



N-GHY

Processeurs
et Piles A
Combustibles

Rapport d'activité du 2^{ème} exercice de la SA N-GHY

Juillet 2003 – juin 2004

Sur le plan de l'organisation et de l'équipe

L'organisation prévue à la création de la société et mise en place au cours du 1^{er} exercice n'a pas changé : elle prouve son efficacité.

La stratégie définie dans le Plan de Développement de la société est mise en œuvre efficacement, en particulier grâce à un suivi régulier du Plan à Moyen Terme (PMT) auquel contribue toute l'équipe. Ainsi le progrès vers la cible à moyen terme est régulièrement quantifié. Face à l'analyse du marché, de la

concurrence et de nos réalisations techniques, une grande réactivité de l'ensemble de l'équipe permet d'ajuster au mieux la trajectoire de la société. De plus, le PMT apporte une cohésion et une motivation de l'équipe.

Au 30 juin 2004, l'équipe N-GHY compte 10 personnes, soit 2 ingénieurs de plus qu'à la fin de l'exercice précédent. La moyenne d'âge reste basse : 31,5 ans. Trois postes supplémentaires ont été

ouverts à la fin du 2^{ème} exercice, à pourvoir d'ici fin 2004 de manière à renforcer les moyens techniques d'essais, de conception en contrôle commande et en mécanique et développer notre démarche Qualité et Gestion de Projet.

La 2^{ème} phase du Développement de N-GHY démarre, elle consiste en la conception et réalisation de prototypes livrables à nos clients industriels.

Sur le plan commercial

Les démarches commerciales de l'exercice 2003 / 2004 ont permis de transformer les contacts commerciaux du 1^{er} exercice en d'importants contrats pour le développement de N-GHY. Il convient de citer les projets GENHAIP, GECOPAC, GAPPAC et VABIOGENH contractualisés respectivement avec DCN Propulsion, le CEA, GIAT Industries et l'ADEME. Le montant total des commandes, subventions et aides obtenues marque une augmentation de 50,1% par rapport au 1^{er} exercice. Il assure déjà pour le 3^{ème} exercice une production équivalente à celle du 2nd.

Les implications industrielles citées ci-dessus représentent plus de 80% des commandes obtenues ; ainsi pour l'ensemble des deux premiers exercices, la répartition entre Chiffres d'Affaires et

Subventions/Aides progresse à 58% - 42% (au lieu de 43% - 57% annoncé en fin de 1^{er} exercice).

Durant cet exercice 2003 / 2004 de nombreux autres projets ont été initiés et sont en cours de montage. Ainsi, N-GHY est moteur dans le projet PACSOL conduit dans le cadre de la région Midi-Pyrénées pour la création d'une plate forme de R&D avec un bâtiment HQE (Haute Qualité Environnementale) et un couplage entre énergie solaire et pile à combustible / reformeur avec valorisation d'huiles végétales. N-GHY participe également au montage du projet européen CONMID en partenariat avec AIRBUS, Volvo, ECN (Energy research Center of the Netherlands) et Forschungszentrum Jülich. Enfin N-GHY travaille au renouvellement des projets

THERMOCONV et GENHAIP en partenariat et pour le compte respectivement d'ONIDOL et de DCN Propulsion.

Parallèlement à ces actions commerciales, N-GHY a poursuivi sa stratégie de communication externe dynamique avec la participation aux congrès de Grenoble et de Miami et la présentation de son prototype PACUTIL à la foire de Hanovre en avril 2004. Des communications scientifiques de N-GHY ont été proposées et retenues pour les congrès de Perth (sept. 2004), Munich (oct. 2004) et San Antonio (nov. 2004).

L'objectif de ces actions de communication à l'étranger est de concrétiser un ou plusieurs contrats internationaux au cours du 3^{ème} exercice.

Sur le plan technique

Organisation des travaux

Au cours du 2^{ème} exercice, les travaux ont concerné 9 projets : 4 nouveaux projets ont été démarrés, s'ajoutant aux 5 projets initiés au cours du 1^{er} exercice, qui ont été poursuivis ; 3 sont maintenant terminés.

Pour répondre aux objectifs des différents projets, les travaux sont organisés en différentes actions techniques et les résultats de ces actions servent à un ou à plusieurs projets comme cela est illustré

actions techniques entreprises et application aux différents projets		THERMOCONV	PACUTIL1	GENHYSOFC	GENHAIP1	GENHYSTOX	GAPPACCO	VABIOGENH	GECOPAC	PH2
filiales	études des filières production H2									
actions transverses	mesures et analyses									
	contrôle-commande									
	modélisations en régime permanent									
	modélisations en régime dynamique									
	allumage et stabilité de combustion									
composants: définition, réalisation, mise au point, caractérisation	conversion combustible gazeux en H2 et CO									
	conversion combustible liquide en H2 et CO									
	conversion du CO en CO2									
	échangeurs, récupérateurs et condenseurs									
	désulfuration									
systèmes: conception, réalisation, qualification	séparation hydrogène									
	post-combustion									
	conception proto, couplage PEMFC / reformat									
	réalisation test proto, couplage PEMFC / reformat									
	conception proto, couplage SOFC / reformat									
réalisation test proto, couplage SOFC / reformat										
conception proto, H2 pur sous pression										

sur le tableau ci-contre. Pour chacune de ces actions techniques, les objectifs et résultats obtenus au cours du 2^{ème} exercice sont présentés ci-après.

- Le projet THERMOCONV (sept 2002 / mai 2004) concerne des essais sur maquette de 20 kW pour démontrer le potentiel multi combustible de la technologie proposée par N-GHY.
- Le projet PACUTIL (janv 2003 / déc 2004) concerne la conception et la réalisation d'un prototype fonctionnel intégré de générateur d'hydrogène à partir de gazole pour un couplage à une pile à combustible de type PEM.
- Le projet GENHYOSOF (nov 2002 / déc 2003) étudie la faisabilité du couplage d'un générateur d'hydrogène N-GHY avec une pile à combustible de type SOFC.
- Le projet GENHAIP1 (juil 2003 / sept 2004) est la conception préliminaire d'un générateur d'hydrogène fonctionnant à partir de gazole et à l'oxygène pur sous haute pression et produisant de l'hydrogène pur ; cette conception s'appuie sur une étude expérimentale à l'échelle 20kW.
- Le projet GENHSTOK1 (juil 2003 / déc 2004) étudie la faisabilité de la captation du CO₂ lors de la production d'hydrogène pur (adaptation du procédé GENHAIP).
- Le projet GECOPAC (mai 2004 / déc. 2006) est réalisé, dans le cadre du réseau PACo, pour le compte du CEA, en partenariat avec les sociétés SNECMA et DALKIA. Il s'inscrit dans la continuité du projet GENHYOSOF. Il doit aboutir à la réalisation d'un prototype fonctionnel intégré de générateur d'hydrogène pour l'alimentation d'une pile SOFC de 5 kW_{el} à partir de gaz naturel. L'ensemble doit être exploité en cogénération dans un établissement scolaire de la Région Centre.
- Le projet GAPPAC (janv. 2004 / juin 2004), réalisé pour le compte de GIAT Industries, a pour objectif l'étude d'architectures de générateurs d'hydrogène pour systèmes auxiliaires de puissance embarqués sur véhicules blindés.
- Le projet VABIOGENH (janv. 2004 / déc. 2004), réalisé à la demande de l'ADEME, doit évaluer le potentiel de différentes filières de production d'hydrogène à partir de la biomasse.
- Le projet PH2 (juin 2004 / juin 2005) s'inscrit dans le cadre de partenariats avec les Ecoles des Mines. N-GHY a conclu un accord avec un groupe d'étudiants de l'Ecole des Mines de Douai pour fournir un système fuel processeur / pile à combustible de 5 kW_{el} devant propulser un véhicule expérimental, réalisé par les élèves.

Sur le plan de l'avancement technique des travaux, le 2^{ème} exercice a été marqué par la mise au point des procédés de base (THERMOCONV et

GENHAIP) et par la réalisation du 1^{er} prototype fonctionnel (PACUTIL).

Evaluations de filières

Depuis sa création, N-GHY prône l'utilisation des combustibles d'origine renouvelable dans la génération de l'hydrogène pour limiter l'émission des gaz à effet de serre (CO₂ en particulier). Plusieurs filières sont envisageables. On peut citer notamment : la gazéification de la biomasse et le reformage des gaz issus de celle-ci, la fermentation de jus sucrés et le reformage de l'éthanol résultant de cette opération, l'extraction d'huiles végétales et le reformage de ces dernières... Ces filières présentent des intérêts variables en termes d'économies d'énergie, de sauvegarde de l'environnement, de potentiels économiques et d'innovations technologiques.

Début 2004, N-GHY a démarré l'évaluation et la comparaison de différentes filières de valorisation de la biomasse pour la production d'H₂ en vue de son utilisation dans les piles à combustible stationnaires.

Les principales conclusions seront disponibles fin 2004 pour le projet VABIOGENH. Elles permettront de positionner globalement le potentiel de la filière de valorisation des huiles et esters de tournesol ou de colza, explorée par N-GHY avec l'ONIDOL.

Mesures et analyses

L'objectif de ces travaux est la mise au point d'outils et de procédures de caractérisation rapide et fiable des équipements conçus ou/et testés par N-GHY. Il s'agit donc de compléter les matériels analytiques évolués et dédiés à la Recherche, par des méthodologies de mises en œuvre efficaces et rigoureuses.

Les travaux du 2nd exercice ont permis de réaliser les progrès suivants :

- Amélioration de la mise en œuvre des matériels et procédures d'étalonnages des analyseurs chimiques : grâce au complément de l'instrumentation (réseau de tuyauteries et d'électrovannes reliant les bouteilles de gaz étalons aux analyseurs) et au développement d'un programme de contrôle commande spécifique, le nombre des opérations de manutention a pu être réduit, les étalonnages des analyseurs ont pu être automatisés.
- Amélioration des protocoles de prélèvement de gaz : grâce au complément de l'instrumentation et au développement d'un programme de contrôle commande spécifique, l'analyse chimique en ligne automatisée des reformats gazeux est possible en de multiples points,

non seulement dans le reformeur mais aussi dans l'unité de conversion CO/CO₂ (en entrée et sortie de chaque échangeur ou réacteur).

- Accroissement de la rapidité des analyses chimiques : le temps nécessaire à la réalisation d'une analyse chimique fiable de reformat a été abaissé de 7 minutes à 4 minutes par optimisation de la procédure d'analyse.
- Accélération de l'exploitation des résultats d'analyse : la mise en place d'une procédure systématique de post-traitement informatique des résultats d'analyses permet désormais de qualifier le fonctionnement d'un fuel-processeur (reformeur + unité de conversion catalytique CO/CO₂) alimenté par n'importe quel combustible, notamment par le calcul automatique des bilans atomiques, consommations d'O₂, productivités en H₂, rendements de conversion en H₂+CO, comparaisons avec les résultats des calculs d'équilibre thermochimique, conversions du CO en CO₂, taux de conversion en H₂ et sélectivités des catalyseurs.
- Fiabilisation des méthodes de mesure et dépouillement grâce d'une part à un mode d'exploitation des résultats d'analyse robuste basé sur les bilans atomiques et d'autre part à l'identification et à l'évaluation des incertitudes et biais liés aux mesures et calculs effectués lors des essais de reformage.

Les bénéfices pour les autres développements sont immédiats : les outils et protocoles d'analyses rapides et fiables sont utilisés pour la qualification des performances de toute maquette, pilote, prototype, et en particulier pour celle du prototype PACUTIL, planifiée dans la 1^{ère} moitié du 3^{ème} exercice.

Contrôle Commande

L'objectif est de concevoir et réaliser les systèmes de maîtrise et de conduite de l'ensemble de notre procédé innovant et évolutif, à partir d'un système de contrôle commande entièrement numérique et adaptable à différentes configurations.

Les travaux ont été réalisés suivants deux axes principaux :

- Amélioration continue du système de contrôle équipant le banc d'essais de reformage de N-GHY. En particulier, on peut citer les nouvelles fonctionnalités suivantes : contrôle de la teneur en O₂ du comburant, conditionnement en pression et débit de tout combustible liquide par un unique programme, démarrage avec basculement d'un combustible gazeux à un combustible liquide.
- Etudes de conception préliminaire du contrôle commande du prototype PACUTIL et travail en collaboration avec le CRITT Automation d'Albi pour les études de détail, la réalisation et le test de ce système.

Les essais et mises au point des séquentiels et des régulations propres au prototype PACUTIL seront réalisés durant les premiers mois du 3^{ème} exercice. Puis en gardant comme objectif la maîtrise et la conduite d'un système complet (fuel-processeur + PAC), l'équipe N-GHY réalisera et testera le contrôle commande de la pile de type PEM. Cette 1^{ère} réalisation constituera l'armature de l'ensemble des futurs prototypes construits par N-GHY.

Outils de modélisations

L'activité de N-GHY a été très importante dans ce domaine technique. L'objectif est de se doter d'outils fonctionnels et efficaces pour la conception et le dimensionnement ou pour l'évaluation des performances des systèmes innovants développés par N-GHY.

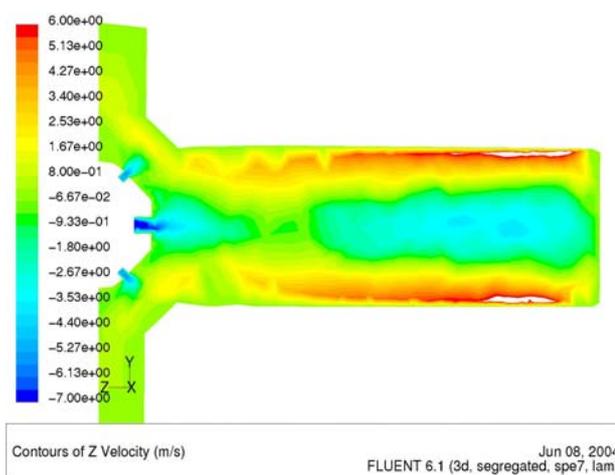
Avec le Laboratoire de Génie Chimique de l'ENSIACET, les travaux de modélisation du procédé en régimes permanent et dynamique, entamés au 1^{er} exercice, ont été poursuivis au 2^{ème} exercice. Pour le régime permanent, l'évaluation du logiciel PROSIM+ sur un procédé complet a été terminée. En régime dynamique, N-GHY a développé le modèle MODEL DYN sous MATLAB / SIMULINK. Il permet de simuler des variations de puissance sur l'ensemble « reformeur / échangeurs récupérateurs amont - aval / régulateurs de débits ». La structure retenue pour ce modèle le rend adaptable à l'ensemble du procédé de N-GHY.

En ce qui concerne la modélisation des composants, les travaux se sont portés sur l'évaporation de gouttelettes (eau ou carburant liquide) dans un mélange de gaz, à contre courant ou à co-courant. Ce modèle, nommé QUENCH, nous a permis, par exemple, de définir les dimensions de l'étape de refroidissement par pulvérisation d'eau des gaz sortant du Module Chaud du prototype PACUTIL.

Avec l'EMAC, un outil important de modélisation des transferts thermiques par rayonnement et convection du reformeur associé à ses échangeurs récupérateurs a été développé. Cet outil, ISOLACTIV, sera validé avec les premiers résultats d'essais du prototype PACUTIL et adapté à d'autres configurations.

Des simulations aérodynamiques sous le logiciel FLUENT ont également été menées afin d'étudier les caractéristiques des injections d'air et le mélange entre les réactifs dans le réacteur de reformage de PACUTIL. Une étude plus approfondie avec prise en compte des phénomènes de combustion et de transferts thermiques sera effectuée au 3^{ème} exercice.

Parallèlement à ces travaux, le développement d'outils de dimensionnement d'échangeurs, d'évaporateurs et de radiateurs - condensateurs a été poursuivi.



Exemple de modélisation des écoulements dans la zone de reformage du prototype PACUTIL, réalisée sous FLUENT

Enfin, en partenariat avec GIAT Industries, un simulateur de systèmes de production d'H₂, nommé SIMULGAP, a été également développé. Il constitue un outil d'aide à la décision.

Allumage et stabilité

La 1^{ère} étape du procédé de génération d'H₂ développé par N-GHY est la combustion d'une fraction du combustible. L'objectif des travaux est ici de disposer des règles de conception de chambres de combustion à domaines de fonctionnement étendus, correspondant aux procédés développés, et pour différents combustibles (liquides ou gazeux), comburants (air atmosphérique ou air enrichi en O₂), niveaux de pression et niveaux de puissance.

Les nombreuses informations collectées durant le 1^{er} exercice (début 2003), lors des campagnes d'essais d'allumage à froid et de stabilité de flamme de gazole, ont débouché sur la conception d'un ensemble injecteur pneumatique / chambre de combustion capable de fonctionner aussi bien au gazole qu'au propane, de 1 à 6 bar, et pour la gamme de puissance thermique 2-20 kW. Cet ensemble a été réalisé et testé sur le BRAT à l'EMAC avec de nombreux combustibles liquides (gazole, esters méthyliques d'huiles de colza et de tournesol, huile de colza, éthanol) et gazeux (propane, méthane).

La maquette d'essais de 25 kW_{th} disponible à l'EMAC a aussi été modifiée et complétée de façon à pouvoir réaliser des essais de reformage avec de l'air enrichi en O₂. Une ligne d'alimentation en O₂ pur, équipée d'organes de

sécurité adaptés et spécifiques, a ainsi été montée en complément de la ligne d'alimentation en air existante.

Les résultats de ces essais montrent que le brûleur possède des domaines de fonctionnement étendus en termes de pression, teneur en O₂ du comburant, richesse de combustion, puissance de combustion. Cet ensemble

permet le fonctionnement correct du reformeur avec une alimentation en combustible liquide à partir d'un démarrage avec un combustible gazeux. Les divers essais ont permis d'identifier les systèmes d'allumage appropriés (transformateurs, électrodes/bougies) d'une part et d'accumuler des informations qui seront utiles pour le réglage ultérieur des paramètres du système de détection de flamme par thermocouple d'autre part.

Par ailleurs, à la fin de ce 2^{ème} exercice, les 1^{ers} tests d'allumage et de stabilité de flamme ont été réalisés sur le Module Chaud du prototype PACUTIL à pression atmosphérique, avec alimentations en gazole commercial et air ambiant. Concernant la combustion, les innovations par rapport aux systèmes réalisés et testés durant le 1^{er} exercice sont triples : nouvelle géométrie de swirler d'air, préchauffage intégré de l'air dès le démarrage du brûleur et utilisation d'un injecteur mécanique de combustible liquide. Les 1^{ers} résultats d'essais sont très encourageants : le système démarre aisément et rapidement à froid, la pulvérisation du gazole est de bonne qualité, le brûleur possède un large domaine de fonctionnement en puissance et richesse de combustion.



Brûleur du Module Chaud PACUTIL en fonctionnement au gazole à pression atmosphérique : $f_{O_2} = 1.00$, $P = 9.60$ kW

Le réglage sous pression des divers paramètres du brûleur du prototype PACUTIL sera affiné en début de 3^{ème} exercice (position relative bougie/injecteur, type d'injecteur mécanique, géométrie des veines d'admission des réactifs et de la chambre de combustion). Le temps de démarrage du reformeur pourra ainsi être évalué et les performances de fonctionnement de celui-ci pourront être appréciées en mode vapo-reformage hybride.

Conversion en H₂ et CO

Après l'étape de combustion d'une partie du combustible, vient l'étape de conversion en H₂ et CO de l'autre partie de combustible. L'objectif des travaux est de démontrer une conversion complète de tout combustible avec la persistance d'un minimum d'hydrocarbures légers et l'absence d'hydrocarbures lourds, précurseurs de suies : les conditions de température et de temps de séjour prévues par les calculs de cinétique chimique doivent être validées expérimentalement.

De nouvelles géométries de carters externes (munis de nouveaux systèmes d'injection des réactifs liquides) et de tubes à flamme (en métal, en céramiques et composites) ont été testées. Leur conception permet des montages plus aisés avec une accessibilité accrue et des mesures de température plus nombreuses. Une attention particulière a aussi été portée à la sélection de joints d'étanchéité adaptés à des fonctionnements à haute température.

Bien que non prévu à cet effet initialement, la même maquette de reformage hybride à haute température permet de convertir en un mélange riche en H₂+CO une remarquable variété de combustibles commerciaux : liquides lourds et complexes (gazole, éthanol, esters méthyliques d'huiles de colza et de tournesol, huile brute de colza) et gazeux (propane, méthane). Les essais réalisés pour les projets GENHYOSOF, THERMOCONV et GENHAIP, nombreux et divers, ont permis d'observer, grâce à la bonne stabilité de combustion, la rapidité de la montée en température du réacteur, la bonne qualité de la pulvérisation des réactifs à reformer

Nom Essai		Espèces majoritaires				Espèces minoritaires				Total	H ₂ +CO	Rend. en H ₂
		H ₂	CO	CO ₂	N ₂	CH ₄	C ₆ H ₆	O ₂				
65% A	Exp.	30,91	32,87	14,44	21,15	0,15	0,0055	0,48	100	63,78%	59,8%	
	Equil.	30,54	33,65	14,66	21,16				100	64,19%	59,8%	

Résultats d'essai de reformage de gazole avec air enrichi en oxygène (65% en vol.) : comparaison des résultats d'essais avec les calculs d'équilibre thermodynamique en conditions adiabatiques (% vol sec)

(combustibles liquides et eau liquide). Le caractère multi-combustible de la technologie de reformage purement thermique développée par N-GHY a été clairement démontré. Les rendements expérimentaux en H₂ obtenus avec tous les combustibles sont homogènes, proches des résultats attendus et prévus par les calculs d'équilibre thermochimique et des rendements maximaux en H₂ atteignables dans les conditions de fonctionnement appliquées (sans préchauffage des réactifs). Les reformats générés sont totalement dépourvus d'hydrocarbures lourds. Seuls persistent en faibles quantités des hydrocarbures légers, lorsque le réacteur n'est pas isolé thermiquement.

Les campagnes d'essais systématiques de reformage de gazole mises en œuvre pour le projet GENHAIP ont permis de montrer l'importance du profil de température dans la zone de réaction de conversion, étroitement liée au facteur d'oxygène global et à la qualité de l'isolation thermique utilisée. L'effet bénéfique de l'augmentation de la teneur en O₂ du comburant (jusqu'à 75% en volume) sur les performances de conversion en H₂+CO a aussi été démontré. Un fonctionnement quasi-adiabatique et une augmentation de la teneur en O₂ du comburant aboutissent à un excellent accord entre les résultats d'essais et les résultats d'équilibre thermodynamique en conditions adiabatiques. Les performances de conversion sont optimales : des reformats extrêmement propres sont générés avec des temps de séjour courts (inférieurs à 0,1s).

Le point clé pour atteindre la température prévue et l'état d'équilibre correspondant est l'isolation des parois. La conception du réacteur du prototype PACUTIL a donc été optimisée sur ce point pour atteindre des conditions très proches de l'adiabaticité avec des matériaux

résistant aux hautes températures. De plus, ce réacteur intègre un préchauffage à haute température des réactifs de manière à améliorer le rendement. Les techniques d'isolation active sont mises en œuvre dans cet objectif. Ce nouveau réacteur sera caractérisé en 2004.

Conversion du CO en CO₂

La conversion catalytique du CO en CO₂ en aval de l'étape de reformage est une étape majeure des systèmes à pile à combustible. Elle vise à augmenter le rendement énergétique et à fournir un hydrogène de bonne qualité aux piles de type PEM.

Les catalyseurs proposés par différents constructeurs doivent être mis en œuvre en plusieurs étapes et d'une manière adaptée au type de reformats générés dans le procédé développé par N-GHY, plus riches en CO que ceux produits dans les procédés classiques conduits à plus basse température.

L'assemblage et l'instrumentation de l'unité de conversion CO/CO₂ installée à l'EMAC ont été complétés. L'opérateur peut désormais s'il le souhaite coupler cette unité avec la maquette de Vapo-Reformage Hybride à haute température. Grâce à la conception, à la réalisation et à la mise en place de réacteurs supports adaptés (de type adiabatique), des catalyseurs de conversion du CO en CO₂ par réaction de WGS à haute et basse températures (HTS et LTS) provenant de deux fournisseurs différents ont pu être testés, avec des alimentations du reformeur en combustible gazeux (propane et méthane).

L'exploitation de l'ensemble des nombreux et divers essais réalisés a permis d'étudier les effets suivants sur les performances de conversion des catalyseurs :

- effet du rapport H₂O/CO en entrée de réacteur catalytique,
- effet de la charge / de la vitesse spatiale horaire,
- effet de la pression,
- effet de la température d'entrée du reformat dans le réacteur catalytique,
- effet du catalyseur.

Nom Essai	Espèces majoritaires				Espèces minoritaires							Total
	H ₂	CO	CO ₂	N ₂	CH ₄	C ₂ H ₄	C ₂ H ₂	C ₄ H ₈	C ₃ H ₈	C ₂ H ₆	C ₆ H ₁₄	
GO S Ref	15,05%	17,26%	13,23%	52,32%	1,46%	0,23%	0,30%	0,14%		0,01%	0,014%	100%
EMHC S Sup f _{O2g} 0,560 p2,6	13,81%	16,95%	13,86%	53,41%	0,94%	0,19%	0,42%		0,41%		0,011%	100%
HC S Sup f _{O2g} 0,560 p2,4	16,04%	18,73%	12,93%	50,53%	0,99%	0,14%	0,40%	0,23%				100%
ETH S Sup f _{O2g} 0,560 p1,4 P8,9	18,33%	18,97%	11,10%	50,42%	0,80%	0,10%	0,28%					100%
GO/EMHC S Ref p2,2	15,84%	18,08%	12,77%	51,58%	1,06%	0,15%	0,51%					100%

Essais de reformage des 5 combustibles obtenus sans isolation thermique du réacteur : compositions volumiques sèches des reformats (GO : Gazole, EMHC : Ester Méthyllique d'Huile de Colza, HC : Huile de Colza, ETH : Ethanol, GO/EMHC : mélange de GO et d'EMHC)

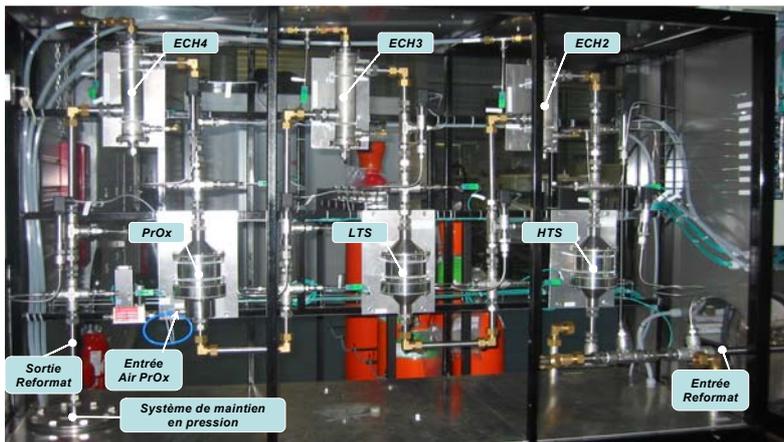
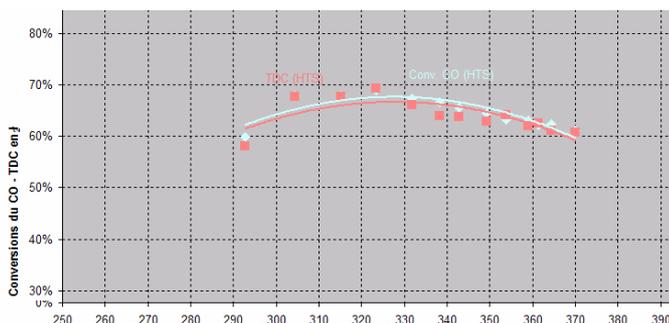


Photo d'ensemble du banc d'essais de conversion catalytique du CO en CO₂ (avant isolation thermique)

D'autre part, ces essais ont apporté de précieuses informations sur la conduite de tels réacteurs catalytiques :

- temps de chauffe nécessaires,
- phénomènes chimiques et thermiques se produisant dans les réacteurs : présence éventuelle de réactions secondaires notamment (méthanisation, éthanisation),
- importance des emplacements des capteurs de température du reformat en entrée des réacteurs catalytiques,
- détection de dysfonctionnements et maintenance de ces réacteurs.

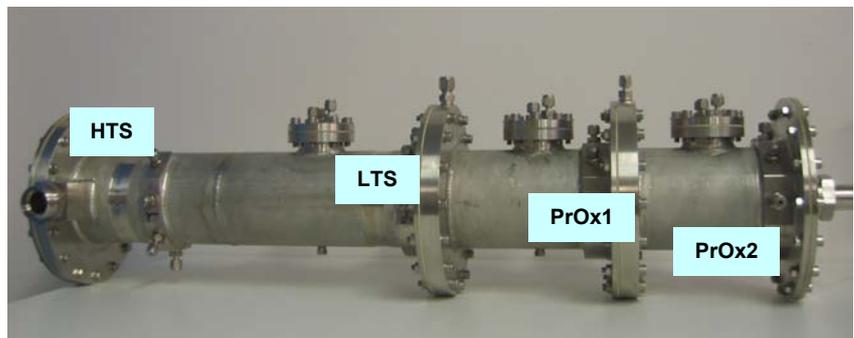
D'excellentes performances de conversion ont été relevées pour un type de catalyseur de HTS sur une large gamme de température : pour celui-ci, des taux de conversion en H₂ optimaux (égaux à ceux donnés par les calculs d'équilibre thermochimique) et des sélectivités proches de 100% ont été mesurées. Pour l'autre type de catalyseur, sélectivité et rendement de conversion sont beaucoup plus faibles.



Résultats d'essais de conversion catalytique du CO en CO₂ par réaction de HTS : évolutions des conversions du CO et taux de conversions en H₂ en fonction de T_{e, HTS}

Les informations expérimentales recueillies sont capitales pour le choix du (des) fournisseur(s) de catalyseurs adaptés, notamment pour le prototype PACUTIL. Pour celui-ci, suite à la conception préliminaire réalisée précédemment, cet exercice a permis de concevoir et de réaliser un ensemble intégré combinant les étapes catalytiques de conversion du CO en CO₂ (HTS, LTS et PrOx) et les étapes de refroidissement

intermédiaire primordiales pour un fonctionnement satisfaisant du système. Cet ensemble, compris dans une seule enceinte et fortement compact, a été appelé Module Froid.



Module Froid du prototype fonctionnel PACUTIL : comprend les différentes étapes catalytiques et les refroidissements intermédiaires nécessaires

Le choix de la nature et de la géométrie des catalyseurs a été effectué en concertation avec un acteur mondial majeur de la catalyse pour systèmes à piles à combustible. Les systèmes de refroidissement, conçus entièrement par N-GHY, sont particulièrement innovants et permettent un réglage fin des températures et une régulation précise sur toute la plage de fonctionnement du prototype PACUTIL (1 à 5kW_{el}). Le système de contrôle-commande associé, lui-même très innovant, a aussi été défini par N-GHY.

Les essais de conversion catalytique du CO en CO₂ par réaction de WGS seront poursuivis au début du 3^{ème} exercice avec des catalyseurs provenant d'un 3^{ème} fournisseur. D'autre part des essais de conversion catalytique du CO en CO₂

par réaction de PrOx seront également réalisés. Le Module Froid de PACUTIL sera mis au point.

Echangeurs, récupérateurs

L'objectif est ici de disposer d'échangeurs thermiques efficaces, compacts et bien intégrés aux chambres de réaction des Modules Chaud et Froid de manière à limiter les éléments de liaisons à haute température entre réacteurs et échangeurs.

Pour le projet PACUTIL, la conception détaillée des échangeurs récupérateurs a été réalisée sur la base de la conception préliminaire établie lors de l'exercice précédent. Ces échangeurs font partie intégrante du Module Chaud (qui contient également le réacteur de reformage). Ils permettent le préchauffage des 3 réactifs (vaporisation et surchauffe de l'eau, vaporisation et surchauffe du gazole, préchauffage de l'air) par récupération

thermique sur les gaz chauds après reformage. Ils augmentent considérablement le rendement global du fuel processeur.

Une particularité de ces échangeurs est leur haute intégration. En effet, les différentes étapes de préchauffage sont imbriquées, ce qui permet d'effectuer les différents transferts de chaleur sur un faible volume d'échange. Les pertes thermiques sont aussi considérablement diminuées : les conditions adiabatiques sont atteintes pour le réacteur de reformage. Ce dispositif original a été entièrement conçu par N-GHY en s'appuyant sur des simulations numériques poussées.

Ces échangeurs assurent le préchauffage des réactifs à des températures de l'ordre de 700°C. Les matériaux employés doivent résister à ces températures. N-GHY a donc mené une étude extensive des matériaux utilisables en collaboration avec divers partenaires, et a retenu plusieurs matériaux qui seront testés et comparés.

Enfin, les échangeurs, ainsi que le contrôle-commande correspondant, ont été conçus de manière à avoir un

comportement satisfaisant quelle que soit la puissance de fonctionnement du prototype. Les premiers essais auront lieu en août 2004. Ils devraient rapidement confirmer la validité de cette conception.

Désulfuration

N-GHY a validé le fonctionnement de ses procédés de reformage non catalytique sur des composés à taux de soufre variables. L'enjeu est dorénavant de maîtriser l'utilisation de combustibles commerciaux, plus ou moins soufrés, sans risquer d'endommager par le soufre les catalyseurs de conversion du CO en CO₂ ou les catalyseurs anodiques des piles. Dans tous les nouveaux projets démarrés au 2nd exercice, N-GHY a prévu d'intégrer un système de désulfuration.

N-GHY s'intéresse autant à la désulfuration en amont du reformeur, au sein du combustible, qu'à la désulfuration en aval, au sein du reformat. Les axes de recherche portent sur l'optimisation des durées de vie des absorbants ou catalyseurs utilisés et sur la réduction des volumes des réacteurs.



Réacteur à charbon actif pour désulfuration du gaz naturel

N-GHY a identifié les fournisseurs d'absorbant nécessaire et les contraintes de conception associées. La réalisation des bancs d'essais sera faite dans l'environnement d'essais déjà disponible. Les systèmes de mesure précis nécessaires pour quantifier la présence de soufre à des teneurs très faibles ont été sélectionnés. L'objectif est d'avoir testé des réacteurs de désulfuration début 2005.

Séparation H₂

Pour certaines applications, de l'hydrogène pur ou quasiment pur doit être produit à partir du reformat. Les technologies de purification envisageables sont en cours de

développement dans d'autres organismes de recherche et leur adaptation à la technologie de reformage de N-GHY doit être démontrée. N-GHY a donc poursuivi cette année la qualification des technologies de séparation de l'hydrogène des autres gaz du reformat par membrane de perméation métallique. Cette technologie permet, sous pression, d'obtenir de l'hydrogène très pur et ainsi d'utiliser efficacement une pile à combustible en aval d'un fuel processeur.

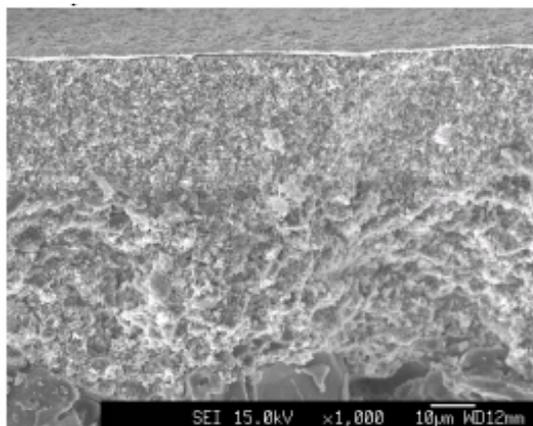
A la suite des nombreuses consultations et analyses des technologies actuellement en développement au niveau mondial, 2 importants programmes d'essais ont été commandés et supervisés par N-GHY. Ces programmes ont été menés en parallèle par 2 organismes majeurs dans le domaine : l'un en Europe et l'autre aux Etats-Unis.

Les essais, réalisés sur des échantillons de membrane à alliage de palladium, ont concerné les problématiques principales liées aux systèmes à pile à combustible :

- effets de la pression, de la température
- effet de la puissance ou de la charge
- effets des poisons éventuels de la membrane : CO, H₂S...
- effet d'un gaz vecteur
 - durée de vie
 - rendements en H₂ atteignables

Les rapports d'essais, analysés par N-GHY en collaboration avec ses deux partenaires, ont confirmé la pertinence de l'utilisation de telles membranes dans les systèmes à PAC développés par N-GHY.

Les grandes orientations à suivre pour leur mise en œuvre optimale dans les futures unités pilotes sont définies.



Vue en coupe au microscope d'un élément de membrane perméable à l'hydrogène

Post-Combustion

La post-combustion est une étape nécessaire pour contrôler la qualité des rejets à la sortie des systèmes reformeur – pile à combustible.

Les études de conception préliminaire et détaillée d'un de ces sous-systèmes ont été menées pour le projet PACUTIL. Elles ont abouti à l'identification des modes de fonctionnement au démarrage et en marche normale, ainsi qu'à la sélection des catalyseurs appropriés. Ces travaux ont permis d'une part de mieux cerner les possibilités offertes par les catalyseurs actuels ainsi que leurs limites et d'autre part de mieux appréhender le couplage du fuel-processeur avec les rejets de la pile à combustible. La phase de réalisation et de test du Module Post-Combustion de PACUTIL peut maintenant démarrer.

Systèmes à PEMFC et H₂ en mélange

L'intégration de toutes les étapes du Fuel Processeur et d'une PEMFC en un seul système compact et complètement autonome, constitue l'un des axes stratégiques de développement de N-GHY.

Dans ce sens la conception détaillée du prototype PACUTIL a été effectuée pour la partie Fuel Processeur. Notre partenaire PEMFC (Hélion) développe actuellement la pile de 5kW_{el}. Les interfaces avec le Module PEMFC ont été identifiées et le couplage devrait avoir lieu en fin d'année 2004. Le Fuel Processeur de PACUTIL est en grande partie assemblé et sera testé progressivement à partir de septembre 2004.

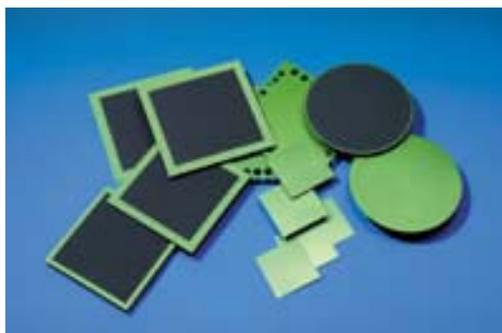
Les travaux principaux pour le Fuel Processeur ont concerné l'intégration des différentes étapes en sous-systèmes ou Modules : un Module Chaud (reformeur + préchauffeurs), un Module Froid (conversion catalytique du CO en CO₂ avec refroidissements intermédiaires et étage de condensation avant l'entrée dans la PEMFC) et un Module de Post Combustion (unité catalytique de traitement des rejets de l'ensemble et de condensation de l'eau produite par la PEMFC). L'intégration thermique de l'ensemble, compétence forte de N-GHY, a été particulièrement soignée en développant des systèmes de récupération de chaleur et de préchauffage originaux (cf. Echangeurs et récupérateurs). Elle permet d'aboutir à des rendements satisfaisants. Par ailleurs, le

positionnement de Modules Intermédiaires de désulfuration ou de récupération de chaleur a été déterminé pour le développement de futurs prototypes proposant d'autres fonctionnalités.

Le contrôle-commande, partie clé d'un système couplé, a également été conçu de manière détaillée et est en cours de réalisation en collaboration avec le CRITT Automation en prenant en compte toutes les interactions entre le système Fuel Processeur et le système PEMFC.

Dans le cadre de la conception détaillée, N-GHY a identifié tous les composants (matériaux, auxiliaires électriques, capteurs, éléments des circuits fluides et électriques, liaisons mécaniques...) nécessaires à la construction d'un système autonome et innovant, en distinguant les éléments indispensables au fonctionnement et à la sécurité du prototype de ceux utilisés pour sa qualification. Cette étape indispensable a permis de développer un réseau de fournisseurs spécialisés et privilégiés et apportera une grande réactivité lors de la construction de futurs prototypes.

Au cours du 2^{ème} exercice, le projet GENHYSOF, concernant la faisabilité et l'analyse des stratégies de couplage a été terminé. La suite logique, valorisant les acquis du projet GENHYSOF, concerne la réalisation d'un prototype. C'est l'objectif du projet GECOPAC, planifié sur 3 ans et démarré en avril 2004, qui consiste en un couplage du reformeur N-GHY alimenté en gaz naturel avec une pile SOFC du CEA pour faire de la cogénération électricité-chaleur dans un établissement public (lycée, collège...).



Exemple d'éléments de pile SOFC développée par le CEA

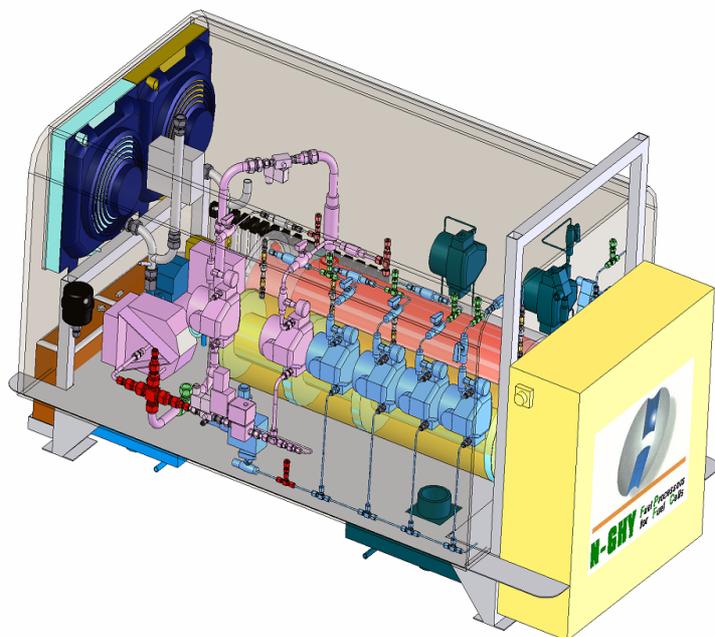
complément de reformage endothermique au sein même de la SOFC. L'étude de la teneur en eau dans les gaz alimentant la pile et de son influence sur le couplage sera également un axe de recherche à développer. Ce projet permettra de valider expérimentalement un système couplé de reformeur N-GHY avec une SOFC.

Systemes à H₂ pur

Le développement des systèmes de production d'H₂ pur a été poursuivi dans la continuité des études de faisabilité réalisées préalablement pour le développement d'un système complet de production d'H₂ pur ayant un débit nominal de 30kg/h (1MW). Ces systèmes doivent fonctionner sous pression et avec l'O₂ pur et utiliser une membrane de séparation de l'H₂. Ils doivent conduire à un excellent rendement.

Au cours du 2nd exercice, un avant-projet comprenant une étude système et aboutissant à la conception préliminaire des différentes enceintes formant le système à l'échelle 1 a été réalisé pour le projet GENHAIP. Cet avant-projet s'est appuyé sur les résultats des actions techniques présentées précédemment :

- essais de faisabilité sur maquette de membranes de séparation par nos partenaires (cf. Séparation de l'H₂),
- essais de faisabilité sur maquette de reformage avec enrichissement de l'air en O₂ (cf. Conversion en H₂ et CO)
- essais de conversion CO/CO₂ sur l'unité située à l'EMAC par l'équipe N-GHY (cf. Conversion du CO en CO₂). Ces essais ont permis d'explorer le fonctionnement de ces unités en fonction de la pression et de la teneur en O₂ du comburant.
- modèles performants de simulation en régimes permanent et dynamique élaborés sous EXCEL, PROSIM+ et MATLAB/SIMULINK (cf. Outils de modélisation).
- La technologie d'échangeurs / préchauffeurs intégrée dans le Module Chaud du prototype PACUTIL a été reprise et adaptée aux conditions de fonctionnement de ce procédé : nature des réactifs et produits de reformage, puissance, pression.



Schema de l'aménagement du prototype complet PACUTIL

Systemes à SOFC et H₂ en mélange

Le procédé de N-GHY de reformage à haute température est particulièrement adapté aux piles SOFC qui ont des températures de fonctionnement élevées. Les stratégies de couplage du Fuel Processeur avec une SOFC diffèrent cependant de celles envisageables pour le couplage du Fuel Processeur avec une PEMFC.

N-GHY a d'ores et déjà déterminé les contraintes liées aux interfaces de couplage du fuel processeur et de la pile, défini les différentes étapes du fuel processeur et identifié les techniques et technologies de désulfuration de gaz naturel.

Les principaux travaux à venir consisteront en la conception du Module Chaud, par simplification du Module Chaud de PACUTIL (suppression du vaporiseur de gazole notamment). On étudiera également la possibilité de n'effectuer qu'une conversion partielle du gaz naturel pour permettre un

Tous ces éléments permettent de conclure favorablement sur la faisabilité de tels systèmes, avec la technologie développée par N-GHY. Les travaux concernant le projet GENHAIP se poursuivront au cours des prochains exercices par la réalisation d'études système et de conception plus détaillée et par la réalisation d'unités élémentaires

(Module Chaud, Module Froid, Membrane) à l'échelle 1 pour valider en grandeur réelle ces différents concepts. La réalisation d'un pilote de plus faible puissance mais fonctionnant sous pression et à l'O₂ pur est également prévue à court terme.

Ces résultats serviront de base solide pour le développement du projet GENHSTOK de production et stockage d'H₂ pur sous pression avec séquestration du CO₂ pour unités de distribution d'H₂.

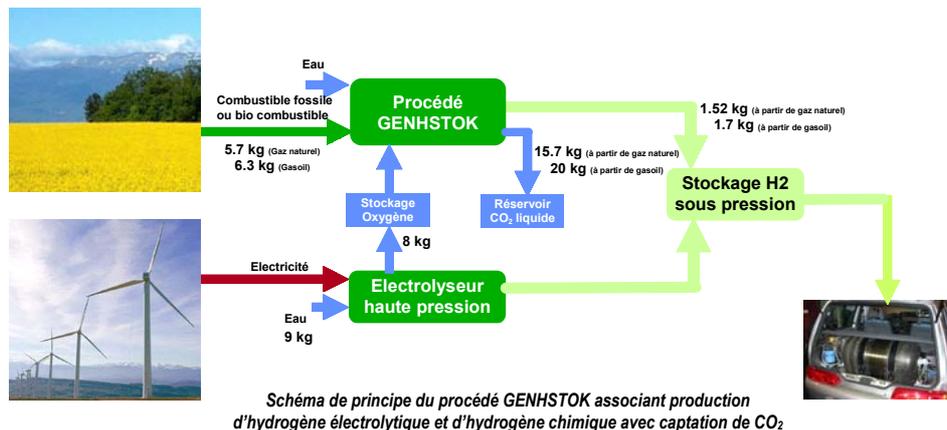


Schéma de principe du procédé GENHSTOK associant production d'hydrogène électrolytique et d'hydrogène chimique avec captation de CO₂

Sur le plan de la propriété industrielle

Le 2nd exercice a également vu une avancée sur le plan de la propriété industrielle puisque les deux brevets que détient N-GHY ont été étendus au niveau international par la procédure PCT (le 1^{er}

brevet, déposé par l'EMAC/Armines et Renault et dont N-GHY détient une licence d'exploitation, l'ayant été au cours de l'exercice précédent).

Un 4^{ème} brevet est en cours de préparation. Il concerne les originalités du Module Chaud de reformage sous pression et avec alimentation par de l'oxygène.

Sur le plan financier

Le 2nd exercice est très satisfaisant sur le plan financier : les produits d'exploitation se sont élevés à 888 k€ soit une progression d'un facteur 2,45 par rapport au 1^{er} exercice. La valeur prévue au budget initial est atteinte à 6% près. La part du chiffre d'affaires dans la production dépasse 50% et elle progressera encore au 3^{ème} exercice.

Une partie importante des travaux est réalisée sur subvention ou avance remboursable et est immobilisée pour être amortie ensuite sur 2,5 à 5 ans. Cette part devrait décroître dès le 3^{ème} exercice. Par ailleurs, la marge d'autofinancement est importante et permet d'amortir ces immobilisations sans problème.

Le résultat après impôt est positif et progresse de 27% à 70 k€ ; il est meilleur que l'objectif budgétaire. Pour cet exercice, le résultat est encore essentiellement constitué de Crédit Impôt

Recherche auquel donne droit l'activité de la société N-GHY. Par les résultats positifs, l'effet des subventions et l'augmentation de capital réalisée par les actionnaires initiaux fin

décidée fin avril 2004 qui permet l'entrée de FILTARN et SOFIREM et apporte 187,5 k€ de quasi fonds propres supplémentaires dès août 2004.

Enfin, citons que N-GHY bénéficie du statut de Jeune Entreprise Innovante, statut qui ouvre droit à des réductions de charges sociales et des exonérations d'impôts. N-GHY dispose donc des moyens pour poursuivre son développement au cours du 3^{ème} exercice.

Compte de résultats (k€)	réalisé		budget
	1er exercice	2ème exercice	3ème exercice
	2002/2003	2003/2004	2004/2005
Chiffre d'affaires net	28	453	855
Production immobilisée	230	406	350
Subventions d'exploitation et autres	61	56	15
Variation d'en cours de production	42	-27	
Total des produits d'exploitation	361	888	1220
Charges de personnel	192	384	466
Charges de production	21	232	321
Autres charges externes	154	205	240
Dotations aux amortissements	18	77	162
Impôts et crédit d'impôt recherche	-79	-79	-20
Résultat net après impôt	55	70	51
Marge d'autofinancement	73	147	213

