminution des matières premières introduites à l'agglomération permet de réduire (de façon relative) la facture liée à l'achat de ces matières.

Vu la composition du laitier (tableau 11), on remarque qu'il contient des quantités relativement importantes de Fe, SiO<sub>2</sub> et CaO. Avec le recyclage envisagé ces quantités vont permettre de réduire d'autant les flux de minerai de fer, de silice et de carbone introduits à l'agglomération. Pour simplifier la modélisation nous avons assimilé le silicate dicalcique, le composant présent dans le laitier sous la forme  $Ca_2SiO_4$  aux composants CaO et SiO<sub>2</sub>, une 1 mole de  $Ca_2SiO_4$  donnant 2 moles de CaO et 1 mole de SiO<sub>2</sub>.

Eléments	Composition (% massique)	
Fe	16	
S	0,18	
O <sub>2</sub>	5,34	
SiO <sub>2</sub>	14,32	
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,34	
CaO	50,41	
MgO	7,9	
TiO <sub>2</sub>	0,01	
MnO	3,58	
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	2,1	

Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur

# IV – 4 Cas 4 : Influence d'un composant chimique sur toute la filière : Fraction de Si dans la fonte sur le bilan thermique dans le HF et le convertisseur

La complexité de chaque procédé considéré tout seul est telle qu'il est presque impossible de tout prendre en compte et pouvoir prédire avec précision les résultats expérimentaux. L'interconnexion des procédés cités auparavant rend ce travail encore plus périlleux et difficile car une variation au niveau d'une composition chimique d'une des matières premières ou au niveau de l'un des procédés peut avoir des conséquences sur toute l'usine intégrée. Parfois dans ce type de cas de figure il suffit d'une variation de la fraction d'un élément pour influencer la marche de toute la filière et ainsi modifier les bilans matières et énergies.

Il est connu que la fraction du silicium présent dans la fonte, joue un rôle important dans le comportement du haut fourneau. (Rasul, 2007)

Dans cette étude, on a voulu connaitre l'influence de la présence du Silicium dans la fonte sur la mise au mille coke au niveau du haut fourneau et sur les besoins thermiques dans le convertisseur une fois ces deux procédés connectés entre eux.

A la sortie du haut fourneau, la fonte contient, en fonction des matières enfournées, une fraction de Si allant de 0,04 à 1,8 % (massique). Ensuite cette fonte est versée dans le convertisseur et à l'intérieur de celui-ci l'oxydation de Si se fait selon la réaction :

Si + 
$$O_2 \rightarrow SiO_2$$

Rasul et al. (2007) ont étudié l'influence de ce composant sur la mise au mille coke (figure 46).



Figure 46 : La mise au mille coke en fonction du niveau du % Si dans la fonte (Rasul, 2007).

A part les valeurs de mise au mille coke qui nous paraissent très supérieure à la moyenne, on constate que plus Si est présent dans la fonte, plus la quantité de coke nécessaire pour produire une tonne de fonte augmente. On a voulu vérifier si cette tendance était bien reproduite par notre modèle. Pour ce faire on a considéré deux cas différents où on a fait varier la fraction de Si dans la fonte.

Les teneurs retenues figurent dans le tableau 12. Les valeurs 1,7% et 1,14% correspondent à nos simulations (cas 1 et 2) de bas pour un haut fourneau classique et un haut fourneau à recyclage. Les valeurs 1% et 1,5% ont été ajoutées pour pouvoir confronter nos résultats à ceux annoncés par Rasul (2007).

Une hypothèse a été faite. Elle consiste à faire varier la fraction de Si dans la fonte et laissant les fractions des autres composants constantes sauf celle du Fe, c'est avec cette dernière qu'on boucle la composition totale de la fonte (avoir une somme des fractions égale à 1).

Cas	Fraction de Si
Filière classique (HF conventionnel)	1
	1,5
	1,7
Filière avec HF avec Recyclage	1
	1,5
	1,14

Tableau 12 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction deSi dans la fonte.

# V - Résultats et discussion : filière globale

Dans cette section on expose les principaux résultats issus de la simulation pour les différents cas considérés.

Comme nous nous sommes particulièrement attachés aux émissions de CO<sub>2</sub>, il est intéressant de commenter la figure 47 ci-dessus.



CO<sub>2</sub> emissions in conventional steelmaking (blast furnace + BOF)

Figure 47 : Répartition des émissions de CO<sub>2</sub> par procédés de la filière classique. (Orth, 2004)

La figure 47 donne le pourcentage, par procédé, des émissions de CO<sub>2</sub> dans une filière sidérurgique classique. D'après les auteurs (Orth, 2004), le haut fourneau représente 69% de l'ensemble des émissions de CO<sub>2</sub>. L'agglomération et la cokerie représentent 18% des émissions et le convertisseur moins de 11% puisqu'il est comptabilisé dans les 11%. Il est clair que la contribution du haut fourneau est prépondérante et l'est encore plus si on ne considère que les principaux procédés. Pour cette raison, nous avons retenu les chiffres en CO<sub>2</sub> du haut fourneau pour comparer entre eux les différents scénarios.

### V – 1 Cas 1 : filière sidérurgique classique

La figure 48 récapitule les principaux résultats (quantités de matières, températures et compositions) correspondant à la filière classique, c'est-à-dire avec un haut fourneau conventionnel.

Les principaux chiffres à retenir sont les suivants. Au haut fourneau, la mise au mille coke est de 414 kg, il faut 1001 kg d'aggloméré et 134,8 kg de charbon pulvérisé (Pulverized Coal Injection, PCI) pour produire 913 kg de fonte et 370 kg de laitier. Au gueulard le débit de gaz est de 2095 Nm<sup>3</sup>. La fraction totale des agents réducteurs (CO + H<sub>2</sub>) représente 26,7 %, ce qui fait un volume de 559,4 Nm<sup>3</sup> de (CO + H<sub>2</sub>). En sortie de convertisseur, compte tenu de l'entrée de fonte et aussi des ferrailles introduites, on obtient 1 tonne (ici 1009 kg) de fonte et 110 kg de laitier.

On constate qu'à partir de cette configuration on a besoin de 490 kg de carbone au niveau du haut fourneau pour produire une tonne d'acier à la sortie du convertisseur.

Ces chiffres sont représentatifs d'une bonne usine intégrée classique. Ils n'appellent pas d'autres commentaires particuliers, mais la simulation de ce cas de référence était nécessaire pour disposer d'une base de comparaison avec les autres configurations considérées dans cette étude.



Figure 48 : Résultats de la simulation pour le cas 1, filière classique.

# V – 2 Cas 2 : filière avec haut fourneau à recyclage

La figure 49 correspond à la simulation de l'usine intégrée comportant un haut fourneau avec recyclage de gaz de gueulard à deux niveaux.

Au haut fourneau, la mise au mille est de 334 kg de coke et de 131,8 kg de PCI. La quantité de minerai issue de l'usine de l'agglomération est maintenue pratiquement constante (1010 kg). Le volume du gaz de gueulard est de 1981 Nm<sup>3</sup> (même ordre de grandeur que le cas précédent), mais on note une nette évolution de la fraction des agents réducteurs, qui passe du simple au double (23,5 % à 48 % pour CO et 3,2 % à 5,7 % pour H<sub>2</sub>). Ceci s'explique, en plus de l'effet de recyclage de ces éléments, par le fait que dans le cas avec recyclage on injecte bien moins de N<sub>2</sub> aux tuyères que dans le cas classique. La fraction totale des agents réducteurs (CO + H<sub>2</sub>) dans le gaz de gueulard représente 52,5 %, ce qui fait un volume de 1040 Nm<sup>3</sup> de (CO + H<sub>2</sub>).

On constate que pour produire une tonne d'acier on a besoin seulement de 410 kg de carbone au niveau du haut fourneau (contre 490 kg dans le cas classique).

Par cet exemple, on montre que l'intégration d'un haut fourneau à recyclage dans la filière globale est tout à fait faisable et donne les résultats escomptés à partir de l'étude du haut fourneau seul.



Figure 49 : Résultats de la simulation pour le cas 2, filière avec un haut fourneau à recyclage

#### **Comparaison entre le cas 1 et cas 2**

Le tableau 13 donne le récapitulatif de quelques résultats permettant de faire une comparaison entre les cas 1 et cas 2.

Le cas 2 donne de meilleures performances en termes d'émissions de  $CO_2$  puisque au lieu de consommer 490 kg de carbone dans la filière classique on n'a besoin que de 410 kg pour produire une même quantité, ce qui représente un gain de 16% sur le carbone qui se répercute sur les émissions de  $CO_2$ .

	HF Conv.	HF Recyc.	Unité	Commentaires
Coke	414	334	kg	Diminution de la mise au mille coke
Carbone total	490	410	kg	Diminution de la demande en carbone
Laitier HF	370	375	kg	Légère augmentation de la quantité de laitier
Laitier Convert.	110	96	kg	Diminution de la quantité de laitier
Gaz de gueulard	265	264	°C	Pas de changement

Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.

# V – 3 Cas 3 : filière sidérurgique avec substitution de matières premières

La figure 50 correspond aux résultats de la configuration classique. Nous avons testé l'ajout d'une boucle de recyclage de laitier du convertisseur au niveau de l'usine d'agglomération dans le cas d'une configuration d'usine classique (haut fourneau conventionnel) et dans le cas d'une configuration d'usine avec un haut fourneau à recyclage du gaz de gueulard.

La mise au mille au haut fourneau comporte 417 kg de coke, 1064 kg d'aggloméré de, et 134,8 kg de charbon pulvérisé.

A la sortie du haut fourneau, le volume du gaz de gueulard ainsi que sa composition n'ont pas changé (par rapport à un cas sans substitution).

La quantité de laitier produite au niveau du haut fourneau a sensiblement augmenté, passant à 417 kg. Cela s'explique par le fait que dans le cas de recyclage du laitier de convertisseur à l'agglomération, une partie de la quantité les deux composés chimiques CaO et SiO<sub>2</sub> qui n'a pas réagi complétement se retrouve naturellement dans le laitier du haut fourneau d'où l'augmentation de la quantité de laitier issu du haut fourneau. Ce phénomène se vérifie d'ailleurs dans tous les cas de recyclage du laitier du convertisseur.

Ce scénario permet de consommer moins de minerai puisqu'une partie du minerai demandé par l'agglomération est substituée par le laitier recyclé (partie ferrifère). Au lieu de consommer 850 kg de minerai, on arrive à ramener cette quantité à 792 kg, ce qui représente un gain de 6,8% de matière première sans apporter aucune modification aux procédés, d'où un gain économique certain.



Figure 50 : Résultats de la simulation pour le cas 3, filière classique avec substitution d'une partie du minerai par le laitier provenant du convertisseur.
La figure 51 correspond à l'ajout d'une boucle de recyclage de laitier du convertisseur au niveau de l'usine d'agglomération dans le cas d'un haut fourneau à recyclage du gaz de gueulard.

La mise au mille est de 340 kg de coke, 1071 kg d'aggloméré et 131,8 kg de charbon pulvérisé.

Le reste des résultats est très voisin du cas précédent.



Figure 51 : Résultats de la simulation pour le cas 3, filière avec haut fourneau à recyclage avec substitution d'une partie du minerai par le laitier provenant du convertisseur.

#### a) Comparaison entre filière classique et filière avec substitution de matières

Le tableau 14 donne le récapitulatif des résultats correspondants à la filière classique (haut fourneau conventionnel, pas de boucle de substitution de minerai par le laitier provenant du convertisseur) et le cas d'une filière avec une boucle de recyclage de laitier.

On constate que la substitution de minerai par le laitier n'influe pratiquement pas sur la demande en carbone, par contre le gain de 6,8% de minerai reste la principale différence en faveur du recyclage du laitier provenant du convertisseur.

	HF Conv.	Sub. + HF Conv.	Unité	Commentaires
coke	414	417	kg	Légère augmentation de la mise au mille coke
Carbone total	490	493,5	kg	Légère augmentation de la demande en carbone
Laitier HF	370	417	kg	Forte augmentation du laitier
Laitier Convert.	110	118	kg	Légère augmentation de la quantité
Gaz de gueulard	265	253	°C	Diminution de la température du gueulard

Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.

# b) Comparaison entre filières avec haut fourneau à recyclage avec et sans substitution de matières

Le tableau 15 compare une filière avec un haut fourneau à recyclage, dans l'hypothèse de l'absence de substitution de matières et dans le cas où le laitier est recyclé au niveau de l'usine d'agglomération. On peut faire les mêmes constations que précédemment, une légère augmentation de la demande en carbone. Réalisé avec la même quantité de minerai, le cas avec recyclage est économiquement intéressant.

	HF Recyc.	Sub. + HF Recyc.	Unité	Commentaires
coke	334	340	kg	Légère augmentation de la mise au mille coke
Carbone total	410	417	kg	Légère augmentation de la demande en carbone
Laitier HF	375	428	kg	Forte augmentation du laitier
Laitier Convert.	96	106	kg	Légère augmentation de la quantité
Gaz de gueulard	264	255	°C	Hausse de la température du gueulard

Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.

# c) Comparaison entre filières classique et filière avec haut fourneau à recyclage avec substitution de matières

Le tableau 16 compare le cas d'une filière conventionnelle et d'une filière avec haut fourneau à recyclage et substitution de minerai. D'après le tableau, on voit une nette amélioration par rapport au cas conventionnel, que ce soit au niveau de la demande en carbone ou l'utilisation des matières premières. On peut affirmer que le cas d'une filière avec un haut fourneau à recyclage avec substitution permet, en plus des 6,8% de gain en matières premières, de réduire les émissions de  $CO_2$  de 14,9%. On gagne sur les 2 types de recyclage.

	HF Conv.	Sub. + HF Recyc.	Unité	Commentaires
coke	414	340	kg	Importante diminution de la mise au mille coke
Carbone total	490	417	kg	Importante diminution de la demande en carbone
Laitier HF	370	428	kg	Forte augmentation du laitier
Laitier Convert.	110	106	kg	Légère diminution de la quantité du laitier provenant du convertisseur
Gaz de gueulard	265	255	°C	diminution de la température du gueulard

Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.

### V – 4 Cas 4: Influence de Si sur toute la filière.

Dans cette partie, nous exposons les résultats correspondant à l'influence de Si dans la fonte sur l'ensemble de la filière.

#### a) Filière classique

Le trois premiers cas (figure 52, 53 et 54) correspondent à une filière classique. La quantité de carbone pulvérisé injecté aux tuyères est de 134,8 kg pour les trois cas. Information supplémentaire pour cette étude de cas, nous avons ajouté sur les figures le bilan thermique du convertisseur.



Figure 52 : Résultats de la simulation pour le cas 4, filière classique et une fraction en Si de 1% dans la fonte.



Figure 53 : Résultats de la simulation pour le cas 4, filière classique et une fraction en Si de 1,5% dans la fonte.

Coke					Gaz du gu	eulard				
Qté		414	Carbo	one 👝 🕨	Qté		2095			
Compo				490	Т		265			
	С	393	+ +	_	Compo					
				-		СО	23,5			
						CO2	18,3			
	~~~					H2	3,2			
	- 9-0-91					N2	55			
<b>1</b>		1								
		-								
					PCI					
	raw summer these		Haut fourn	neau	Oté		134.8			
		infact	convention	nnel	Compo	C	97			
Page 1	<u>ČIII MIM</u>					-				
9		and			Fonte					
precipier	ter Base				Qté		931			
					Temp		1434			
				•	Compo	-				
Agglo						C	4,34			
Qté		1001				Si	1,76			
Compo	5.202	F 2 7	Laitie	r		Min	0,32			
	Fe2O3	53,7	Qte	370		P	0,07			
	Fe3O4	17,6				S	0,05			
	SIU2	5,7				Fe	93,46			
	CaU	5,3								
	CaFe2O4	14,4				+				
Si	1	1,76								
		Bilan therr	mique du convertisseur MJ			V/				
Enthalpie o	de la fonte	1142								
Oxydation	du CO	318						Acier		
Oxydation	de Mn, P, Si	657						Qté		1009
Oxydation	du Fe	20,6				C. La Carte C.			Compo	
Combustio	on (CO en CO2	) 118					-		Fe	99,78
Total entré	ées	2255,6							С	0,033
Sorties									Mn	0,094
Enthalpie o	de l'acier	1374					•		S	0,01
Enthalpie o	du laitier	187							Р	0,014
Enthalpie o	du gaz	248				Laitier Conver			02	0,072
enthalpie o	des poussière	s 1				Qté	110			
Pertes the	rmiques	445,6								

#### Figure 54 : Résultats de la simulation pour le cas 4, filière classique et une fraction en Si de 1,7% dans la fonte.

#### Comparaison entre les trois cas pour une filière classique

Le tableau 17 compare les trois premiers cas considérés dans l'hypothèse d'un haut fourneau conventionnel.

Si	1	1,5	1,7	Unité	Commentaires
Coke	402	410	414	kg	Légère augmentation de la mise au mille coke
Carbone	479	489	490	kg	Légère augmentation de la demande en carbone
Laitier HF	385	376	370	kg	Diminution de la quantité de laitier
Laitier Conver.	94	105	110	kg	Légère augmentation de la quantité du laitier
Gaz de gueuelard	254	261	265	°C	Légère augmentation de la température
Bilan thermique convertisseur	1981	2163	2255	MJ	Augmentation des apports thermiques

Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.

#### b) Filière avec haut fourneau à recyclage

Le tableau 18 compare les trois cas considérés dans l'hypothèse d'un haut fourneau à recyclage et les figures 55 à 57 représentent les principales valeurs calculées.

#### Comparaison entre les trois cas pour une filière avec un haut fourneau à recyclage

Les mêmes constatations que pour le cas de la filière classique peuvent être faites pour le cas avec recyclage.

Si	1	1,14	1,5	Unité	Commentaires
Coke	331	334	345	kg	Légère augmentation de la mise au mille coke
Carbone	408	410	422	kg	Légère augmentation de la demande en carbone
Laitier HF	378	375	369	kg	Diminution de la quantité de laitier
Laitier Conver.	93	96	104	kg	Légère augmentation de la quantité du laitier
Gaz de gueuelard	259	264	282	°C	Légère augmentation de la température
Bilan thermique covertisseur	1998	2048	2180	MJ	Augmentation des apports thermiques

Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.



## Figure 55 : Résultats de la simulation pour le cas 4, filière avec haut fourneau à recyclage et une fraction en Si de 1% dans la fonte.



## Figure 56 : Résultats de la simulation pour le cas 4, filière avec haut fourneau à recyclage et une fraction en Si de 1,14% dans la fonte.



## Figure 57 : Résultats de la simulation pour le cas 4, filière avec haut fourneau à recyclage et une fraction en Si de 1,5% dans la fonte.

#### c) Discussion sur l'influence du Silicium

Des figures et tableaux précédents, on peut conclure qu'à une augmentation de la teneur en Si de la fonte est associée :

- une augmentation des besoins énergétiques en carbone du haut fourneau,
- une augmentation du poste « apports thermiques » du bilan thermique du convertisseur.

Le premier point correspond à la discussion évoquée en introduction à cette partie. Comme noté par Rasul et al. (2007) on note une corrélation linéaire entre le pourcentage de Si dans la fonte et les besoins en C du haut fourneau qui s'explique par la réduction de la silice par le carbone, réaction endothermique. Portés sur une figure (figure 25) analogue à celle de Rasul et al. (2007), nos résultats montrent cependant une sensibilité moindre (la pente de la droite est moins forte) du besoin en carbone vis-à-vis de la teneur en silicium de la fonte, surtout dans le cas avec recyclage.



Figure 58 : Corrélation entre la demande en carbone au haut fourneau et le pourcentage en Si dans la fonte.

Le second point s'explique par le fonctionnement du convertisseur.

Le silicium présent dans la fonte s'oxyde rapidement et presque complétement, formant SiO<sub>2</sub> qui rejoint le laitier. Cette réaction est très exothermique. D'après les extraits du bilan

thermique du convertisseur ; on vérifie bien que c'est le poste « oxydation de Mn, P, Si » qui augmente avec le pourcentage de Si dans la fonte. Cela signifie qu'on peut récupérer au convertisseur l'énergie supplémentaire dépensée au haut fourneau. Pour savoir si cette récupération est complète, ou s'il existe un optimum du point de vue énergétique entre les 2 procédés – ce qui était un peu l'objectif de ces simulations, il faudrait préalablement modifier notre bilan thermique du convertisseur. En effet, dans sa version actuelle, celui-ci est trop simplifié : on suppose par exemple que les gaz sortent à la même température que l'acier et on calcule les pertes par différence entre les apports et besoins. Cette façon de faire avait été retenue en première approche pour bien rendre compte du fonctionnement standard de l'usine Sollac-Fos mais elle n'est pas adaptée à une extrapolation à des fonctionnements trop différents. En réalité, le contrôle industriel du refroidissement du convertisseur passe par l'ajout de ferraille (quand les apports de chaleur sont trop grands). Nous aurions pu simuler une telle action, en visant des pertes thermiques constantes mais le temps a manqué (ces résultats ont été des derniers obtenus).

#### **VI – Conclusion**

Le choix des cas précédents et leur étude étaient en partie déterminé par des discussions avec des industriels (ArcelorMittal).

A la lumière des résultats présentés auparavant, plusieurs conclusions peuvent être avancées.

Un modèle capable de simuler l'ensemble de la filière sidérurgique a été développé sous Aspen. Ensuite, plusieurs cas ont été étudiés, explorés selon le but recherché.

Le premier cas nous a permis de disposer d'une base de référence. Le deuxième cas montre que, d'une part, l'intégration d'un haut fourneau à recyclage dans une filière sidérurgique intégrée est tout à fait possible et, d'autre part, que le rendement en émissions de CO<sub>2</sub> a été amélioré. L'étude de cas 3, qui consiste à substituer une partie du minerai introduit au niveau de l'usine d'agglomération par le laitier issu du convertisseur, représente un intérêt économique non négligeable. Certes, pas d'amélioration au niveau de la demande en carbone n'a été constaté, par contre il permet une économie 6,8% de minerai.

L'étude de cas n°4 explore l'influence de la fraction du silicium dans la fonte sur la demande en coke au niveau du haut fourneau et le bilan thermique au niveau du convertisseur. En effet, l'analyse des résultats a montré que plus la fraction de Si était importante dans la fonte issue du haut fourneau, plus la demande en carbone augmentait. Ce résultat est en accord avec la littérature (Rasul, 2007).

Comme perspective au travail actuel, un inventaire énergétique exhaustif (la prise en compte de tous les besoins énergétiques au niveau de chaque procédé) peut être intéressant à réaliser. Des études d'optimisation énergétique pourraient alors être menées, notamment dans le cas où l'usine intégrée se trouve à proximité d'autres unités industrielles, telles qu'une usine de génération d'électricité et chaleur comme l'étude de Grip (2013).

# **Conclusions et Perspectives**

#### Conclusions

A la suite du programme européen ULCOS, orienté vers la conception de nouveaux procédés sidérurgiques susceptibles de réduire drastiquement les émissions de CO<sub>2</sub> de la sidérurgie, le haut fourneau à recyclage des gaz de gueulard a émergé comme une solution prometteuse et a priori technologiquement réalisable.

L'équipe Procédés d'élaboration de l'IJL, en accord avec ArcelorMittal, a alors pensé qu'il serait judicieux de disposer d'un outil mathématique permettant d'évaluer, du point de vue énergétique et environnemental, ce procédé et l'intégration de celui-ci dans la filière sidérurgique complète. C'est à cette tâche de modélisation que nous nous sommes consacrés dans ce travail de thèse.

Nous avons retenu une approche de type systémique, dans laquelle chaque procédé est modélisé de manière simplifiée (description 0D ou 1D) tout en tenant compte des bilans matières et énergie et des principales réactions chimiques. Cette approche est en effet bien adaptée à l'assemblage ultérieur des modèles, interconnectés par les flux de matières et d'énergie, en un flowsheet (diagramme de flux) unique simulant l'usine sidérurgique intégrée complète. Les outils numériques utilisés à cet effet ont été le logiciel Aspen Plus, dans lequel les modèles spécifiques écrits en Fortran ont été implémentés.

Le mémoire a été divisé en deux parties : modèle du haut fourneau à recyclage et modèle de l'usine intégrée complète.

Pour mettre au point le modèle du haut fourneau à recyclage, nous sommes partis d'un modèle de haut fourneau classique préalablement développé au laboratoire. Nous l'avons adapté et modifié pour qu'il puisse simuler le nouveau réacteur. Nous avons ainsi modifié un certain nombre de flux et de calculateurs, ajouté un module de traitement des gaz (séparation et capture de CO<sub>2</sub>), considéré une injection d'O<sub>2</sub> au lieu d'air, et une réinjection du gaz recyclé à un ou deux niveaux dans le haut fourneau. Ce modèle a été validé en simulant avec succès huit essais expérimentaux conduits sur le haut fourneau pilote de Lulea (Suède) dont nous disposions des principaux résultats issus d'une campagne en 2007.

Après avoir introduit un nouveau calcul des pertes thermiques en zones supérieure et inférieure du haut fourneau, nous avons réalisé quelques simulations supplémentaires, plus théoriques, pour étudier l'influence du débit de gaz recyclé et comparer les injections à un et deux niveaux. Les principaux résultats montrent que le haut fourneau à recyclage permet effectivement de réduire la mise au mille de coke d'environ 20% et conséquemment les émissions de CO<sub>2</sub> et qu'une réinjection à deux niveaux ne semble pas plus performante d'une réinjection au seul niveau des tuyères.

Ce modèle considéré comme validé et suffisamment robuste pour simuler des configurations différentes a pu être intégré au simulateur d'usine sidérurgique décrit dans la seconde partie, en vue d'études prospectives.

Pour construire le modèle complet d'usine intégrée, nous avons assemblé les modules de l'unité d'agglomération, de la cokerie, du convertisseur et du haut fourneau (précédemment développés) ou du haut fourneau à recyclage (nouveau) dans un flowsheet unique sous Aspen Plus. Cette façon de procéder s'est révélée plus praticable qu'une première option envisagée consistant en l'assemblage de blocs dits hiérarchiques dans Aspen. Ce simulateur complet d'usine fonctionne, ses résultats sont cohérents et reproduisent bien les conditions de marche d'une usine intégrée classique comme celle de Sollac-Fos qui nous a servi de référence.

Nous l'avons alors mis à profit pour tester différents scénarios alternatifs d'intérêt industriel. Le premier est celui où l'usine intégrée est construite autour d'un haut fourneau à recyclage au lieu d'un haut fourneau classique. Nous avons montré la viabilité d'une telle configuration et avons retrouvé l'amélioration de performance (mise au mille coke) apportée par le haut fourneau à recyclage. Le deuxième scénario, envisagé tant avec haut fourneau classique qu'avec haut fourneau à recyclage, a consisté à recycler le laitier produit au convertisseur dans la charge de l'usine d'agglomération. Ce scénario conduit à une économie de minerai de fer d'environ 7%, financièrement appréciable, sans perturber le fonctionnement de l'ensemble de l'usine. On produit juste plus de laitier au haut fourneau et on consomme 1 à 2% de plus de coke. Enfin, le troisième scénario a porté sur l'influence du paramètre teneur en Si de la fonte, que l'on a fait varier de 1 à 1,7%. On observe qu'une augmentation de cette teneur entraine une augmentation des besoins en carbone au haut fourneau, en accord avec la littérature, et une augmentation des apports thermiques au convertisseur. Nous n'avons pu cependant, en l'état du modèle du convertisseur, trop simplifié de ce point de vue, conclure sur l'existence d'un optimum énergétique (lié à la teneur en Si de la fonte) au niveau de l'ensemble de la filière.

126

#### Perspectives

A l'issue de ce travail, on dispose d'un outil, le simulateur de l'ensemble de l'usine intégrée qui pourrait bien sûr être amélioré mais surtout qui mériterait d'être valorisé en l'utilisant plus à fond.

Sur le plan des améliorations, on gagnerait à affiner le calcul des pertes thermiques (valider les corrélations au haut fourneau et en établir au convertisseur) et à ajouter des fonctionnalités comme l'écriture de bilans matières atomiques (Fe, C, O...) et thermiques au niveau de l'ensemble de l'usine. Les calculs sont faits par le simulateur mais n'ont pas pu été édités de cette manière par manque de temps.

Sur le plan de l'exploitation de l'outil, il serait intéressant de simuler d'autres configurations, notamment à des fins d'optimisation énergétique liée aux circuits de gaz chauds (gaz de cokerie, gaz de gueulard, fumées de convertisseur). Il y a assurément des possibilités de recyclage partiel entre unités à explorer. A ces simulations prospectives peuvent être associés des calculs économiques : vaut-il mieux par exemple favoriser l'utilisation du potentiel réducteur de ces gaz dans les procédés ou en brûler une partie pour produire de l'électricité ?

Plus globalement, les possibilités d'optimisation sont multiples et multicritères : on peut rechercher – en faisant varier un ou plusieurs paramètres – un optimum énergétique, un optimum économique ou encore un optimum environnemental. Des méthodes mathématiques adaptées, internes à Aspen Plus ou externes, sont à explorer.

Enfin, concernant les aspects environnementaux, le couplage du simulateur (indirect, via les flux de matière et d'énergie) à un logiciel d'ACV, comme l'avait effectué A.-M. losif, mériterait d'être repris et affiné, en améliorant notamment la description de la physico-chimie de la formation des polluants dans les différents modèles des procédés.

Pour conclure, nous espérons avoir contribué au développement d'un outil dont le potentiel pourra être exploité.

127

## Références

Aspen Tech, 2001, "Aspen Plus 11.1 User Guide". Aspen Technology. Cambridge, USA.

J. Astier, 1998. "Nouveaux procédés d'aciérie-Procédé EOF". Techniques de l'ingénieur. M 7 672.

J. Astier, "Nouvelles possibilités dans l'élaboration de la fonte", Techniques de l'ingénieur, M 7 550v2

P. R. Austin, H.Nogami, J. Yagi, 1997a, "A mathematical model of four phase motion and heat transfer in the blast furnace". ISIJ International, 37, 458.

P. R. Austin, H. Nogami, J. Yagi, 1997b, "A mathematical model for blast furnace reaction analysis based on the four fluid model". ISIJ International, 37, 748.

G. Béranger, G. Henry G. Sanz, "Le livre de l'acier". Techniques et documentations. Lavoisier.

J.-P. Birat, "Steel and CO2 – the ULCOS Program, CCS and Mineral Carbonation using Steelmaking Slag", ArcelorMittal, Maizières-Lès-Metz, France.

J-P. Birat, J. Borlée, B. Korthas2, J. V.an D. Stel, K. Meijer, C. Günther, M. Halin, T. Bürgler, H. Lavelaine, C. Treadgold, I. Millar, D. Sert, T. Torp, F. Patisson, B. Paya, E. Burstrom, "ULCOS program: a progress report in the Spring of 2008", SCANMET III, 3rd International Conference on Process Development in Iron and Steelmaking, 8–11 June, 2008.

J. Blondeau, "Minerais et fondants", Techniques de l'ingénieur, M 7 040.

M. Burteaux, "Haut fourneau : théorie", Techniques de l'ingénieur, traité Matériaux métalliques, M 7 400.

M. Burteaux, "Haut fourneau : conception et technologie", Techniques de l'ingénieur, M 7 410

M. Burteaux, "Haut fourneau : exploitation", Techniques de l'ingénieur, traité Matériaux métalliques, M 7 411.

131

J.-O. Choi, 2004, "CO<sub>2</sub> Reduction by blast furnace top gas recycling combined with waste hydrocarbon gasification". Conference paper, Research Institute of Industrial Science and Technology. Korea.

G. Danloy, A. Berthelemot, M. Grant, J. Borlée, D. Sert, J. van de Stel, H.Jak, et al. 2009, "ULCOS – Pilot experiments for low CO2 steelmaking at Lulea experimental blast furnace (Essais pilotes de procédé de haut-fourneau à bas CO2 au haut fourneau expérimental de Lulea)". January, n°1, pp. 1-8, Revue de la Métallurgie.

G. Danloy, J. van der Stel, P. Schmöle, 2008, "Heat and mass balances in the ULCOS Blast Furnace". Proc., Fourth Ulcos seminar, 1-2 October, Essen - Top Gas Recycling Blast Furnace / n° 2-1, Revue de Métallurgie.

J.-M. Duchene, D. Isler, É. Yax, "Elaboration du métal primaire, coke métallurgique", Techniques de l'ingénieur, M 7 340.

Gielen, D.J., Dril, A.W.N.van, 1999, "CO2 reduction strategies in the basic metals industry: a systems approach. In: Mishra, B., (Ed.), EPD Congress Proceedings, San Diego, USA, February 28–March 4. The Minerals, Metals and Materials Society, Washington, DC, USA.

C.-E. Grip, M. Larsson, S. Harvey, L. Nilsson,"Process integration. Tests and application of different tools on an integrated steelmaking site". Applied Thermal Engineering 53 (2013) 366e372.

M. Hatano, K. Kurita, 1980,"A mathematical model of blast furnace considering radial distribution of gas flow, heat transfer and reactions". Tetsu-to-Hagane, 66, 1898.

A.M. Iosif, 2006, "Physical-chemical modeling of the conventional steelmaking route for life cycle inventory analysis (Modélisation physico-chimique de la filière classique de production d'acier pour l'analyse de l'inventaire de cycle de vie)". PhD dissertation. INPL, Nancy.

A.M.Iosif, F. Hanrot, D. Ablitzer, 2008. "Process integrated modelling for steelmaking life cycle inventory analysis". Environmental Impact Assessment Review 28, 7, 429-438.

M. Larsson, C. Wang, J. Dahl, 2006, "Development of a method for analysing energy, environmental and economic efficiency for an integrated steel plant", Applied Thermal Engineering 26 (2006) 1353–1361.

E. Marlière, (2005). Données internes, Arcelor Research.

O. Mirgaux, D. Ablitzer, A.-M. Iosif, 2009, "Simplified physico-chemical modeling for the classical iron and steelmaking route and ULCOS breakthrough processes life cycle inventory", Revue de Métallurgie 9 350–356.

H. Nogami, M. Chu, J.-I. Yagi, 2005, "Multi-dimensional transient mathematical simulator of blast furnace process based on multi-fluid and kinetic theories". Computers and Chemical Engineering 29 2438–2448.

A. Orth, Ni. Anastasijevic, H. Eichberger, 2007, "Low CO2 emission technologies for iron and steelmaking as well as titania slag production", Minerals Engineering 20 854–86.

M.G. Rasul, B.S. Tanty, B. Mohanty, 2007, "Modelling and analysis of blast furnace performance for efficient utilization of energy", Applied Thermal Engineering 27 (2007) 78–88.

F. Schultmann, B. Engels, O. Rentz, 2004, "Flowsheeting-based simulation of recycling concepts in the metal industry". Journal of Cleaner Production 12 737–751.

F. Schultmann, B. Engels, O. Rentz, 2007, "Modelling and analysis of blast furnace performance for efficient utilization of energy", Applied Thermal Enginnering 27 (2007), 78-88.

S.Wu, J. Xu, J.-I. Yagi, X. Guo and L. Zhang, 2011, "Prediction of Pre-reduction Shaft Furnace with Top Gas Recycling Technology Aiming to Cut Down CO<sub>2</sub> Emission", ISIJ International, Vol. 51 (2011), No. 8, pp. 1344–1352

SOLLAC, 1976, "Sidérurgie générale. Du minerai à l'Acier". Tome 1, PE - F Sollac.

J. van der Stel, G. Louwerse, D. Sert, A. Hirsch, N. Eklund, M. Pettersson, 2013, "Top gas recycling blast furnace developments for 'green' and sustainable ironmaking", Ironmaking and Steelmaking, vol. 40, No. 7, 489.

T. Sugiyama, M. Sugata, 1987, "Development of two-dimensional mathematical model of blast furnace "BRIGHT"". Seitetsu Kenkyu, 325, 34.

133

K.Takatani, T.Inada, Y. Ujisawa, 1994, "3-dimensinal dynamic mathematical simulator of blast furnace". Current Advanced Material Proceedings, 7, 50.

B. Vanderheyden, C. Mathy, 2001, "Mathematical model of the sintering process taking into account different input gas conditions". La Revue de Métallurgie. 3(2001), 251-257.

A. Zeibik, K. Lampert, M. Szega, 2008 ,"Energy analysis of a blast-furnace system operating with the Corex process and CO2 removal", Energy 33 (2008), 199-205.

G. Zuo, A. Hirsch, 2008 ,"The Trial of the Top Gas Recycling Blast Furnace at LKAB's EBF and Scale-up". Proc . Fourth Ulcos seminar, Essen, 1-2 October, Essen - Top Gas Recycling Blast Furnace / n° 2-3, Revue de Métallurgie, 2008.

H. Zhang, H. Li, Q. Tang, W. Bao, 2010 ,"Conceptual design and simulation analysis of thermal behaviors of TGR blast furnace and oxygen blast furnace", Technological Sciences, January 2010 Vol. 53 No.1: 85–92.

#### <u>Ouvrages</u>

J.G. Peacey, W.G. Davenport, "The Iron Blast Furnace, theory and practice", International Series on Materials Science and Technology, Volume 31, Edition Pergamon Press, 1979.

J. Philbert, A. Vignes, Y. Bréchet, P. Combrade, 1997, "Métallurgie : du minerai au matériau", Edition Masson.

K. Ishii, 2000, "Advanced Pulverized coal injection technology and blast furnace operation", Edition Pergamon.

L.V. Bogdandy, H.-J. Engell, 1971, "The Reduction of Iron Ores", Scientific Basis and Technology.

A.-M. losif, "Modélisation physico-chimique de la filière classique de production d'acier pour l'analyse de l'Inventaire du Cycle de Vie", 2006, mémoire de thèse.

A. Ranzani da Costa, " La réduction du minerai de fer par l'hydrogène : étude cinétique, phénomène de collage et modélisation", 2011, mémoire de thèse.

D. Wagner, " Etude expérimentale et modélisation de la réduction du minerai de fer par l'hydrogène", 2008, mémoire de thèse.

ULCOS Periodic activity report, 2007, 3rd year. ULCOS Periodic activity report, 2008, 4th year. ULCOS Periodic activity report, 2009, 5th year. ULCOS Periodic activity report, 2010, 6th year. ULCOS New Blast Furnace Process – Mid-Term Report.

Références internet : www.citepa.org www.endress.com www.wordlsteel.org www.steel.org www.jisf.co.ja www.steelbenchmarker.com www.ulcos.org

# ANNEXES

## **ANNEXE I**

## Caractéristiques du haut fourneau pilote à Lulea

Avant de passer à un haut fourneau à recyclage grandeur nature, un prototype à l'échelle pilote a été construit afin d'observer le comportement du haut fourneau sous sa nouvelle version et s'assurer de la stabilité et la sûreté de son fonctionnement.

Cette campagne de mesures a été conduite chez LKAB à Lulea, Suède. Elle a duré 7 semaines (du 25 septembre 2007 jusqu'au 8 novembre 2007) et plusieurs configurations (scénarios en fonctions des données opératoires) ont été testées (ULCOS 4th Report activity), Zuo (2008) et Dahlstedt (1999).

La figure 59 ci-dessous donne une vue 3D du fourneau utilisé. Les tableaux 19 et 20 donnent les caractéristiques géométriques et celles relatives à la production. La figure 60 montre ce haut fourneau dans son environnement.



Figure 59 : Caractéristiques du haut fourneau utilisé pendant la campagne (Guangqing Zuo, 2008).

Données techniques						
Volume total	m <sup>3</sup>	9				
Diamètre du ventre	m	1.4				
Hauteur	m	6				
Diamètre d'entrée	m	1				
Pression maxi	bar	1.5				

Tableau 19 : Caractéristiques géométriques du pilote.

Production typique						
Production	t/jour	36				
Combustible	kg/t <sub>fonte</sub>	530				
Vent	Nm³/h	1700				
Température de vent	°C	1250				
O2 dans le vent	bar	25 %				
Pression	m	1				

Tableau 20 : Données relatives à la production du pilote.





## **ANNEXE II**

Résultats des autres cas simulés pour le haut fourneau à recyclage

La série de flowsheets suivante donne les résultats correspondant aux autres cas traités dans la première partie relative au haut fourneau à recyclage.



Figure 61 : Résultats des simulations pour le cas 1.



Figure 62 : Résultats des simulations pour le cas 2.



Figure 63 : Résultats des simulations pour le cas 3.



Figure 64 : Résultats des simulations pour le cas 5.



Figure 65 : Résultats des simulations pour le cas 6.






Figure 67 : Résultats des simulations pour le cas 8.

## Liste des Figures

Figure 1 : Différentes utilisations d'acier dans l'activité humaine	13
Figure 2 : Production mondiale d'acier de 1950 à 2012 et le taux de croissance du PIB	
mondial durant cette période (wordlsteel)	14
Figure 3 : Prix en dollar américain de la tonne d'acier au cours de la décennie précédente	
(steelbenchmarker).	15
Figure 4 : Prix en dollar américain de la tonne métrique de ferraille au cours de la décennie	)
précédente (steelbenchmarker).	16
Figure 5 : Schéma d'ensemble (gauche) et une photographie (droite) d'un haut fourneau	
(Corus).	23
Figure 6 : Coupe verticale d'un haut fourneau conventionnel (Philbert, 1997)	24
Figure 7 : Création et circulation de CO et CO <sub>2</sub> entre les couches de coke et de minerai	25
Figure 8 : Vue récapitulative des flux de matières, les éléments chimiques et les différentes	3
zones	27
Figure 9 : Entrées-sorties pour les bilans matière	28
Figure 10 : le tracé de la droite opératoire (Philbert, 1997).	29
Figure 11 : Diagramme d'équilibre de Fe, Fe3O, FeO , CO et H2. (Burteaux, 1994)	30
Figure 12 : Droite opératoire dans le cas réel. (Philbert, 1997)	31
Figure 13 : Division du haut fourneau en deux zones et les flux de matières qui les lient	33
Figure 14 : le sectionnement du haut fourneau en deux zones ainsi que les flux de matières	s
qui les lient	37
Figure 15 : Paramètres d'entrées nécessaires au modèle ASPEN et données de sorties.	
calculées par le modèle	38
Figure 16 : Schéma de principe d'un haut fourneau à recyclage avec système de capture d	lu
CO <sub>2</sub> et réinjection à deux niveaux.	44
Figure 17 : Historique du recyclage des gaz de gueulard (van der Stal, 2013)	45
Figure 18 : Résultats de la campage d'essais de 2007, bleu (réducteurs), vert (gaz recyclé)	)
et rouge (gain en carbone) (Van der Stal, 2013).	47
Figure 19 : Résultats de la campagen d'essais de 2007, bleu (réducteurs), vert (gaz recycle	é)
et rouge (gain en carbone) (Van der Stal, 2013).	48
Figure 20 : Résultats de calculs pour des injection à différents niveaux en utilisant l'outil	
Mogador (van der Stel, 2013)	49
Figure 21 : Cartes du degré de réduction de la charge	50
Figure 22 : distribution des températures à l'intérieur du haut fourneau en °C	51
Figure 23 : Distribution de la concentration de CO et H2 en % molaire	52
Figure 24 : Résultats de simulation, a) distribution de la fraction massique de CO, b)	
distribution de la fraction massique de H <sub>2</sub> , c) distribution de température des solides, d)	
distribution du degré de réduction de la charge, dans le cas classique et avec recyclage	54
Figure 25 : Schéma de principe du modèle du haut fourneau à recyclage	58
Figure 26 : Evolution de la consommation en coke en fonction du débit de gaz recyclé	61
Figure 27 : Résultats des simulations pour le cas de réference.	63
Figure 28 : Résultats des simulations pour le cas 4	63
Figure 29 : Comparaison des données expérimentales et résultats des calculs pour les	
agents réducteurs (CO+H <sub>2</sub> )	65
Figure 30 : Comparaison des données expérimentales et résultats des calculs	66

Figure 31 : Pertes thermiques du haut fourneau expérimental de Lulea (2003) en fonction du débit de gaz total pour différentes conditions opératoires : pertes globales (x), de la zone de préparation ( $\Delta$ ), et la zone d'élaboration (o)
Figure 32 : pertes thermiques inférieures en fonction du débit de gaz injecté au niveau des tuyères pour différents cas
Figure 33 : Evolution des besoins en coke pour différentes répartitions d'un volume constant de gaz recyclé
Figure 34: la filière sidérurgique intégrée : procédés de transformation et les flux de matières qui les relient (d'après endress.com)
Figure 35 :L'usine intégrée de Lulea, à gauche le flow sheet, à droite la photo aérienne du site (Grip, 2013)
Figure 36 : Variation de la consommation énergétique et des émissions de CO <sub>2</sub> selon différents scénarios. (Larsson, 2006)
Figure 37 : Schéma d'ensemble de l'usine sidérurgique intégrée avec les flux de matières et d'énergie (Larsson, 2006)
Figure 38 : Représentation schématique d'une usine d'agglomération (losif, 2008)
Figure 40 : Schéma d'une cokerie (losif, 2008)
volatiles sur sec. (losif, 2006)
Figure 43 : Schéma d'un convertisseur à oxygène (BOF pour Basic Oxygen Furnace) (Astier,
Figure 44 : Synthèse des entrées-sorties du convertisseur
Figure 46 : la mise au mille coke en fonction du niveau de Si dans la fonte. (Rasul, 2007) 98 Figure 47 : Répartition des émissions de CO <sub>2</sub> par procédés de la filière classique. (Orth,
2004)
Figure 49 : Résultats de la simulation pour le cas 2, filière avec un haut fourneau à recyclage
Figure 50 : Résultats de la simulation pour le cas 3, filière classique avec substitution d'une partie du minerai par le laitier provenant du convertisseur
Figure 51 : Résultats de la simulation pour le cas 3, filière avec haut fourneau à recyclage avec substitution d'une partie du minerai par le laitier provenant du convertisseur
1% dans la fonte
1,5% dans la fonte
Figure 54 : Resultats de la simulation pour le cas 4, filiere classique et une fraction en Si de 1,7% dans la fonte
Figure 55 : Résultats de la simulation pour le cas 4, filière avec haut fourneau à recyclage et une fraction en Si de 1% dans la fonte
Figure 56 : Résultats de la simulation pour le cas 4, filière avec haut fourneau à recyclage et une fraction en Si de 1,14% dans la fonte

Figure 57 : Résultats de la simulation pour le cas 4, filière avec haut fourneau à recyclage	et et
une fraction en Si de 1,5% dans la fonte	. 119
Figure 58 : Corrélation entre la demande en carbone au haut fourneau et le pourcentage	en
Si dans la fonte	. 120
Figure 59 : Caractéristiques du haut fourneau utilisé pendant la campagne. (Guangqing Z	Ľuo,
2008)	. 139
Figure 60 : Haut fourneau à recyclage connecté aux différentes unités rajoutées	. 140
Figure 61 : Résultats des simulations pour le cas 1	. 141
Figure 62 : Résultats des simulations pour le cas 2	. 142
Figure 63 : Résultats des simulations pour le cas 3	. 142
Figure 64 : Résultats des simulations pour le cas 5	. 143
Figure 65 : Résultats des simulations pour le cas 6	. 143
Figure 66 : Résultats des simulations pour le cas 7	. 144
Figure 67 : Résultats des simulations pour le cas 8	. 144

## Liste des Tableaux

Tableau 2 : Résultats des simulations de validation. 41   Tableau 3 : Analyse comparative entre les différentes configurations. 55   Tableau 4 : Performances du VPSA. 57   Tableau 5 : Composition du gaz réinjecté au niveau des tuyères et shaft. 57   Tableau 6 : Liste des cas simulés. 62   Tableau 1 : Processus physico-chimiques intervenant sur la chaine d'agglomération 80   Patisson, 1987). 80   Tableau 8 : Données industrielles pour l'usine d'agglomération Sollac-Fos utilisées dans le 80   modèle (Arcelor-Research, 2004) 83   Tableau 9 : Enfournements au convertisseur pour 1 tonne d'acier et en fonction de 81   l'enfournement de ferrailles (Béranger, 1994). 90   Tableau 10 : Principales réactions dans la formation du laitier. 91   Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur 97   Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 105   Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 109   Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 110   Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 110   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparais	Tableau 1 : Extrait des données des deux scénarios de validation	. 40
Tableau 3 : Analyse comparative entre les différentes configurations. 55   Tableau 4 : Performances du VPSA. 57   Tableau 5 : Composition du gaz réinjecté au niveau des tuyères et shaft. 57   Tableau 6 : Liste des cas simulés. 62   Tableau 1 : Processus physico-chimiques intervenant sur la chaine d'agglomération 80   (Patisson, 1987). 80   Tableau 8 : Données industrielles pour l'usine d'agglomération Sollac-Fos utilisées dans le 83   modèle (Arcelor-Research, 2004). 83   Tableau 9 : Enfournements au convertisseur pour 1 tonne d'acier et en fonction de 83   l'enfournement de ferrailles (Béranger, 1994). 90   Tableau 10 : Principales réactions dans la formation du laitier. 91   Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur 97   Tableau 13 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction de Si 99   Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas 109   Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas 110   Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas 110   Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas 111   Tableau 17 : Récapitulatif	Tableau 2 : Résultats des simulations de validation	. 41
Tableau 4 : Performances du VPSA	Tableau 3 : Analyse comparative entre les différentes configurations	. 55
Tableau 5 : Composition du gaz réinjecté au niveau des tuyères et shaft. 57   Tableau 6 : Liste des cas simulés. 62   Tableau 1 : Processus physico-chimiques intervenant sur la chaine d'agglomération 80   (Patisson, 1987). 80   Tableau 8 : Données industrielles pour l'usine d'agglomération Sollac-Fos utilisées dans le modèle (Arcelor-Research, 2004). 83   Tableau 9 : Enfournements au convertisseur pour 1 tonne d'acier et en fonction de l'enfournement de ferrailles (Béranger, 1994). 90   Tableau 10 : Principales réactions dans la formation du laitier. 91   Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur 97   Tableau 6 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction de Si dans la fonte. 99   Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 105   Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 110   Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 111   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 111   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 115   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 116   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultat	Tableau 4 : Performances du VPSA	. 57
Tableau 6 : Liste des cas simulés. 62   Tableau 1 : Processus physico-chimiques intervenant sur la chaine d'agglomération 80   (Patisson, 1987). 80   Tableau 8 : Données industrielles pour l'usine d'agglomération Sollac-Fos utilisées dans le 83   modèle (Arcelor-Research, 2004). 83   Tableau 9 : Enfournements au convertisseur pour 1 tonne d'acier et en fonction de 90   Tableau 10 : Principales réactions dans la formation du laitier. 91   Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur 97   Tableau 6 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction de Si 99   Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas 109   Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas 110   Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas 110   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas 111   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas 115   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas 116   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas 115   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et co	Tableau 5 : Composition du gaz réinjecté au niveau des tuyères et shaft	. 57
Tableau 1 : Processus physico-chimiques intervenant sur la chaine d'agglomération 80   Tableau 8 : Données industrielles pour l'usine d'agglomération Sollac-Fos utilisées dans le 80   modèle (Arcelor-Research, 2004) 83   Tableau 9 : Enfournements au convertisseur pour 1 tonne d'acier et en fonction de 90   Tableau 10 : Principales réactions dans la formation du laitier. 91   Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur 97   Tableau 6 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction de Si 99   Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 109   Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 110   Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 110   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 111   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 111   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 115   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 116   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 116   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre	Tableau 6 : Liste des cas simulés	. 62
(Patisson, 1987)	Tableau 1 : Processus physico-chimiques intervenant sur la chaine d'agglomération	
Tableau 8 : Données industrielles pour l'usine d'agglomération Sollac-Fos utilisées dans le modèle (Arcelor-Research, 2004) 83   Tableau 9 : Enfournements au convertisseur pour 1 tonne d'acier et en fonction de 90   Tableau 10 : Principales réactions dans la formation du laitier. 91   Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur 97   Tableau 6 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction de Si 99   Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 109   Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 109   Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 110   Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 111   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 111   Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 111   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 115   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 116   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 116   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 116	(Patisson, 1987)	. 80
modèle (Arcelor-Research, 2004)83Tableau 9 : Enfournements au convertisseur pour 1 tonne d'acier et en fonction del'enfournement de ferrailles (Béranger, 1994)90Tableau 10 : Principales réactions dans la formation du laitier91Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur97Tableau 6 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction de Sidans la fonte.99Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas105Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas109Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas110Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas111Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas115Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas115Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas111Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas111Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas115Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas116Tableau 11 : Caractéristiques géométriques du pilote.140	Tableau 8 : Données industrielles pour l'usine d'agglomération Sollac-Fos utilisées dans le	Э
Tableau 9 : Enfournements au convertisseur pour 1 tonne d'acier et en fonction del'enfournement de ferrailles (Béranger, 1994).90Tableau 10 : Principales réactions dans la formation du laitier.91Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur.97Tableau 6 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction de Sidans la fonte.99Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.105Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.109Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.110Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.111Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.111Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.111Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.111Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.115Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.	modèle (Arcelor-Research, 2004)	. 83
l'enfournement de ferrailles (Béranger, 1994)	Tableau 9 : Enfournements au convertisseur pour 1 tonne d'acier et en fonction de	
Tableau 10 : Principales réactions dans la formation du laitier.91Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur.97Tableau 6 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction de Sidans la fonte.99Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.105Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.109Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.110Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.111Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.115Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.115Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 11 : Caractéristiques géométriques du pilote.140	l'enfournement de ferrailles (Béranger, 1994)	. 90
Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur97Tableau 6 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction de Si99Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas105Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas109Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas109Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas110Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas111Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas111Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas115Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas116Tableau 1 : Caractéristiques géométriques du pilote.140	Tableau 10 : Principales réactions dans la formation du laitier	. 91
Tableau 6 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction de Si 99   Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 105   Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 109   Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 110   Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 111   Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 115   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 116   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 116   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 116   Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas. 116   Tableau 1 : Caractéristiques géométriques du pilote. 140	Tableau 11 : composition du laitier du convertisseur	. 97
dans la fonte.99Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.105Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.109Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.110Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.111Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.111Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.115Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas.116Tableau 1 : Caractéristiques géométriques du pilote.140	Tableau 6 : Récapitulatif des différents scénarios étudiés en fonction de la fraction de Si	
Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas	dans la fonte	. 99
Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas	Tableau 13 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas	105
Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas	Tableau 14 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas	109
Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas	Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas	110
Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas	Tableau 16 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas	111
Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas116Tableau 1 : Caractéristiques géométriques du pilote.140	Tableau 17 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas	115
Tableau 1 : Caractéristiques géométriques du pilote 140	Tableau 18 : Récapitulatif des principaux résultats et comparaison entre les cas	116
	Tableau 1 : Caractéristiques géométriques du pilote.	140
Tableau 2 : Données relatives à la production du pilote 140	Tableau 2 : Données relatives à la production du pilote.	140

### Modélisation systémique des filières sidérurgiques en vue de leur optimisation énergétique et environnementale

#### Résumé

Ce travail de recherche porte sur la modélisation mathématique des principaux procédés sidérurgiques en suivant une approche systémique. L'objectif est d'élaborer un outil de modélisation de l'ensemble de la filière destiné à l'optimiser du point de vue énergétique et environnemental. Nous avons développé des modèles physico-chimiques du haut fourneau, de la cokerie, de l'agglomération et du convertisseur. Ces modèles ont ensuite été reliés entre eux sous forme d'un diagramme de flux unique en utilisant le logiciel ASPEN Plus. Dans une première partie, nous nous sommes particulièrement intéressés au haut fourneau à recyclage, une variante innovante du haut fourneau dans laquelle les gaz de gueulard sont recyclés et réinjectés aux tuyères après capture du CO<sub>2</sub>. Nous avons testé une réinjection à un niveau (aux tuyères) et à deux niveaux (tuyères et ventre). Les résultats ont été comparés avec succès à des données expérimentales issues d'un réacteur pilote et montrent que le recyclage permet une baisse de plus de 20 % des émissions de CO<sub>2</sub> du haut fourneau. Le recyclage à deux niveaux ne semble pas plus performant que celui à un seul niveau. Dans un deuxième temps, nous avons simulé le fonctionnement d'une usine sidérurgique intégrée dans son ensemble. Différentes configurations ont été testées, pour un haut fourneau classique ou un haut fourneau à recyclage, en considérant un éventuel recyclage du laitier de convertisseur à l'agglomération, et en étudiant l'influence de la teneur en silicium de la fonte sur toute la filière. On montre notamment qu'il est possible de réduire le prix de revient de la tonne d'acier en substituant et recyclant différents sous-produits.

**Mots clés :** modélisation systémique, filière sidérurgique, procédés, haut fourneau, émissions de CO<sub>2</sub>, recyclage, sous-produits, ASPEN Plus.

# Systems modeling of steelmaking routes for energetic and environmental optimization

#### Abstract

This research study deals with mathematical modeling of the main steelmaking processes following a systems approach. The objective was to build a modeling tool of the whole steelmaking route devoted to its energetic and environmental optimization. We developed physical-chemical models for the blast furnace, the coke oven, the sintering plant and the basic oxygen furnace. These models were then linked together in a single flow sheet using the ASPEN Plus software. First, we focused on the top gas recycling blast furnace, a novel variant of the blast furnace in which the top gas is recycled and reinjected into the tuyeres after CO<sub>2</sub> removal and capture. We tested both a reinjection at one level (tuyeres only) and at two levels (tuyeres and shaft). The results were successfully compared with experimental data from a pilot reactor and demonstrate that recycling can lower the blast furnace CO<sub>2</sub> emissions by more than 20%. Recycling at two levels does not seem more efficient than at a single level. Second, we simulated the operation of an entire integrated steelmaking plant. Different configurations were tested, using a conventional blast furnace or a top gas recycling blast furnace, considering a possible recycling of the converter slag to the sintering plant, and studying the influence of Si content in the hot metal on the entire steelmaking plant operation. We show that it is possible to reduce the cost of producing steel by substituting and recycling various by-products.

**Key words:** systems modeling, steelmaking route, processes, blast furnace, CO<sub>2</sub> emissions, recycling, by-products, ASPEN Plus.