



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

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

THÈSE

Pour l'obtention du titre de :

DOCTEUR de L'UNIVERSITÉ DE LORRAINE

Spécialité : Sciences et Ingénierie des Matériaux et Métallurgie

Présentée par :

Gaël FICK

Ingénieur Centrale Nantes

Ingénieur de l'Université Technique de Munich

Analyse environnementale de l'utilisation de biomasse pour la production de tuyaux en fonte

Thèse soutenue publiquement le 09/07/2013 à Nancy devant le jury composé de :

Jean-Louis DIRION	Maître de Conférences, HDR, Ecole des Mines d'Albi	Rapporteur
Frédéric MARIAS	Professeur, Université de Pau	Rapporteur
Eric GAFFET	Directeur de Recherche CNRS, IJL	Examineur
Olivier MIRGAUX	Maître de Conférences, IJL	Co-directeur de thèse
Fabrice PATISSON	Professeur, IJL	Directeur de thèse
Jean-Marie SEILER	Directeur de Recherche, CEA	Examineur
Jean-Pierre BIRAT	Directeur technique, ArcelorMittal Research	Invité
Jean-Bernard GUILLOT	Professeur retraité de l'Ecole Centrale Paris	Invité
Pierre NEAU	Ingénieur Chef projets fonte, SG PAM	Invité

Remerciements

Les travaux de recherche présentés dans ce mémoire ayant principalement été réalisés au sein de l'Institut Jean Lamour, je tiens à remercier ses directeurs successifs, Jean-Marie Dubois et Eric Gaffet pour m'avoir accueilli et donné les moyens techniques de réaliser ces travaux.

Je tiens exprimer ma sincère gratitude à mes directeurs/co-directeurs de thèse industriels et universitaires, Pierre Neau, Olivier Mirgaux et Fabrice Patisson pour avoir dirigé cette thèse. Je les remercie de m'avoir aidé, guidé et pour leur disponibilité, ainsi que pour toutes les connaissances et savoir-faire qu'ils m'ont transmis, et enfin pour la confiance qu'ils m'ont accordée pendant ces trois années.

Je remercie également Jean-Louis Dirion et Frédéric Marias, rapporteurs, ainsi que Pierre Neau, Eric Gaffet, Jean-Marie Seiler, Jean-Pierre Birat et Jean-Bernard Guillot qui ont accepté de juger mon travail en faisant partie de mon jury de thèse.

Pour m'avoir accueilli et permis une intégration rapide au sein du laboratoire, et pour leur sympathie et leur convivialité, je tiens à remercier l'ensemble des membres de l'équipe 301 de l'IJL (Procédés d'élaboration) : son chef d'équipe, Alain Jardy, ainsi que les permanents et tous les thésards et post-doctorants qui en ont fait partie.

Mes remerciements s'adressent également à l'ensemble de la fonction technique de SG PAM, plus particulièrement, Alain Tournier, Jurgen Rischer et Georges Bancon, pour les discussions diverses et enrichissantes que nous avons eues au cours de ma thèse et pour l'intérêt et la curiosité dont ils ont fait preuve à l'égard de mes travaux de recherche et plus généralement à toutes les personnes que j'ai pu rencontrer chez Saint-Gobain (au cours des séminaires de recherche ou de doctorants) ou chez SG PAM plus particulièrement pour leur intérêt envers mes travaux et leur sympathie.

La très courte partie expérimentale n'aurait pu avoir lieu sans l'assistance d'Olivier Devisme qui m'a guidé dans la réalisation des différents essais, et m'a sorti de plusieurs des galères propres à l'expérimentation.

Pour leur disponibilité, leur sympathie ainsi que pour l'aide et toutes les réponses qu'ils m'ont apportées durant ces trois dernières années, sur les aspects techniques sur les hauts fourneaux et sur l'ACV chez SG PAM, je remercie Dominique Barbier et Yves Coquelets.

Un grand merci aux documentalistes, de l'IJL et de SG PAM, pour leur disponibilité et leur réponse toujours rapide à chacune de mes requêtes. Plus particulièrement à Sylviane Kinzelin, qui m'a permis de fouiller un bon nombre de jeudis matin dans la salle des archives de l'IJL.

Je remercie toutes les secrétaires pour leur efficacité et leur patience envers nos diverses exigences, mais également pour leur bonne humeur.

Merci à l'ensemble des membres du site de Saurupt de l'IJL, rencontrés au fil des semaines et des mois, lors des pauses café ou déjeuner, pour leur bonne humeur et pour tous les échanges et les discussions (plus ou moins:)) intéressantes qui font le charme de travailler dans un cadre aussi varié et vivant. Plus particulièrement, Sandra, Anne-Marie, Dédé et Robert, les uns pour m'avoir en quelque sorte soutenu moralement dans les derniers mois de thèse, et les

autres pour m'avoir soutenu physiquement tout au long de ma thèse en assurant une cafétéria et une logistique café optimale.

Merci à Julien Zollinger pour m'avoir consacré une partie de son temps et guidé sur Thermocalc (même si en fin de compte, les résultats n'auront pas servi).

Merci à Valerio, pour son assistance lors de mes premiers pas sur Fluent mais également pour nos discussions musicales, moins professionnelles, mais non moins intéressantes. (Je te dois toujours une bière, ça fait déjà 2 ans, mais je n'oublie pas !)

Merci également à la joyeuse bande de thésards présents à mon arrivée au labo (JF, Paolo, Matthieu, Benoît, Ashish et tous ceux que j'ai oublié), de m'avoir accueilli et intégré au labo, et permis de faire la rencontre d'un cercle des thésards élargi aux autres laboratoires, et aussi à leurs amis avec qui nous avons partagé les bancs de la Cannstatter Volksfet et, de manière plus fréquente, du Berthom. De la même manière, merci aux thésards et post-doc de la fin de ma thèse : Marie, Laurent, Akshey, Matthieu, Youssef, Nicolas, Mathilde, Vincent (j'en oublie...) pour les divertissements, certes plus rares qu'au début (le rush de fin de thèse, n'est effectivement pas un mythe), pour les soirées culturelles, et aussi pour ne m'avoir (pour le moment) pas fait subir de soirée à thème Disney.

Ces trois dernières années n'auraient cependant pas pu être aussi productives sans les « à-côtés » et les activités extra-professionnelles nécessaires à se défouler et mener un travail dans de bonnes conditions, je tiens donc à remercier :

- la bande à TomaR (Virginie, Choup, Justin, Manu, Gaëlle, Elo, Diane, Boun, Maxence, ThomaA...) pour un bon nombre de raisons : pour toutes les soirées, à domicile ou à l'extérieur ; pour être toujours partant pour les petits dej bavarois ou les bouffes tardives plus ou moins raffinées ; pour la compagnie lors des concerts plus ou moins bruyants ; pour les découvertes musicales ; pour avoir squatté le 74 et rentabilisé mon canapé ; pour le 42 ; pour l'humour au top, toujours au top, et parfois un peu trop au top ; pour le sport ; pour m'avoir donné foi en la croustache. (et pour un tas d'autres, mais ma thèse est déjà trop longue pour que je puisse m'étendre ici)
- les Munichois pour les voyages et pour le plaisir de les retrouver chaque année dans un nouveau pays.
- Max, Lucu et Xavier et toute la bande de joyeux Lorrains pour les soirées à la coloc et pour les excursions parisiennes, mais également pour les échanges plus ou moins sérieux sur le labo, les bouquins, la politique ou la société en général.
- Harl, pour être resté, malgré son expatriation à l'Est, quelque part un peu mon coloc permanent, pour toutes les choses qu'il a pu me faire découvrir culturellement point de vue littérature, humour, musique et écologie (take your canvas bags) et tous les trucs qu'on a vécu ensemble en France ou à l'étranger depuis Nantes. (Ah et aussi merci à lui et au reste du Clan pour leur humour raffiné et au goût toujours certain.)
- mes parents pour leur aide matérielle pendant toutes mes années d'étude, mais également leur aide morale à tous les moments où j'ai pu en avoir besoin. Je souhaiterais aussi les remercier de m'avoir éduqué sur tout un tas de valeurs que bien des gens n'ont pas... Au fil des années, eu cours de mes rencontres, elles se sont avérées des plus utiles, et j'ai réalisé à quel point je ne pouvais espérer mieux. Encore merci, à tous les deux.
- mes deux sœurs pour avoir fait de moi un tonton par leurs récentes (et futures) productions de nièces, et pour le même coup, pour avoir réussi à me faire sentir vieux avant 30 ans.

Je finirai par remercier les gens du bureau 121, il paraît qu'on appelle ça les co-bureaux, ok, soit. Donc merci à mes co-bureaux, ceux du début, que j'ai réussi à user au point qu'ils soient partis (Khalid, Julien, Arvind et Laura) et surtout à ceux de la fin (plus particulièrement Matthieu et Jessica). Je ne suis pas certain d'avoir été le co-bureau idéal, surtout les 6 - 7 derniers mois, il a dû vous falloir une grosse dose de patience pour me supporter dans mes errances d'utilisateur Aspen et de rédacteur... Mais vous avez tenu et, sincèrement, grâce à vous, ça a toujours été un plaisir de venir au labo, de pouvoir discuter, échanger et se lâcher de temps en temps dans un bureau aussi vivant et chaleureux. Je ne pouvais pas rêver meilleure ambiance pour mes derniers jours en tant que thésard. Je ne serai malheureusement pas là pour vous rendre la pareille quand ça sera votre tour. Pour ce que ça vaut, je vous souhaite bon courage à vous deux pour tout ce qui vous attend, même si je sais que vous vous en sortirez très bien (oui oui, même toi la toulousaine) et n'hésitez pas à m'appeler si vous avez des soucis sur Excel ou Aspen.

Sommaire

NOTATIONS	I
INDICES	V
ACRONYMES	V
I. INTRODUCTION	1
II. ANALYSE DE L'EXISTANT	5
II.1. Contexte	5
II.1.1. Unité d'agglomération	5
II.1.1.1. Présentation de l'agglomération	6
II.1.1.2. Besoin énergétique et émissions de gaz à effet de serre (GES) associées à l'agglomération	7
II.1.2. Unité de cokerie	7
II.1.2.1. Présentation de l'unité de cokerie	7
II.1.2.2. Besoin énergétique et émissions de GES associées à la cokerie	8
II.1.3. Haut fourneau	9
II.1.3.1. Présentation du haut fourneau	9
II.1.3.2. Besoin énergétique et émissions de GES associées au haut fourneau	11
II.2. Contexte de la substitution	11
II.3. Substitution à l'agglomération	12
II.3.1. Mélange biomasse-minerai de fer, production de bio-agglomérés	12
II.3.2. Production de boulettes de minerai pré-réduit par du charbon de bois	13
II.3.3. Conclusion	13
II.4. Substitution à la cokerie	13
II.4.1. Production de bio-coke	13
II.4.1.1. Bio-coke formé d'un mélange de charbon fossile cokéifiable et de charbon de bois	13
II.4.1.2. Bio-coke formé d'un mélange de charbon fossile cokéifiable et de biomasse brute	14
II.4.1.3. Bio-coke formé d'un mélange de charbon fossile non cokéifiable et de biomasse	14
II.4.2. Utilisation de biomasse pour chauffer les cellules de cokerie	15
II.4.3. Conclusion sur l'utilisation de biomasse pour la production de bio-coke	15
II.5. Substitution dans le haut fourneau	15
II.5.1. Addition au gueulard	15
II.5.1.1. Exigences techniques d'un chargement au gueulard	15
II.5.1.2. Substitution de coke par du charbon de bois	16
II.5.1.3. Comparaison des caractéristiques du charbon de bois et du coke	16
II.5.1.4. Influence sur la marche du haut fourneau	18
II.5.1.5. Utilisation de briquettes de charbon de bois seul ou mélangé avec du charbon fossile	20
II.5.1.6. Conclusion	20
II.5.2. Injection aux tuyères	21
II.5.2.1. Exigences techniques d'une injection aux tuyères	21
II.5.2.2. Injection de fines de charbon de bois	22
II.5.2.3. Injection de biomasse torréfiée	22
II.5.2.4. Injection de biomasse brute sèche	23
II.5.2.5. Injection de liquides issus de biomasse	23
II.5.2.6. Injection de gaz aux tuyères	24
II.5.2.7. Conclusion	24
II.6. Conclusion sur l'analyse de l'existant	25
III. LA RESSOURCE BIOMASSE	27
III.1. Définition de la biomasse	27
III.2. Composition et caractéristiques de la biomasse végétale	28
III.3. Transformation de la biomasse	31
III.3.1. Séchage de la biomasse	32
III.3.1.1. Principe du séchage forcé de la biomasse	32
III.3.1.2. Besoin énergétique pour le séchage de la biomasse	34
III.3.1.3. Emissions associées au séchage de la biomasse	34
III.3.2. Procédé de carbonisation	35
III.3.2.1. Principe de fonctionnement	35

III.3.2.2.	Caractéristiques physico-chimiques du biochar	39
III.3.2.3.	Rendement de carbonisation	41
III.3.2.4.	Coproduits de la carbonisation	41
III.3.2.5.	Aspects énergétiques de la carbonisation	42
III.3.2.6.	Coût du charbon de bois	43
III.3.3.	Procédé de torréfaction	44
III.3.3.1.	Principe de la torréfaction	44
III.3.3.2.	Composition de la biomasse torréfiée	45
III.3.3.3.	Rendement de la torréfaction	45
III.3.3.4.	Procédés industriels	45
III.3.3.5.	Besoins énergétiques	46
III.3.3.6.	Coût	47
III.3.3.7.	Emissions	47
III.3.4.	Procédé de pyrolyse pour la production de bio-huile	47
III.3.4.1.	Principe de fonctionnement	48
III.3.4.2.	Différents types de réacteurs	48
III.3.4.3.	Rendement du procédé	48
III.3.4.4.	Composition et caractéristiques d'une bio-huile	48
III.3.4.5.	Coproduits de pyrolyse rapide	49
III.3.4.6.	Besoins énergétiques	49
III.3.4.7.	Emissions	49
III.3.4.8.	Applications industrielles et productivité	50
III.3.4.9.	Coût d'achat et de production de bio-huiles	50
III.3.4.10.	Amélioration du produit	50
III.3.5.	Procédé de production de bio-slurry	51
III.3.5.1.	Principe de fonctionnement	51
III.3.5.2.	Composition du bio-slurry	51
III.3.5.3.	Rendement	51
III.3.5.4.	Procédé existant	51
III.3.5.5.	Coproduits du procédé	52
III.3.5.6.	Besoins énergétiques	52
III.3.5.7.	Emissions	53
III.3.5.8.	Coût	53
III.3.6.	Procédé de gazéification	53
III.3.6.1.	Principe de fonctionnement	53
III.3.6.2.	Composition et pouvoir calorifique du syngaz	54
III.3.6.3.	Coproduits	54
III.3.6.4.	Besoin énergétique	54
III.3.7.	Méthanisation	55
III.3.7.1.	Mécanisme de méthanisation	55
III.3.7.2.	Composition du biogaz	55
III.3.7.3.	Rendement de la méthanisation	56
III.3.7.4.	Coproduit	56
III.3.8.	Conclusion sur les procédés de prétraitement	56
III.4.	Disponibilité de la biomasse	57
III.4.1.	Le bois énergie	57
III.4.1.1.	Exploitabilité ou difficulté d'exploitation	58
III.4.1.2.	Disponibilité au niveau mondial	59
III.4.1.3.	Disponibilité de la biomasse bois énergie au niveau national	60
III.4.1.4.	Disponibilité au niveau régional	62
III.4.1.5.	Problématique du transport de résidus forestiers	63
III.4.2.	Les résidus agricoles (paille de céréales et maïs)	64
III.4.2.1.	La paille	64
III.4.2.2.	Autres résidus de céréales	65
III.4.2.3.	Cannes de maïs	65
III.4.3.	Déchets d'élevage	66
III.4.4.	Les cultures dédiées	66
III.4.5.	Déchets de l'industrie des biocarburants	67
III.4.6.	Déchets organiques	67
III.4.7.	Les déchets agroalimentaires	67
III.4.8.	Charbon de bois	68

III.5. Exploitation durable de la biomasse forestière	69
III.6. Conclusion sur la biomasse	70
IV. MODELISATION	71
IV.1. Intérêts du couplage méthodologique modélisation systémique/analyse de cycle de vie	71
IV.2. Modélisation du procédé de prétraitement	71
IV.2.1. Intérêts de la modélisation de l'unité de pyrolyse	71
IV.2.2. Modélisation de l'unité de pyrolyse	71
IV.2.2.1. Choix du procédé : réacteur à four tournant	71
IV.2.2.2. Description du modèle	73
IV.2.2.3. Surfaces d'échange	74
IV.2.2.4. Transfert de chaleur	75
IV.2.2.5. Séchage	75
IV.2.2.6. Réactions de pyrolyse	76
IV.2.2.7. Modèles cinétiques	76
IV.2.2.8. Composition des produits de pyrolyse	77
IV.2.2.9. Besoin énergétique	79
IV.2.2.10. Modèle de pyrolyse utilisé	79
IV.2.2.11. Equations des bilans	81
IV.2.2.12. Validation du modèle	82
IV.2.2.13. Emissions de poussières	83
IV.2.3. Modélisation du sécheur	83
IV.2.3.1. Transfert thermiques	84
IV.2.3.2. Modèle de séchage	85
IV.2.3.3. Bilans de masse et d'énergie	86
IV.2.3.4. Emissions de COV	86
IV.2.3.5. Emissions de poussières	87
IV.2.4. Résultats du modèle global de traitement de la biomasse	87
IV.3. Modélisation du haut fourneau sous Aspen Plus	90
IV.3.1. Intérêts de la modélisation du haut fourneau	90
IV.3.2. Modèles existants du haut fourneau	91
IV.3.3. Buts recherchés et exigences à respecter par le présent modèle	91
IV.3.4. Décomposition du haut fourneau	92
IV.3.4.1. Zone de préparation	93
IV.3.4.2. Zone d'élaboration	104
IV.3.5. Cowpers	121
IV.3.6. Validation du modèle	121
IV.3.7. Résultats	123
IV.3.7.1. Autres résultats pour le cas standard	123
IV.3.7.2. Autres cas simulés	125
IV.3.7.3. Taux de remplacement	127
IV.3.7.4. Gaz de gueulard et poussières émises	128
IV.4. Modélisation de l'unité d'agglomération sous Aspen	128
IV.4.1. Emissions de dioxyde et de monoxyde de carbone	128
IV.4.2. Emissions de NO _x	128
IV.4.3. Emissions de COV	129
IV.4.4. Autres émissions (SO _x , HCl, poussières)	129
IV.4.5. Validation du modèle	130
IV.4.6. Présentation des résultats du modèle	130
IV.5. Conclusions	131
V. ANALYSE DE CYCLE DE VIE	133
V.1. Méthodologie de l'analyse de cycle de vie	133
V.2. Définition des objectifs et du champ de d'étude	134
V.2.1. Définition des objectifs	135
V.2.2. Fonction du système et unité fonctionnelle	135
V.2.3. Système à étudier : description des scénarios	135
V.2.4. Limites du système	136
V.2.5. Règles d'allocation	138
V.2.6. Impacts et dommages considérés	140
V.3. Inventaires des émissions et des extractions	141
V.3.1. Inventaire du procédé d'agglomération	141

V.3.2.	Inventaire du procédé de traitement de la biomasse	142
V.3.3.	Inventaire du haut fourneau	143
V.3.4.	Inventaires associés à la production des autres entrants	144
V.3.4.1.	Elaboration des matières premières	144
V.3.4.2.	Broyage des combustibles pulvérisés	144
V.3.4.3.	Transport	145
V.3.4.4.	Electricité	145
V.3.4.5.	Gaz naturel	146
V.3.4.6.	Gestion du gaz de gueulard non consommé aux cowpers	146
V.3.4.7.	Complément sur l'implémentation des inventaires dans GaBi4	146
V.4.	Evaluation des impacts et interprétation des résultats	146
V.4.1.	Emissions de GES	147
V.4.1.1.	Comparaison des méthodes	147
V.4.1.2.	Points chauds	149
V.4.1.3.	Comparaison des scénarios	149
V.4.2.	Utilisation d'énergies non renouvelables	151
V.4.3.	Potentiel d'impact sur la formation de photo-oxydants	152
V.4.4.	Potentiel d'appauvrissement de la couche d'ozone	153
V.4.5.	Potentiel d'acidification	154
V.4.6.	Potentiel d'eutrophisation	155
V.4.7.	Potentiel d'écotoxicité terrestre et aquatique	156
V.4.8.	Potentiel de toxicité humaine	158
V.4.9.	Occupation des sols	160
V.4.10.	Conclusion sur l'analyse des impacts intermédiaires	160
V.4.11.	Caractérisation des dommages	161
V.5.	Aspects économiques	162
V.5.1.	Conclusions	164
VI.	CONCLUSION	167
VII.	PERSPECTIVES	171
VIII.	REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	175
IX.	TABLE DES FIGURES	187
X.	ANNEXES	191
	Annexe A - Caractérisation de la résistance mécanique d'un coke	191
	Annexe B - Biomasses définies par la législation européenne	193
	Annexe C - Impact financier de la valorisation énergétique de la paille	194
	Annexe D - Rendement en résidus (paille) d'une exploitation de blé	195
	Annexe E - Expression du rendement de carbonisation	196
	Annexe F - Première estimation du taux de remplacement de biomasses torréfiées à différentes températures	197
	Annexe G - Application du modèle cinétique multi-échelles de Ranzani Da Costa à notre étude	199
	Annexe H - Modèle cinétique semi-empirique de la gazéification du coke et du charbon de bois	202
	Annexe I - Détermination expérimentale des paramètres cinétiques de pyrolyse du charbon de bois	207
	Annexe J - Expressions des enthalpies des gaz et solides en fonction de la température	208
	Annexe K - Expression des titres molaires à l'équilibre thermodynamique pour l'équilibre de Boudouard	209
	Annexe L - Modélisation aérodynamique des cavités à l'aide de Fluent	211
	Annexe M - Inventaire des émissions et des besoins pour le procédé de traitement de la biomasse	213
	Annexe N - Composition des charges du haut fourneau	214
	Annexe O - Résultats du modèle du haut fourneau pour les cas alternatifs	216
	Annexe P - Inventaires des gaz de gueulard et des poussières issues du haut fourneau	223
	Annexe Q - ICV du processus de fabrication de tuyaux	225
	Annexe R - Allocations pour le haut fourneau	227
	Annexe S - Principaux résultats d'ACV pour une tonne de fonte	229
	Annexe T - Tableaux de résultats d'ACV	230
	Annexe U - Facteurs de caractérisation des dommages et de normalisation utilisés	232
	Annexe V - Présentation des principaux réacteurs d'Aspen Plus	233

Notations

Symbole	Unités	Signification
α	-	Ordre de la réaction
α_{conv}	$m^2 m^{-3}$	Surface d'échange particules/gaz pour la convection
C_i	$mol m^{-3}$	Concentration molaire de l'espèce i en phase gazeuse
$C_{i,eq}$	$mol m^{-3}$	Concentration molaire de l'espèce i en phase gazeuse à l'équilibre
C_d	-	Coefficient de traînée
$C_{eau,g}$	$mol m^{-3}$	Concentration molaire d'eau dans la phase gazeuse
$C_{eau,sat}$	$mol m^{-3}$	Concentration molaire de la vapeur saturante
$C_{p,biomassei}$	$J K^{-1} kg^{-1}$	Chaleur massique de la biomasse
$C_{p,char}$	$J K^{-1} kg^{-1}$	Chaleur massique du char
$C_{p,g}$	$J K^{-1} kg^{-1}$	Chaleur massique du gaz
$C_{p,i}$	$J K^{-1} mol^{-1}$	Chaleur massique de l'espèce gazeuse i
C_i	-	Composant ou pseudo-composant i de la biomasse
d_{agg}	m	Diamètre moyen des blocs d'aggloméré
d_{coke}	m	Diamètre moyen des blocs de coke
d_{fon}	m	Diamètre moyen des fondants
$D_{i,j}$	$m^2 s^{-1}$	Coefficient de diffusion du gaz i dans le gaz j
d_{pm}	m	Diamètre moyen des charges
D_p	m	Diamètre des particules
dx	m	Pas de discrétisation
$D_{tambour}$	m	Diamètre du tambour
dV_{reac}	m^3	Volume de contrôle
ε	-	Fraction de vide
e	m	Epaisseur
$E_{a,i}$	$J mol^{-1}$	Energie d'activation pour la réaction i
f_b	m^{-1}	Répartition linéaire des boîtes de refroidissement
f_{ref}	-	Facteur correctif des pertes thermiques
F_d	N	Force de traînée
h_{gs}	$W m^2 K^{-1}$	Coefficient de transfert thermique entre le gaz et le solide
$h_{conv,mat}$	$m s^{-1}$	Coefficient de transfert de matière
$h_{conv,th}$	$W m^2 K^{-1}$	Coefficient de transfert thermique
$h_{biomasse}$	$J kg^{-1}$	Enthalpie massique de la biomasse
$h_{prod,comb}$	$J kg^{-1}$	Enthalpie massique des produits de combustion
h_s	$J kg^{-1}$	Enthalpie massique du solide
h_g	$J mol^{-1}$	Enthalpie molaire du gaz
h_i	$J mol^{-1}$	Enthalpie molaire du gaz i
$h_{f,i}^0$	$J mol^{-1}$	Enthalpie molaire de formation à 0 °C du gaz i
$h_{f,biomasse}^0$	$J kg^{-1}$	Enthalpie massique de formation à 0 °C de la biomasse
H_{reac}	m	Hauteur de réacteur
$H_{i,react}$	m	Hauteur du réacteur i
$k_{0,i}$	$m s^{-1}$	Facteur de fréquence pour la réaction i
k_{ext}	$kg m^{-3} s^{-1}$	Cinétique de transfert à travers la couche externe d'une particule
$k_{m,0}$	$kg m^{-3} s^{-1}$	Facteur de fréquence pour la cinétique chimique de gazéification de C
k_m	$kg m^{-3} s^{-1}$	Cinétique chimique de gazéification de C
$k_{th,g}$	$W m^{-1} K^{-1}$	Conductivité thermique du gaz
λ	$W m^{-1} K^{-1}$	Conductivité thermique du réfractaire
L_{lit}	m	Largeur du lit de particule
m	kg	Masse
\dot{m}	$kg s^{-1}$	Flux massique
$m_{i,0}$	kg	Masse initiale du solide i
$m_{i,\infty}$	kg	Masse finale du solide i
m_g	kg	Masse du gaz dans le volume de contrôle
M_i	$kg mol^{-1}$	Masse molaire de la molécule i
m_p	kg	Masse d'une particule
MV_i	-	Matière Volatile i
η_{pore}	-	Facteur correctif pour la cinétique de diffusion dans les pores

$N_{p,chute}$	m^{-3}	Nombre de particules en chute, par unité de volume
$N_{p,tot}$	m^{-3}	Nombre total de particules par unité de volume
Nu	-	Nombre de Nusselt
PCS	$J\ kg^{-1}$	Pouvoir Calorifique Supérieur
PM	$m^3_{CH4}\ kg^{-1}_{solide}$	Potentiel Méthanogène
Pr	-	Nombre de Prandtl
$P_{v,g}$	Pa	Pression partielle en vapeur d'eau
P_{vsat}	Pa	Pression de vapeur saturante
Q_{conv}	W	Flux de transfert thermique convectif
Q_{pertes}	W	Pertes thermiques
Q_{refrac}	W	Flux de chaleur au travers du réfractaire
Q_{boites}	W	Flux de chaleur au niveau des boites de refroidissement
$R_{mélange}$	s^{-1}	Vitesse de mélange
R	$kg\ kg^{-1}\ s^{-1}$	Vitesse de réaction
$r_{i,crack}$	$kg\ m^{-3}\ s^{-1}$	Vitesse de formation du volatil i par craquage des goudrons primaires
$r_{i,pyro}$	$kg\ m^{-3}\ s^{-1}$	Vitesse de formation du volatil i par pyrolyse
$r_{eau,r}$	$kg\ m^{-3}\ s^{-1}$	Vitesse de séchage (contrôle transfert de matière)
$r_{eau,m}$	$kg\ m^{-3}\ s^{-1}$	Vitesse de séchage maximale
$r_{eau}(i)$	$kg\ m^{-3}\ s^{-1}$	Vitesse de séchage effective dans le volume de contrôle i
r_{wgs}	$kg\ m^{-3}\ s^{-1}$	Vitesse de réaction de gaz à l'eau
Re	-	Nombre de Reynolds
R_{react}	m	Rayon de réacteur
$R_{react,ext}$	m	Rayon extérieur du haut fourneau
$R_{react,int}$	m	Rayon intérieur du haut fourneau
R_p	m	Rayon des particules
R_b	m	Rayon boîte de refroidissement
ρ_g	$kg\ m^{-3}$	Masse volumique du gaz
ρ_b	$kg\ m^{-3}$	Masse volumique de la biomasse
$\rho_{c,ap}$	$kg\ m^{-3}$	Masse volumique apparente du coke
ρ_s	$kg\ m^{-3}$	Masse volumique du solide
S_{gs1}	m^2	Surface d'échange entre le gaz et les particules en chute
S_{gs2}	m^2	Surface d'échange entre le gaz et le lit de particules
S_c	m^2	Surface des charges solides
Sc	-	Nombre de Schmidt
Sh	-	Nombre de Sherwood
S_{pp}	m^2	Surface projetée d'une particule
$S_{p,tot}$	m^2	Surface extérieure de toutes les particules
S_{ref}	m^2	Surface de réfractaire
T_c	K	Température du coke
T_g	K	Température du gaz
T_{eau}	K	Température d'eau de refroidissement
T_{char}	K	Température du charbon
T_{bh}	K	Température de bulbe humide
T_s	K	Température du solide
T_{bh}	K	Température de bulbe humide
T_{sol}	K	Température de solidus
T_{liq}	K	Température de liquidus
$t_{séjour}$	s	Temps de séjour dans le réacteur
V_{react}	m^3	Volume du réacteur
\dot{V}	$m^3\ s^{-1}$	Débit volumique
μ_g	Pa s	Viscosité du gaz
v_g	$m\ s^{-1}$	Vitesse superficielle du gaz
v_s	$m\ s^{-1}$	Vitesse du solide
w_{eau}	-	Humidité sur sec
w_{eq}	-	Humidité résiduelle (d'équilibre)
w_{init}	-	Humidité initiale
X_i	-	Avancement de la réaction i
x_i	-	Titre massique de l'espèce i

x_{ap}	-	Teneur en eau réduite
y_i	-	Titre molaire de l'espèce i
Y_i	-	Rendement massique de l'espèce i

Indices

Indice	Signification
0	Initial
1	Réaction de réduction de Fe_2O_3 par CO
2	Réaction de réduction de Fe_3O_4 par CO
3	Réaction de réduction de $\text{Fe}_{0,947}\text{O}$ par CO
1'	Réaction de réduction de Fe_2O_3 par H_2
2'	Réaction de réduction de Fe_3O_4 par H_2
3'	Réaction de réduction de $\text{Fe}_{0,947}\text{O}$ par H_2
b	Biomasse
C	Carbone
comb	Combustion
conv	Convection
f	Fonte (et laitier)
g	Gaz
gp	Gaz par rapport aux particules
gs	Gaz par rapport au solide
mat	Transfert de matière
p	Particule
prod	Produits
pyo	Pyrolyse
reac	Réacteur
s	Solide
t	Tambour
th	Transfert thermique
tot	Total
wgs	Water Gas Shift – Réaction de gaz à l'eau

Acronymes

Acronyme	Signification
ACV	Analyse de Cycle de Vie
ADEME	Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie
BE	Bois énergie
BFG	Blast Furnace Gas (Gaz de gueulard de haut fourneau)
BI	Bois d'industrie
BO	Bois d'œuvre
CFD	Computational Fluid Dynamics
CML	Centrum voor Milieuwetenschappen Leiden (« Institut des sciences environnementales de Leiden » en français)
COG	Coke Oven Gas (Gaz de Cokerie)
COV	Composés Organiques Volatils
CPR	Composite Pre-Reduced pellets (boulettes composite de minerai pré-réduit)
CRI	Coke Reactivity Index
CSR	Coke Strength after Reaction with CO_2
DRAAF	Direction Régionale de l'Alimentation, de l'Agriculture et de la Forêt
DSC	Differential Scanning Calorimetry (calorimétrie différentielle à balayage)
EDP	Déclaration Environnementale des Produits
GES	Gaz à Effet de Serre
HAP	Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques
HGI	Index Hardgrove
I02+	Impact 2002 +
ICV	Inventaire de Cycle de Vie
IFN	Inventaire Forestier National
INRA	Institut National de la Recherche Agronomique
MFN	Mécanique des Fluides Numérique
MMHF	Modèle Mathématique du Haut Fourneau
ONF	Office National des Forêts

PCI	Pouvoir Calorifique Inférieur
PCS	Pouvoir Calorifique Supérieur
PAC	Politique Agricole Commune
PEFC	Programme for the Endorsement of Forest Certification (Programme de reconnaissance des certifications forestières)
PIC	Products of Incomplete Combustion
PMRE	Potentiel Maximal de Réduction des Emissions de GES
SG PAM	Saint-Gobain PAM
T(T)CR	Taillis à (très) court temps de rotation
ULCOS	Ultra Low CO ₂ Steelmaking
UNFCCC	United Nation Framework Convention on Climate Change
VMR	Van Marion Retort

I. Introduction

Petit à petit notre civilisation prend conscience des impacts notables qu'elle a eus et qu'elle continue à avoir sur les écosystèmes qui l'entourent. Le réchauffement de la planète (0,65 °C entre 1990 et 2000) en est un exemple notoire. En effet, depuis maintenant plus de 20 ans, de nombreuses études ont mis en relation ce réchauffement climatique avec l'augmentation de la teneur en CO₂ dans l'atmosphère, produit de l'activité industrielle humaine. Les premières décisions résultant de la prise de conscience de cet effet datent de 1997 lors de la conférence de Kyoto au Japon. Cette conférence a abouti à la signature d'un traité international, « le protocole de Kyoto », visant à la réduction des émissions de gaz à effet de serre (GES).

Suite à la ratification du protocole, l'union européenne a mis en place une politique de quotas d'émissions de CO₂ visant les industries les plus émettrices : les installations de combustion, les raffineries de pétrole, les cokeries, les usines sidérurgiques et autres usines de fabrication fortement émettrices de CO₂ (cimenteries, verreries...). La politique mise en place vise à inciter les industriels à optimiser ou à faire évoluer leurs procédés en leur fixant une limite d'émissions de gaz à effet de serre, les industriels étant tenus de compenser les émissions excédentaires par l'achat de crédits-carbone sur un système communautaire d'échange global. La mise en œuvre de cette politique a été prévue graduelle, sur trois périodes (2005-2007, 2008-2012 et 2013-2020), pour d'atteindre à terme, en 2020, une réduction de 20 % des émissions par rapport à 1990. Chaque phase voyant la quantité de quotas alloués à chaque entreprise réduite par rapport à la phase précédente, le coût des crédits-carbone devait théoriquement augmenter au fur et à mesure pour encourager l'industrie à l'innovation.

La sidérurgie est responsable de 5 % des émissions de CO₂ anthropologiques mondiales (IEA 2007), et est donc concernée au premier chef par cette problématique. Sa principale source d'émissions de CO₂ est liée à l'utilisation de coke, agent combustible et réducteur utilisé dans le haut fourneau. En effet, le coke étant composé à 90 % de carbone, la combustion d'une tonne de coke produit plus de 3 tonnes de CO₂. Une première solution envisageable pour réduire les émissions de CO₂ de cette industrie, l'optimisation du procédé en vue de réduire l'utilisation de coke, n'est de nos jours plus d'actualité, un optimum de la consommation en coke ayant déjà été atteint depuis les années 1980. Les différents acteurs de la sidérurgie se sont donc tournés vers la recherche d'autres solutions, plus innovantes. Le principal projet entrepris en ce sens est le projet européen ULCOS (Ultra Low CO₂ Steelmaking). Il s'était fixé pour objectif de réduire de 50 % les émissions de la production d'acier par rapport à la filière classique de première fusion basée sur le haut fourneau. Des voies diverses ont été envisagées, de la substitution directe du coke par un réducteur non fossile (biomasse) ou la modification partielle du procédé initial (haut fourneau à recyclage avec captage et stockage du CO₂), à la conception de procédés de rupture innovants comme les fours à hydrogène, ou l'électrolyse directe du minerai de fer. Dès les premières phases du projet, des solutions jugées non viables ont été écartées, en particulier la voie biomasse, la disponibilité de la ressource ne pouvant assurer l'approvisionnement d'une filière européenne.

Plus localement, Saint-Gobain PAM (SG PAM), premier producteur mondial de tuyaux de canalisation en fonte ductile, est soumis au système de quotas et souhaiterait réduire ses émissions de CO₂ de manière significative afin de réduire l'impact économique qui leur est associé. Son usine principale, basée à Pont-à-Mousson, produit des tuyaux à partir de la filière de première fusion depuis 1866 et émet de nos jours plus de 1,8 t de CO₂ par tonne de fonte élaborée. Sa capacité de production nominale étant de plusieurs centaines de milliers de tonnes de fonte annuelles sur le site de Pont-à-Mousson, l'enjeu économique et environnemental est conséquent. Comme les entreprises ayant pris part au projet ULCOS, sa principale source d'émissions de CO₂ est le coke utilisé dans ses hauts fourneaux. Mais contrairement aux grands

sidérurgistes européens, la relative petite taille de l'unité de production de Pont-à-Mousson en comparaison des grandes usines intégrées côtières, permet à SG PAM d'envisager l'utilisation de biomasse comme substitut au coke, solution qui n'a pas été retenue dans le projet ULCOS.

La biomasse consiste en la matière organique d'origine végétale ou animale, formée dans les végétaux à partir d'eau et de CO₂ et de l'énergie solaire ou de déchets fermentescibles issus de cette matière. Il s'agit de la première énergie renouvelable utilisée en France, et son intérêt pour les applications à visées énergétiques provient de sa teneur en carbone élevée (environ 50 % pour les végétaux), carbone dont on qualifie le cycle de « court » ou rapide. En effet, le carbone émis sous forme de dioxyde de carbone lors de la combustion de biomasse peut être considéré comme réintégré par de nouveaux végétaux dans un délai de quelques mois à plusieurs dizaines d'années, ce qui est faible en comparaison du cycle du carbone des énergies fossiles qui nécessite plusieurs millions d'années pour retrouver sa forme initiale. Dans le cas d'une production raisonnée de biomasse, et sous la condition d'un renouvellement systématique de la biomasse cultivée après récolte, le carbone émis peut être considéré comme immédiatement capté et l'effet du dioxyde de carbone peut être négligé.

Légalement, le système de quotas européen considère la biomasse et tout carbone issu de biomasse comme neutre en termes d'émissions de CO₂. La substitution du coke par une biomasse brute ou un produit issu de la biomasse pourrait alors potentiellement satisfaire le besoin de SG PAM, sous réserve de valider sa faisabilité et sa viabilité. En effet, l'intégration de biomasse dans le procédé de production de fonte de première fusion implique le respect de multiples exigences techniques ou logistiques, ce qui correspond aux attentes de l'industriel concernant cette étude. Tout d'abord, une ressource suffisante en biomasse doit être accessible, et si possible localement. La confrontation des exigences techniques du procédé d'élaboration de fonte avec les propriétés des différents types de ressources existantes doit permettre de déterminer les types de produits biomasses acceptables. Enfin il faut s'assurer de la viabilité économique et environnementale de l'utilisation de ces biomasses.

Cette dernière exigence, d'évaluation environnementale favorable, peut être vérifiée en utilisant une approche holistique appelée Analyse de Cycle de Vie (ACV). Il s'agit d'une méthode normalisée qui permet d'évaluer les impacts environnementaux de produits ou de procédés industriels et de déterminer les conséquences globales de modifications de processus unitaires.

Ce cahier des charges permet de tracer les lignes directrices de notre étude. Le premier chapitre s'attachera à synthétiser l'ensemble des solutions existantes ou en cours de recherche sur l'utilisation de biomasse dans la filière classique de production de fonte. Cette thématique n'est effectivement pas nouvelle, plusieurs auteurs s'y sont déjà intéressés, par exemple à la suite du choc pétrolier de 1979. De plus, certains hauts fourneaux de par le monde ne fonctionnent encore qu'à partir de biomasse, comme c'était le cas en Europe jusqu'au 19^e siècle.

Le deuxième chapitre s'intéressera plus particulièrement à la biomasse, aux différentes ressources existantes, aux procédés de traitement susceptibles d'être utilisés pour en améliorer les caractéristiques physiques et chimiques et enfin à sa disponibilité locale et nationale. S'assurer de la disponibilité locale de la biomasse a une portée double : d'abord économique puisque la distance de transport impacte fortement son coût, mais également environnementale à cause des émissions liées à son transport.

Dans un troisième chapitre, des inventaires détaillés des entrées et sorties des principaux procédés seront effectués à partir de modélisations physico-chimiques effectuées avec le logiciel de diagramme de flux Aspen Plus. L'intérêt de ces modèles est, d'une part, d'assurer la

qualité des inventaires utilisés, en garantissant le respect des bilans massiques et énergétiques et, d'autre part, de simuler des cas de fonctionnement alternatifs des procédés considérés.

Enfin le dernier chapitre sera dédié à l'analyse de cycle de vie. Deux scénarios de référence seront comparés à 4 scénarios de substitution partielle du coke par des produits d'origine biomasse. Pour chaque scénario, les émissions de gaz à effet de serre et l'impact sur l'utilisation des ressources non renouvelables seront observés dans un premier temps, puis on identifiera plus généralement sur quelles autres catégories d'impacts la filière a des effets prépondérants et quels peuvent être les bénéfices d'une utilisation de biomasse.

II. Analyse de l'existant

II.1. Contexte

Depuis le milieu du 19^e siècle, Saint-Gobain PAM (SG PAM) produit des tuyaux en fonte ductile par un procédé dit de « première fusion ». 60 % de la fonte produite mondialement est élaborée à partir de cette filière permettant d'obtenir de la fonte liquide à partir de minerai de fer (oxydes de fer) ou d'aggloméré (minerai de fer aggloméré). Elle se compose de trois principaux procédés unitaires : l'agglomération, la cokerie et le haut fourneau (Figure 1). L'agglomération permet de préparer le minerai de fer, généralement reçu sous forme de fines, à son utilisation en haut fourneau en agglomérant les fines sous forme de morceaux poreux. Le procédé de cokerie permet de transformer un charbon fossile tendre et riche en matières volatiles en un produit dur et riche en carbone, appelé coke. Enfin le haut fourneau est l'outil principal d'élaboration de la fonte dans lequel les oxydes de fer du minerai sont réduits puis fondus.

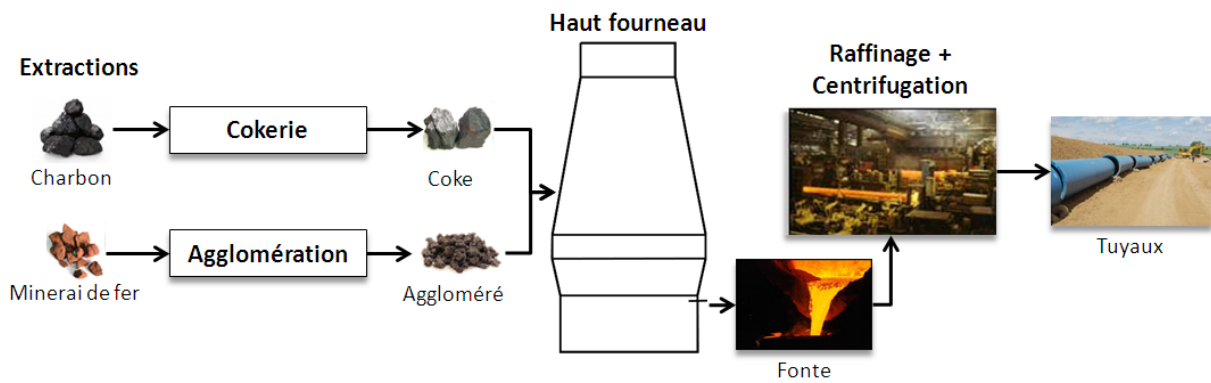


Figure 1 – Processus de production des tuyaux de fonte, par la filière d'élaboration de fonte par première fusion

La fonte issue du haut fourneau consiste en un alliage composé principalement de fer (environ 94 %), de carbone (environ 4 %), de silice (environ 2 %) et d'autres éléments présents en faible quantité (Mn, S, P, Ti). Le rôle du carbone est primordial. C'est en effet en ajoutant une petite quantité de magnésium à la fonte encore liquide que l'on forme les nodules de graphites sphéroïdaux, qui confèrent à la fonte la ductilité nécessaire à la fabrication des tuyaux.

Le cas particulier de SG PAM diffère légèrement de celui d'une usine sidérurgique classique basée sur ces trois procédés principaux : il n'y a pas d'unité de cokerie sur le site de production, le coke étant importé. L'usine SG PAM contient aussi une section supplémentaire de traitement du métal liquide. Cette section de l'usine a pour fonction de contrôler et de raffiner la fonte liquide, plus particulièrement de réduire la teneur en soufre (désulfuration) et d'effectuer le traitement au magnésium. Les tuyaux sont ensuite fabriqués par un procédé de centrifugation qui consiste à couler la fonte liquide dans une coquille tournant à grande vitesse et continuellement refroidie.

II.1.1. Unité d'agglomération

L'agglomération est un procédé très répandu dans le monde de la sidérurgie, et qui doit son importance aux exigences en termes de calibre (5 à 50 mm) et de tenue mécanique à haute température (supérieure à 1000 °C) des charges du haut fourneau. En effet, les mines de fer ne peuvent fournir que peu de minerai calibré et répondant à ces exigences pour des raisons géologiques et minéralogiques (Astier J. 2007). Ainsi au début du 20^e siècle fut inventée

l'agglomération, procédé permettant de produire des blocs de minerai (l'aggloméré) satisfaisant les exigences sidérurgiques à partir de fines de minerai de fer. L'aggloméré constitue de nos jours la majeure partie des charges ferrifères enfournées dans le haut fourneau, à titre d'exemple, en 2005 80% des besoins en minerai de fer étaient couverts par l'aggloméré (Astier J. 2007). A Pont-à-Mousson, la charge ferrifère est à 93 % de l'aggloméré (SG PAM 2009-2011).

II.1.1.1. Présentation de l'agglomération

On peut distinguer deux types de procédés d'agglomération : l'agglomération sur grille et l'agglomération en boulettes. L'unité présente chez SG PAM étant du type agglomération sur grille, nous ne discuterons que de ce cas, qui est d'ailleurs le plus répandu dans le monde, 70 % de la production d'aggloméré provenant d'une agglomération sur grille.

Une unité d'agglomération sur grille se décompose généralement en deux principales zones : une zone de préparation (où les différentes charges sont stockées et mélangées) et une zone d'agglomération. Dans la zone de préparation, les fines de minerai (849 kg pour produire 1 t d'aggloméré) sont dans un premier temps mélangées à une petite quantité de combustibles (17 kg de fines de coke et 31 kg d'anhracite) et de fondants¹ (144 kg). Le tout est humidifié et malaxé dans un nodulisateur, qui permet la formation de microboulettes à partir du mélange. Le mélange entre ensuite dans la zone d'agglomération (voir Figure 2) : il est déposé sous forme de lit (de 30 à 50 cm de hauteur) sur une chaîne continue composée de chariots à fond grillagé, le tout formant une surface utile variant entre 50 et plus de 500 m² pour les plus grandes unités (respectivement 2 x 25 m et 5 x 100 m). En début de chaîne, le lit passe sous une hotte d'allumage où des brûleurs, généralement à gaz naturel, chauffent la surface du lit et amorcent la combustion du carbone. Un puissant ventilateur (3 à 20 kW) permet d'aspirer via les boîtes à vent (Figure 2) l'air ambiant. Cela va entraîner le déplacement du front de combustion de la surface vers le fond du lit entre le début et la fin de chaîne. Cette combustion va permettre à la charge d'atteindre une température supérieure à 1200 °C, ce qui entraîne sa fusion partielle et provoque le frittage (ou agglomération) des microboulettes entre elles. Se forme alors un gâteau poreux, qui, une fois la combustion terminée, sera refroidi par l'aspiration. Le gâteau est enfin broyé et criblé pour obtenir la granulométrie choisie (généralement 10 à 20 mm).

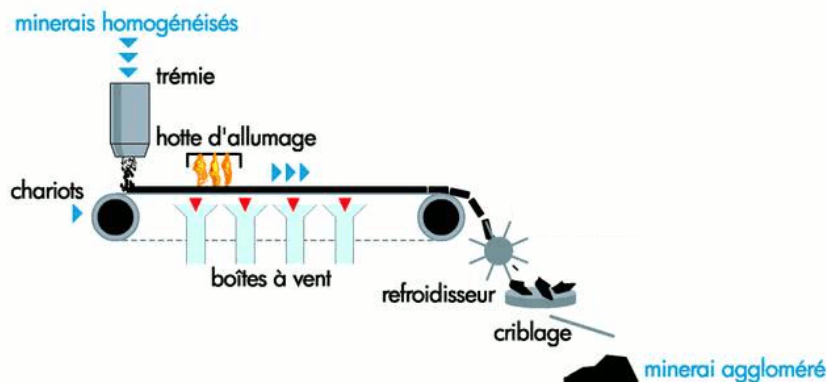


Figure 2 – Schéma du principe de fonctionnement de la chaîne d'agglomération

¹ Les fondants sont des matières minérales généralement riches en calcium ou en silice, qui permettent de baisser la température de fusion des matières minérales de la charge. Deux types de fondants existent : les fondants basiques, riches en calcium, tels que la castine, la dolomie, et les fondants acides, riches en silice, tels que les graviers ou le silex ou l'olivine.

II.1.1.2. Besoin énergétique et émissions de gaz à effet de serre (GES) associées à l'agglomération

Deux types de combustibles sont utilisés dans le procédé d'agglomération : un combustible solide (coke ou anthracite) pour le mélange et un combustible gazeux (gaz naturel) pour l'allumage. Dans l'unité d'agglomération de SG PAM, située à Dieulouard (54), deux combustibles solides sont mélangés aux fines de minerai : du poussier de coke ($17,1 \text{ kg t}^{-1}$ d'aggloméré) et de l'anthracite ($31,1 \text{ kg t}^{-1}$ d'aggloméré). La consommation de gaz naturel pour les brûleurs de la hotte s'élève à environ $0,8 \text{ Nm}^3 \text{ t}^{-1}$ d'aggloméré. Une dernière source de CO_2 à l'agglomération est liée à la décarbonatation d'une partie des fondants (castine, CaCO_3), dont 127 kg sont utilisés par tonne d'aggloméré. Ces entrants conduisent à la formation d'environ $210 \text{ kg}_{\text{CO}_2\text{eq}} \text{ t}^{-1}$ d'aggloméré.

II.1.2. Unité de cokerie

Ce procédé, qui produit du coke à partir de charbon fossile, consiste à pyrolyser le charbon, c'est-à-dire à le chauffer en absence d'air. Le rôle de cette pyrolyse est de réduire la teneur en matières volatiles du charbon et d'obtenir un produit de résistance mécanique élevée et d'un calibre adapté au haut fourneau (de l'ordre de 50 mm).

II.1.2.1. Présentation de l'unité de cokerie

Le four de cokerie est constitué d'une batterie de cellules, dont le volume de chacune est compris entre 20 et 60 m^3 (environ 50 cm de largeur, 4 à 7 m de hauteur et entre 13 et 18 m de longueur). Le charbon fossile est chargé dans ces cellules qui sont ensuite hermétiquement fermées. La pyrolyse est réalisée en chauffant les parois extérieures des cellules par un gaz chaud, jusqu'à atteindre une température interne de l'ordre de $1100 \text{ }^\circ\text{C}$. Le cycle de pyrolyse complet dure généralement entre 14 et 36 h . Dans un premier temps, le charbon atteignant entre 380 et $450 \text{ }^\circ\text{C}$ se décompose en différents produits liquides et gazeux qui, lors de leur échappement, réagissent avec la partie solide qui se transforme alors en un matériau plastique. Ce dernier va ensuite se solidifier à des températures plus élevées (entre 900 et $1200 \text{ }^\circ\text{C}$) produisant une masse compacte et dense : le coke. Tous les charbons ne sont pas cokéfiabiles, seul les charbons de type « bitumineux », aussi appelés charbons gras, peuvent servir à la production de coke. Un charbon fossile non cokéfiabable ne passera en revanche pas par cet état plastique et le produit final aura donc des propriétés mécaniques moindres, inadaptées à l'utilisation en haut fourneau (Das S. et coll. 2002). Une méthode pour déterminer les caractéristiques de charbons fossiles quant à leur comportement thermoplastique est le test de fluidité de Gieseler².

Une fois la pyrolyse terminée, le coke encore chaud est poussé en dehors des cellules et est acheminé à une tour d'extinction par chariots (voir Figure 3). Dans cette zone, il est refroidi, « étouffé », soit par pulvérisation d'eau, soit par circulation de gaz neutre (N_2). Le produit obtenu est finalement criblé. Les matières volatiles quant à elles sont refroidies et une phase gazeuse et une phase liquide sont récupérées. La phase gazeuse, riche en H_2 , CH_4 et CO , est appelée gaz de cokerie (ou Coke Oven Gas, COG), sa composition et son pouvoir calorifique inférieur (PCI) sont donnés dans le Tableau 1. Il est fréquent d'utiliser une partie de la chaleur produite par la combustion de ce gaz pour le chauffage des cellules de cokerie. La fraction

² Le test de fluidité Gieseler est une méthode de mesure de la fluidité de la phase plastique, qui permet de prévoir la résistance mécanique d'un coke à partir du mélange de charbons fossiles utilisé (Diez et coll, 2009)

liquide peut ensuite être décantée pour obtenir des produits valorisables tels que l'ammoniaque et des hydrocarbures aromatiques (naphtalène, benzène, toluène).

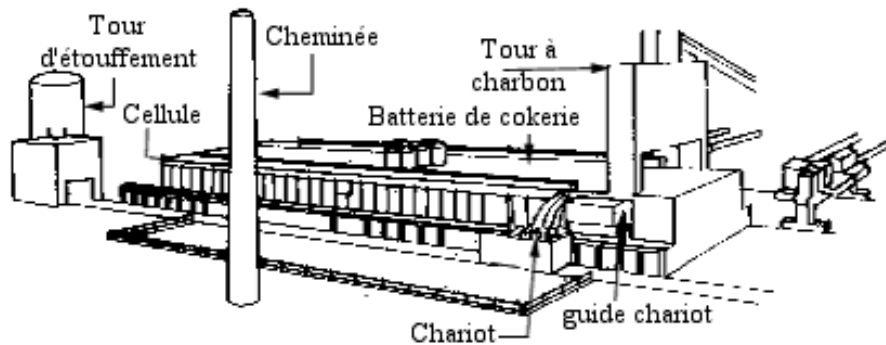


Figure 3 – Représentation d'une unité de cokerie et de ses principales zones (SAIL 2008).

II.1.2.2. Besoin énergétique et émissions de GES associées à la cokerie

Comme nous l'avons vu précédemment, le procédé de production de coke nécessite la combustion d'un gaz énergétique pour chauffer les cellules de cokerie. Dans le cas d'une cokerie implantée sur un site sidérurgique, il est fréquent d'utiliser du gaz d'échappement du haut fourneau, appelé plus couramment gaz de haut fourneau (ou Blast Furnace Gas, BFG). Par contre, lorsque l'unité de cokerie n'est pas rattachée à un site sidérurgique, ce sont les gaz de cokerie qui sont utilisés. Dans le cadre de cette étude, nous ne considérerons que ce dernier cas.

Le besoin énergétique pour la production d'une tonne de coke est de l'ordre de 3,5 GJ, et la quantité de COG produite est de l'ordre de 440 Nm³ (soit environ 8,5 GJ) ce qui signifie qu'un excédent de COG est produit par rapport au besoin. L'excédent de COG est généralement brûlé sur site en chaudière pour la production d'électricité. L'intégralité du COG produit est donc consommée et brûlée sur place, engendrant des émissions directes de CO₂, auxquelles il faut ajouter des émissions liées à la combustion du coke entre la sortie des cellules et la tour d'étouffage. Un calcul rapide à partir des données du Tableau 1 permet d'estimer les émissions GES à environ 449 kg_{CO2eq} t⁻¹ coke.

Tableau 1 : Compositions typiques des trois principaux gaz utilisés en sidérurgie : le gaz naturel, le gaz de cokerie et le gaz de haut fourneau.

	Unités	Gaz naturel	COG	BFG
CO ₂	[%]	1,28	2,2	11,5
O ₂	[%]	0	0,8	0
N ₂	[%]	1,41	8,1	60
CO	[%]	0	6,3	27,5
H ₂	[%]	0	46,5	1
CH ₄	[%]	91,42	32,1	0
C _x H _n	[%]	5,65	4	0
PCI	[MJ Nm ⁻³]	46,9	19,2	3,4

II.1.3. Haut fourneau

II.1.3.1. Présentation du haut fourneau

Le haut fourneau est l'élément principal du procédé de production de fonte par première fusion. Il s'agit d'un réacteur cylindro-conique vertical à contre-courant, dont la taille est souvent exprimée par son volume utile. Celui-ci varie de 250 m³ pour les plus petits hauts fourneaux (4 m de diamètre et 18 m de hauteur) à plus de 5500 m³ pour les plus gros (15 m de diamètre et plus de 30 m de hauteur). Les hauts fourneaux de SG PAM peuvent être considérés comme de petits hauts fourneaux avec approximativement 5 m de diamètre et 25 m de hauteur, soit un volume utile de 490 m³.

On peut décomposer le haut fourneau en cinq parties physiques : le gueulard, la cuve, le ventre, les étalages et le creuset (Figure 4).

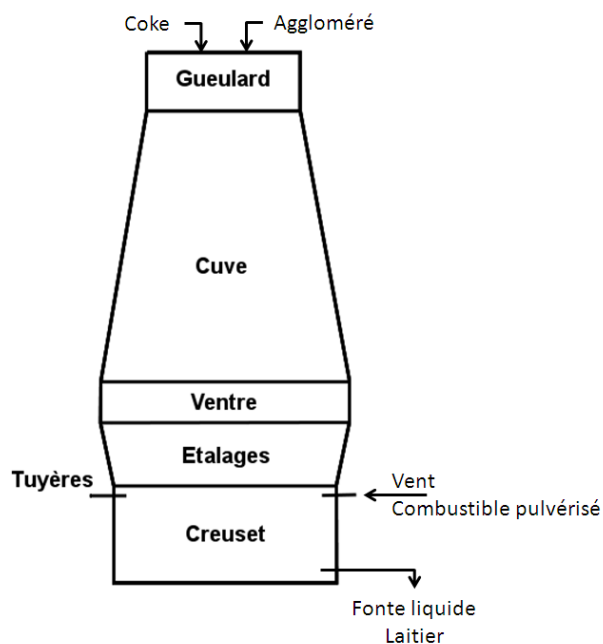


Figure 4- Schéma des zones physiques d'un haut fourneau et des principaux entrants et sortants

Les charges solides, principalement de l'aggloméré et du coke, sont introduites à température ambiante au gueulard en couches alternées. L'aggloméré, produit dans l'unité d'agglomération, est principalement composé d'oxydes de fer (hématite Fe₂O₃ et magnétite Fe₃O₄), et de minéraux (Ca, Si, Al...) sous forme d'oxydes, ces derniers étant appelés gangue. Le coke, produit dans l'unité de cokerie, se présente sous forme de blocs solides de résistance mécanique importante et contenant peu de matières volatiles ainsi qu'un taux de carbone fixe³ élevé. Dans cette première partie du haut fourneau, les charges solides commencent à être chauffées par convection par les gaz chauds ascendants et s'assèchent.

Dans la partie haute de la cuve, le monoxyde de carbone, contenu dans les gaz ascendants, permet de réduire partiellement les oxydes de fer en wüstite (FeO), produisant du dioxyde de

³ Les taux d'humidité, de matières volatiles, de cendres et de carbone fixe sont donnés par l'analyse dite immédiate. Celle-ci détermine dans un premier temps l'humidité en chauffant l'échantillon à analyser à 108 °C et en mesurant la perte de masse. Le taux de matières volatiles est ensuite déterminé en pesant l'échantillon après une chauffe à 900 °C en absence d'oxygène. Enfin l'échantillon sec et privé de matières volatiles est de nouveau chauffé dans l'air jusqu'à combustion complète du carbone. La pesée finale permet de déterminer la teneur en cendres et le carbone fixe par différence.

carbone. Plus bas, à température plus élevée (environ 950 °C), la réduction des oxydes de fer se poursuit tandis qu'une réaction de régénération – l'équilibre de Boudouard (voir Figure 5) – reforme CO à partir de CO₂ en gazéifiant une partie du coke. Un équilibre thermique se met alors en place entre les réactions de réduction des oxydes de fer (exothermiques) et la réaction de gazéification du coke (endothermique), conduisant à une température du réacteur approximativement constante (environ 950 à 1000 °C) dans cette zone. Cette zone d'équilibre est appelée zone de réserve thermique et peut s'étendre sur une hauteur de 5 à 10 m.

Dans le ventre et les étalages, deux phénomènes principaux ont lieu : la fusion des éléments minéraux et la réduction de la wüstite en fer, par réduction dite indirecte (réduction de FeO solide par CO) ou directe (réduction par le carbone solide).

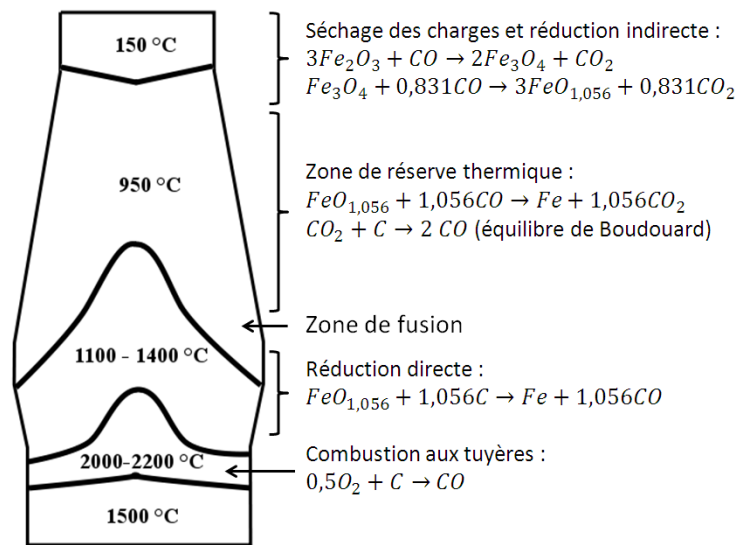


Figure 5 – Schéma des différentes zones thermiques du haut fourneau et principales réactions associées

De l'air chaud, appelé « vent », est injecté aux tuyères situées dans la partie haute du creuset. Le vent est chauffé entre 900 et 1200 °C à partir de la combustion de gaz de haut fourneau ou de gaz de cokerie, dans le cas d'une usine sidérurgique classique. Le système d'échangeurs thermiques permettant le chauffage du vent est appelé cowper. Ce système se compose de deux à quatre cylindres en tôle, un puits de combustion et un puits de ruchage en réfractaire, tous deux communiquant par leur partie haute. Dans un premier temps, le gaz combustible (BFG ou COG) est brûlé dans le puits de combustion produisant des fumées chaudes qui circulent alors dans le puits de ruchage, dont le réfractaire emmagasine la chaleur. Dans un second temps, la combustion terminée, le vent froid circule en sens inverse dans ce ruchage où il se réchauffe au contact du réfractaire. Il est donc nécessaire d'avoir au minimum deux cowpers par haut fourneau, afin que l'un des cowpers emmagasine de la chaleur pendant que le second restitue la chaleur accumulée dans son ruchage au vent.

En complément du vent, on peut également injecter un combustible annexe aux tuyères : de la poudre de charbon fossile, des huiles lourdes ou du gaz (gaz naturel ou gaz de cokerie). Une réaction de combustion partielle entre l'air chaud, le combustible pulvérisé et une partie du coke produit un gaz chaud et riche en CO. La combustion fournit alors l'énergie nécessaire à la fusion dans le ventre et aux différentes réactions endothermiques ayant lieu dans le haut fourneau. Au nez des tuyères se trouve une cavité, zone de faible densité créée par le souffle du vent et où se déroule la combustion du coke et du combustible annexe. On y définit souvent une température (adiabatique) de flamme, qui correspond à la température calculée à partir d'un bilan thermique de la zone de combustion considérée comme isolée. D'après Burteaux (1991),

cette température dépend de la température et de l'humidité du vent, de sa teneur en oxygène et de la nature du combustible injecté. Elle est généralement comprise entre 2000 et 2200 °C.

Afin que les gaz injectés et produits au sein du haut fourneau puissent circuler vers le gueulard, les charges solides doivent former un lit perméable, ce qui leur impose une granulométrie et une résistance à la compression suffisantes.

Enfin dans le creuset, seul le coke reste sous forme solide, formant un lit quasi-fixe et perméable. Ce lit de coke permet de supporter l'ensemble des charges solides du haut fourneau tout en assurant une perméabilité à la fonte et au laitier liquide. Le laitier est constitué des éléments minéraux de l'aggloméré (gangue) et des autres charges non réduites dans le haut fourneau. Sa densité étant plus faible que la fonte, il surnage sur la fonte liquide et est ainsi séparé de la fonte par décantation. Il s'agit d'un coproduit de la fonte, à faible valeur ajoutée puisque, dans le cas de SG PAM, il n'est utilisé qu'en remblais routiers.

II.1.3.2. Besoin énergétique et émissions de GES associées au haut fourneau

La production d'une tonne de fonte requiert approximativement 470 kg de coke. L'injection de combustible annexe, du charbon pulvérisé par exemple, permet de réduire cette consommation de coke en le remplaçant par un combustible meilleur marché. A titre d'exemple, le Tableau 2, qui liste les différents entrants d'un haut fourneau de SG PAM, donne la consommation de coke dans le cas d'une injection de charbon pulvérisé.

Les émissions de GES du haut fourneau proviennent de la combustion du carbone du coke (et du combustible pulvérisé), auquel il faut retrancher 42 kg de carbone correspondant au carbone piégé dans la fonte. Dans le cas de SG PAM, ces émissions s'élèvent ainsi à $1430 \text{ kg}_{\text{CO}_2\text{eq}} \text{ t}^{-1}_{\text{fonte}}$.

Tableau 2 : Entrants types et les quantités correspondantes d'un haut fourneau de SG PAM en 2012 pour la production d'une tonne de fonte

	Unités	Quantité
Aggloméré	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	1440
Minerai	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	61
Refusions	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	51
Coke	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	404
Charbon pulvérisé	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	77
Fondants	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	91
Vent	[Nm ³ t ⁻¹ _{fonte}]	1311

II.2. Contexte de la substitution

Chacun des trois procédés principaux de la filière fonte consomme de façon importante des ressources fossiles qui pourraient être substituées, partiellement tout au moins, par de la biomasse. La suite de ce chapitre sera ainsi consacrée à une présentation des différents modes de substitutions envisageables et se basera sur un état des lieux des pratiques déjà usitées dans l'industrie ou ayant fait l'objet de travaux de recherche au sein de la communauté scientifique. Elle s'articulera ainsi en trois parties qui traiteront successivement des modes de substitution envisageables au niveau de l'usine d'agglomération, de la cokerie et enfin du haut fourneau. Dans un premier temps, nous parlerons souvent de biomasse de façon générique, le type de biomasse à envisager sera précisé ensuite en tenant compte des spécifications techniques à satisfaire.

La comparaison entre les différents scénarios de substitution se fera principalement au travers de deux grandeurs, qui sont le taux de remplacement et le potentiel maximal de réduction des émissions de GES. Ces grandeurs sont définies ci-dessous.

Le taux de remplacement (ou taux de substitution) correspond à la quantité de coke remplacée par une tonne de biomasse considérée. Il joue un rôle important pour les calculs économiques et les évaluations environnementales. Le taux de remplacement ne peut être facilement calculé du fait de la complexité des phénomènes mis en jeu dans les procédés. En effet, dans le cas du haut fourneau, le taux de remplacement dépendra du PCI, de la teneur en carbone et de l'humidité du produit de substitution. Pour l'agglomération le PCI, l'humidité et la réactivité du produit à l'oxygène joueront un rôle. Aussi est-il nécessaire de faire appel à la simulation ou à des essais expérimentaux pour connaître la valeur du taux de remplacement dans chaque cas.

Le potentiel maximal de réduction des émissions de GES est défini à partir de la fraction de ressource fossile remplacée dans un procédé et de la part des émissions liées à ce procédé sur l'ensemble de la filière. Nous verrons au chapitre V que les émissions de GES sont d'environ $1903 \text{ kg}_{\text{CO}_2\text{eq}} \text{ t}^{-1}$ de fonte produite sur l'ensemble de la filière restreinte de production de fonte (haut fourneau, cokerie et agglomération). Le Tableau 3 montre la répartition des émissions de la filière sur les trois procédés, calculées à partir des données du Tableau 2 et des émissions intrinsèques aux procédés, données dans les paragraphes précédents. On peut calculer le Potentiel Maximal de Réduction des Emissions de GES (PMRE) par la formule 1.

$$PMRE = \frac{m_{comb,r}}{m_{comb,tot}} \cdot E_{procédé} \quad 1$$

avec

$m_{comb,r}$: masse de combustible fossile remplacée par de la biomasse dans le procédé

$m_{comb,tot}$: masse de combustible fossile totale utilisé le procédé

$E_{procédé}$: part des émissions du procédé sur l'ensemble de la filière (Tableau 3)

Tableau 3 : Valeur et répartition des émissions de GES sur la filière de production de fonte par première fusion

	Emissions [$\text{kg}_{\text{CO}_2\text{eq}} \text{ t}^{-1}_{\text{fonte}}$]	Part [%]
Haut fourneau	1430	74,5
Cokerie	192	9,9
Agglomération	300	15,6
Total	1922	100

II.3. Substitution à l'agglomération

L'agglomération est un procédé qui utilise une quantité importante de combustible fossile et dans lequel de la biomasse pourrait être utilisée sous forme de biomasse brute ou de biomasse prétraitée.

II.3.1. Mélange biomasse-minerai de fer, production de bio-agglomérés

Lovel et coll. (2007) ont montré que des fines de charbon de bois pouvaient être utilisées pour substituer partiellement ou entièrement le charbon fossile ou le coke utilisé dans l'étape d'agglomération. Cette substitution aurait l'avantage d'accroître la productivité⁴ du fait de la

⁴ Productivité = vitesse de production

meilleure réactivité du charbon de bois par rapport au charbon fossile ou au coke. On peut ainsi s'attendre à une augmentation de 8 % dans le cas optimal d'une substitution partielle de 20 % du coke par du charbon de bois (Ooi T.C. et coll. 2011). En revanche, une baisse de la densité et donc une diminution de la résistance mécanique et de la résistance à l'abrasion seraient à prévoir pour le produit final.

Il est par ailleurs intéressant de noter que ce type de substitution peut entraîner une réduction significative des émissions de NO_x (Lovel R. et coll. 2007; Sakurovs R. 2010). En effet, la teneur en azote du charbon de bois est plus faible que celle d'un charbon fossile ou d'un coke, et à des températures inférieures à 1300 °C la majeure partie des NO_x produits en combustion proviennent de l'azote contenu dans le combustible.

II.3.2. Production de boulettes de minerai pré-réduit par du charbon de bois

Gupta et coll. (2001) ont considéré la production de CPR (Composite Pre-Reduced pellets), agglomérats de minerai pré-réduits par du coke, du charbon fossile ou du charbon de bois. Si les boulettes produites à partir de coke seraient utilisables en haut fourneau, l'utilisation de charbon de bois produirait en revanche des boulettes fissurées, inadaptées à cet usage.

II.3.3. Conclusion

D'après Lovel et coll. (2007), dans le cas où l'intégralité du coke utilisé à l'agglomération serait remplacée par du charbon de bois, on aurait un taux de remplacement de l'ordre de 0,7.

Cette technique pourrait potentiellement permettre de réduire les émissions de CO₂ de l'unité d'agglomération de 50 à 100 %, ce qui correspondrait à un potentiel maximal de réduction des émissions de GES de 7,5 à 15 %.

II.4. Substitution à la cokerie

Une substitution des ressources fossiles par des ressources biomasse pourrait également être effectuée à l'unité de cokerie. La substitution pourrait se faire à deux niveaux : en remplacement du produit brut entrant (charbon fossile à cokéfier), ou du combustible utilisé pour chauffer les cellules.

II.4.1. Production de bio-coke

Le bio-coke⁵ est un coke hybride produit par cokéfaction de charbon fossile mélangé à de la biomasse. Différents types de biomasse (brutes ou carbonisées) et de ressources fossiles (charbon fossile de cokerie standard, dit cokéfiable, ou charbon non cokéfiable) peuvent être envisagées pour produire ce bio-coke.

II.4.1.1. Bio-coke formé d'un mélange de charbon fossile cokéfiable et de charbon de bois

Le mélange de charbon fossile cokéfiable et charbon de bois a été envisagé par Hanrot et coll. (2009). Selon les auteurs, le mélange de charbon de bois avec du charbon fossile

⁵ Le charbon de bois est parfois aussi appelé bio-coke ; dans la suite de ce document, le terme bio-coke désignera exclusivement le coke hybride produit à partir de charbon fossile et de biomasse

permettrait la fabrication d'un coke plus réactif. Ce bio-coke aurait ainsi une température de gazéification plus faible, réduisant de fait la température de zone de réserve. A titre d'exemple, selon Hanrot et coll., avec 3 % massique de charbon de bois ajouté à la cokerie, la température de gazéification du coke serait réduite de 100 °C et les propriétés mécaniques du coke devraient rester suffisantes pour une utilisation en haut fourneau. Les conséquences d'une telle baisse de la température de réserve seront évoquées plus en détail dans la partie substitution au haut fourneau (voir paragraphe II.5.1.4).

L'ajout d'une plus grande quantité de biomasse compromettrait cependant l'utilisation de ce bio-coke au niveau du haut fourneau. MacPhee et coll. (2009) ont en effet montré que l'ajout de 5 % de charbon de bois au charbon fossile se traduirait par une altération forte des propriétés mécaniques du bio-coke rendant son emploi en haut fourneau impossible. La résistance mécanique, mesurée par le CSR (Coke Strength after Reaction, voir annexe A) pourrait en effet chuter de 5 à 20 %. Selon ces auteurs, le calibre du charbon de bois employé pourrait par ailleurs influencer fortement les propriétés mécaniques du bio-coke, un gros calibre (6,25 à 9,5 mm) devrait assurer un meilleur CSR. Selon une autre équipe (Diez M.A. et coll. 2009) la chute du CSR trouverait son origine dans la réduction de la fluidité Gieseler. En effet, 2 à 10 % de charbon de bois dans le mélange réduisent cette fluidité de 15 à 60 % respectivement, à cause de la libération des matières volatiles avant et pendant la phase de plasticité du charbon fossile. Les matières volatiles de la biomasse ayant un comportement différent des matières volatiles du charbon fossile, quant à leur craquage et recondensation, le processus de formation du semi-coke s'en trouverait modifié.

II.4.1.2. Bio-coke formé d'un mélange de charbon fossile cokéifiable et de biomasse brute

Matsumura et coll. (2008) se sont intéressés à la substitution d'une partie du charbon fossile classique par de la biomasse brute, pour la production de bio-coke. Leur étude a montré que, comme dans le cas du charbon de bois, une fraction même faible de biomasse brute (1 %) entraîne des répercussions importantes sur la résistance mécanique du bio-coke. Afin d'atténuer la baisse des propriétés mécaniques du bio-coke, les auteurs ont envisagé de comprimer la biomasse brute (des déchets de bois dans leur étude) en tablettes de 10 mm de diamètre avant de l'ajouter au charbon fossile dans le four de cokerie. Le résultat a montré que la compression des déchets de bois en tablette à température ambiante permettait un ajout jusqu'à 1,5 % massique de biomasse, sans réduction des propriétés mécaniques du produit final. Matsumura et coll. estiment par ailleurs que jusqu'à 2 à 3 % de biomasse pourraient être ajoutés au charbon fossile sans modification de la résistance mécanique, si la compression était réalisée à chaud (200 °C).

II.4.1.3. Bio-coke formé d'un mélange de charbon fossile non cokéifiable et de biomasse

D'autres études ont considéré la possibilité de produire du coke à partir de charbon non cokéifiable en y ajoutant de la biomasse. Das et coll. (2002) ont montré que cette technique est réalisable à hauteur de 30 % d'ajout de mélasses. Les propriétés physiques du coke produit seraient équivalentes à celles d'un coke utilisable en fonderie, mais très probablement insuffisantes pour une utilisation en haut fourneau.

II.4.2. Utilisation de biomasse pour chauffer les cellules de cokerie

La biomasse peut également être employée comme combustible pour chauffer les cellules de cokerie. Dans ce cas, une grande variété de biomasses pourrait être exploitée. Cette solution présente cependant peu d'intérêt car la production de gaz de cokerie d'une unité est généralement excédentaire par rapport à ses besoins thermiques et il n'est pas rare que l'excédent de gaz de cokerie soit utilisé pour la production d'électricité. Dans le cas où la cokerie est intégrée à un site sidérurgique, une partie de ces gaz de cokerie est par ailleurs utilisée dans les cowpers du haut fourneau pour chauffer le vent.

II.4.3. Conclusion sur l'utilisation de biomasse pour la production de bio-coke

La production de bio-coke permet de réduire les émissions globales de GES de la filière du fait de la réduction d'emploi de charbon fossile. En se basant sur la quantité de carbone apportée par la biomasse, on peut estimer son taux de remplacement, qui varie entre approximativement 0,6 pour la biomasse brute et 1 pour du charbon de bois. Les quantités de biomasses pouvant être introduites étant fortement limitées, le potentiel maximal de réduction des émissions de GES serait très faible : 0,5 % pour l'ajout de 1 % de biomasse brute, ou 2,3 % pour l'ajout de 3 % de charbon de bois, par exemple.

Note : Dans la suite de l'étude, la substitution de biomasse à l'unité de cokerie ne sera pas considérée. En effet, SG PAM achète son coke sur le marché et ne dispose pas de sa propre unité de cokerie. De ce fait, influencer sur le procédé de production du coke n'est pas une solution envisageable pour SG PAM.

II.5. Substitution dans le haut fourneau

Comme nous l'avons vu précédemment, les ressources fossiles peuvent être utilisées de deux manières différentes dans le haut fourneau : chargées sous forme de blocs solides au gueulard ou injectées sous forme pulvérisée aux tuyères. L'utilisation de biomasse en substitut des ressources fossiles nécessitera des exigences techniques différentes, selon la zone d'injection ou de chargement et le type de la ressource considérée.

II.5.1. Addition au gueulard

II.5.1.1. Exigences techniques d'un chargement au gueulard

Pour qu'un substitut d'origine biomasse puisse être chargé au gueulard, il doit remplir les principales fonctions assurées par la ressource classique, c'est-à-dire le coke. Ces fonctions sont au nombre de quatre et impliquent des caractéristiques physico-chimiques spécifiques. Qualitativement, le substitut doit assurer (Burteaux M. 1991; Worldsteel Association 2008; Hanrot F. et coll. 2009):

- l'apport d'énergie, (PCI élevé, typiquement supérieur à 20 MJ kg⁻¹)
- l'apport d'éléments réducteurs (CO et H₂), (teneur élevée en C ou en H),
- l'apport en élément d'alliage (C), (forte teneur C),
- le rôle de matrice perméable, présentant une forte tenue mécanique et une granulométrie élevée.

À ce jour, la seule ressource biomasse répondant à toutes ces exigences est le charbon de bois, dont les caractéristiques physico-chimiques se rapprochent du coke.

II.5.1.2. Substitution de coke par du charbon de bois

L'utilisation de charbon de bois comme combustible et agent réducteur dans les hauts fourneaux n'est pas une technique nouvelle. En effet, les premiers hauts fourneaux fonctionnaient originellement à partir de charbon de bois exclusivement. L'essor de la sidérurgie en Angleterre a d'ailleurs énormément contribué à sa déforestation. Au 19^e siècle la déforestation et l'amélioration des rendements rendue possible par l'utilisation de coke ont généralisé l'emploi exclusif de ce combustible en Europe. De plus, le coke ayant une résistance mécanique supérieure à celle du charbon de bois, il a été possible d'augmenter la taille des hauts fourneaux. Cependant, l'utilisation de charbon de bois est restée une pratique courante au Brésil, un pays pauvre en charbon cokéfiabable mais disposant de grandes surfaces forestières. Dans plusieurs autres pays, comme la Suède, le Japon ou l'Australie certains hauts fourneaux ont continué à utiliser du charbon de bois jusqu'au milieu du 20^e siècle. C'est généralement une hausse du coût du bois, due au développement des industries du bois, qui a mis fin à son utilisation métallurgique (FAO 1963).

Le protocole de Kyoto, signé en 1997, et ses répercussions sur les politiques des pays occidentaux visant à réduire les émissions de GES poussent maintenant les acteurs de l'industrie sidérurgique à explorer cette voie à nouveau. En Europe par exemple, le programme ULCOS (Ultra Low CO₂ Steelmaking) s'est penché sur la question de l'emploi de biomasse en substitut du coke (Birat J.P. et coll. 2008), mais le cahier des charges de ce programme imposant une réduction de 50 % des émissions de CO₂ et l'utilisation de gros hauts fourneaux, la piste biomasse a été écartée. Les ressources locales disponibles en biomasse n'auraient d'ailleurs pas suffi pour satisfaire les besoins de ces hauts fourneaux. En Australie, des études ont également été menées afin d'évaluer l'intérêt de l'utilisation de charbon de bois d'un point de vue économique (Norgate T.E. et coll. 2009). Cette étude a montré que les coûts du charbon de bois seraient alors prohibitifs dans cette région du monde. Inversement, depuis 2009 au Brésil, l'entreprise ACESITA SA est passée d'une utilisation d'un mix coke/charbon de bois à une utilisation exclusive de charbon de bois (Teodoro da Costa R. et coll. 2006). En Inde, depuis les années 80, la piste de la biomasse a été envisagée, et plus particulièrement le cas de blocs de charbon de bois en substitut au coke (Gupta 2003). Enfin un projet cadre UNFCCC (United Nation Framework Convention on Climate Change) a analysé et suggéré l'utilisation de charbon de bois dans des hauts fourneaux pour les pays en développement.

II.5.1.3. Comparaison des caractéristiques du charbon de bois et du coke

Le charbon de bois est le produit du procédé de carbonisation, dont le but est d'augmenter la densité énergétique et de diminuer la fraction des matières volatiles présentes dans la biomasse. La carbonisation consiste à pyrolyser des morceaux de bois, c'est-à-dire les chauffer lentement en absence d'oxygène, jusqu'à des températures de 400 à 500 °C. Le procédé de carbonisation sera discuté plus en détail dans le chapitre 3, sur le traitement de la biomasse.

L'exemple du Brésil montre que le charbon de bois peut être utilisé dans les hauts fourneaux de petite taille (< 1000 t j⁻¹). Cependant, les caractéristiques physico-chimiques du charbon de bois diffèrent sensiblement de celles du coke. Le Tableau 4 liste les caractéristiques physico-chimiques principales de cokes et de charbons de bois utilisés dans des hauts fourneaux occidentaux et brésiliens. On peut y remarquer des différences notables en carbone fixe, matières volatiles, densité et réactivité au CO₂.

Tableau 4 : Comparaison des caractéristiques physico-chimiques du coke et du charbon de bois

Caractéristiques	Unités	Coke		Charbon de bois	
		[1]	[2]	[1]	[2]
Source		[1]	[2]	[1]	[2]
Taille moyenne	[mm]	43	50	34	32
%<25,4 mm	[%]	12,5	13,6	37,4	n.c.
Densité	[kg m ⁻³]	540	1050	265	750
Réactivité au CO ₂ ⁶	[%]	18-30	29,7	70	n.c.
PCI	[MJ kg ⁻¹]	30,4	29,6	28,6	n.c.
Humidité (base humide)	[%]	5,48	5,0	5,38	7,28
Carbone fixe	[%]	88,8	90,3	78,15	73,70
Cendres	[%]	10,38	9,4	1,75	4,46
Matières volatiles	[%]	0,82	0,3	20,1	21,84
Soufre	[%]	0,57	0,6	0,00	n.c.
Phosphore	[%]	0,04	0,06	0,03	n.c.

Sources : [1](Teodoro da Costa R. et coll. 2006), [2] (SG PAM 2009-2011)

La teneur en carbone fixe est un facteur important puisque le carbone joue le double rôle de combustible et d'agent réducteur. Dans le cas du charbon de bois, la teneur en carbone fixe et la teneur en matières volatiles sont liées : plus la carbonisation est poussée, plus le taux de carbone fixe est élevé et le taux en matières volatiles est faible. Dans le cas d'un chargement au gueulard, les matières volatiles s'échappent dans la partie haute du fourneau et ne sont pas exploitées, il est donc plus important d'avoir un fort taux en carbone fixe. Cependant un charbon de bois à taux de carbone fixe élevé sera moins dense et plus friable qu'un charbon de bois à carbone fixe plus faible.

La densité joue un rôle sur le volume utile dans le haut fourneau : un charbon de bois peu dense laissera moins de place à l'aggloméré, ce qui sera source d'une baisse de la productivité.

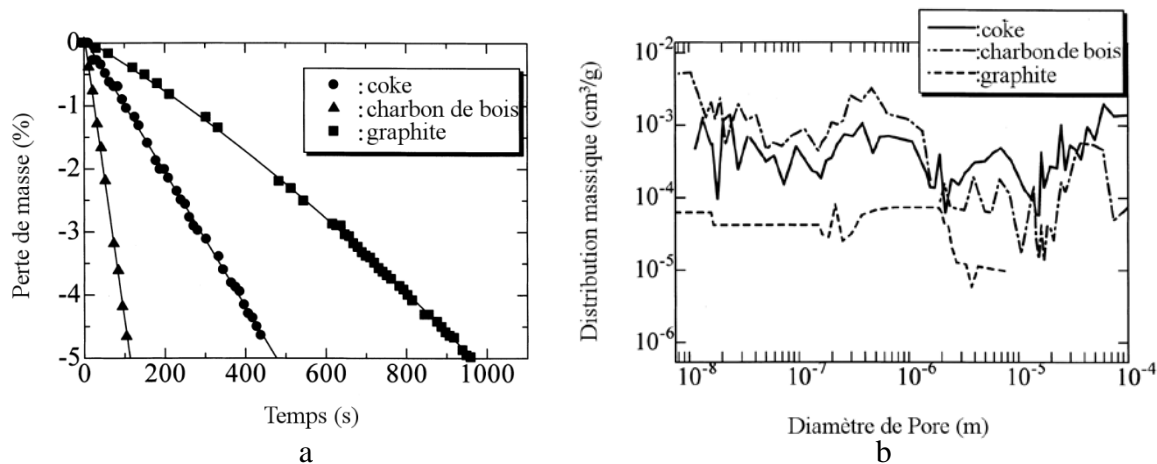


Figure 6 – a. Vitesse de gazéification de coke, de charbon de bois et de graphite avec CO₂
b. Distribution de la taille des pores pour les trois matériaux carbonés (Kawakami M. et coll. 2004)

La réactivité au CO₂, reportée dans le Tableau 4 par l'index CRI (Coke Reactivity Index, voire annexe A pour plus de détails), est deux à trois fois plus importante pour le charbon de bois que pour le coke, du fait de la distribution en taille des pores du matériau différente (Kawakami M. et coll. 2004). C'est principalement les pores de tailles inférieures à 1 µm, plus nombreux dans le cas du charbon de bois que dans le coke, qui seraient responsables de cette cinétique rapide de gazéification. Ceci est visible sur la Figure 6, qui met en relation la vitesse de gazéification du charbon de bois et du coke avec la répartition des tailles de pores.

⁶ Les valeurs de réactivité au CO₂ affichées ici correspondent aux valeurs de CRI, voir annexe A

II.5.1.4. Influence sur la marche du haut fourneau

Les propriétés des matières chargées ont une influence non négligeable sur la marche du haut fourneau. A titre d'exemple, les points de fonctionnement d'un haut fourneau brésilien fonctionnant exclusivement au charbon de bois et d'un haut fourneau classique (100 % coke) sont reportés dans le Tableau 5. Les disparités observées montrent ainsi que la marche du haut fourneau est très sensible au type de combustible utilisé.

Tableau 5 : Comparaison des points de fonctionnement d'un haut fourneau à charbon de bois et d'un haut fourneau à coke chez SG PAM (SG PAM 2009-2011)

Paramètre	Unités	Brésil	Pont-à-Mousson
Mise au mille ⁷	[kg t ⁻¹ fonte]	694	467
Mise au mille carbone	[kg C t ⁻¹ fonte]	419	395
Production	[t j ⁻¹]	355	823
Volume de vent	[Nm ³ t ⁻¹ fonte]	1445	1240
Volume gaz gueulard	[Nm ³ t ⁻¹ fonte]	2023	1740
Poussières des gaz	[kg t ⁻¹ fonte]	68,63	3,3

Il est donc important de prévoir quelles conséquences peut avoir la substitution partielle ou totale du coke par des blocs de charbon de bois chargés au gueulard. Si plusieurs conséquences négatives sont attribuées à cette substitution, notamment en termes de mise au mille ou de performance globale, elle peut aussi s'avérer avantageuse sur certains points, comme la gestion du laitier par exemple.

Impacts sur la gestion des entrants

L'utilisation de charbon de bois va toucher deux principaux entrants du haut fourneau : le combustible et le vent. Concernant le combustible, on s'attend à une mise au mille en charbon de bois plus importante que la mise au mille avec du coke. On l'estime à environ 700 kg charbon de bois par tonne de fonte (FAO 1963; SG PAM 2009-2011). L'importance de cette mise au mille s'explique par deux phénomènes : d'une part le charbon de bois contient une fraction de matières volatiles importantes qui va s'échapper dans les premiers mètres du haut fourneau sans avoir été exploitée, d'autre part la réactivité plus grande du charbon de bois devrait conduire à une gazéification qui débute plus tôt (plus près du gueulard qu'avec du coke) et entraîne donc une moins bonne utilisation du monoxyde de carbone produit.

La gestion du vent est elle aussi impactée par l'utilisation de charbon de bois. En effet, on observe (Tableau 5) que le volume de vent à chauffer pour l'injection aux tuyères est plus important dans le cas d'un haut fourneau fonctionnant exclusivement au charbon de bois (SG PAM 2009-2011). Cependant, du fait de la meilleure réactivité du charbon de bois, la température du vent pourrait être abaissée jusqu'à 850 °C (Chatterjee A. 1993), ce qui réduirait la consommation énergétique. On peut alors s'interroger sur le bilan énergétique global du vent : en reprenant les volumes de vent du Tableau 5, un calcul théorique montre que le besoin énergétique pour chauffer le vent dans le cas d'un haut fourneau à charbon de bois serait plus faible (environ 1,55 GJ t⁻¹ fonte) que dans le cas classique à 100 % de coke (environ 1,74 GJ t⁻¹ fonte).

⁷ La mise au mille correspond à la quantité de matière chargée dans le haut fourneau pour la production d'une tonne de fonte.

Impacts sur le fonctionnement interne

Comme nous l'avons vu plus tôt, la réactivité élevée du charbon de bois au CO₂ peut entraîner une modification de la température de zone de réserve thermique. En effet, dans le cas d'une substitution totale, cette température serait réduite de 150 °C par rapport au haut fourneau à coke, passant de 950 à 800 °C (Chatterjee A. 1993). La réactivité plus importante engendre une cinétique chimique plus rapide et un équilibre thermique à une température plus faible. Une conséquence néfaste serait par exemple une température de réserve trop faible qui entraînerait une moindre réduction des oxydes de fer par le gaz, et donc à la fois une moins bonne utilisation du monoxyde de carbone et une baisse de la productivité du haut fourneau. Cependant, une substitution partielle du coke par du charbon de bois permettrait d'obtenir une température de réserve entre 850 et 900 °C et qui réduirait ainsi la mise au mille coke. Selon Hanrot et coll. (2009), le chargement de 20 kg de charbon de bois par tonne de fonte produite causerait une baisse de la température de gazéification suffisante pour permettre l'économie de 30 kg de coke par tonne de fonte.

D'autres conséquences importantes découlent des propriétés physiques différentes du charbon de bois, telles que sa faible densité et sa friabilité élevée. Le charbon de bois étant moins dense que le coke et sa mise au mille plus importante que le coke, moins de place est disponible pour l'aggloméré, et son temps de séjour est donc plus court que dans un haut fourneau classique. Cela peut entraîner une réduction incomplète des oxydes de fer dans la partie haute du haut fourneau, et donc une baisse de la productivité (Chatterjee A. 1993; Teodoro da Costa R. et coll. 2006). Néanmoins, selon l'entreprise Minitec (2012), entreprise d'ingénierie brésilienne spécialisée dans la conception de mini hauts fourneaux à coke ou à charbon de bois, l'utilisation de charbon de bois entraînerait au contraire une hausse de la productivité. Par exemple, un haut fourneau au charbon de bois de 350 m³ a une productivité de 890 t de fonte par jour, contre 805 avec du coke. Dans le cas où la friabilité du charbon de bois est élevée, plus de fines sont alors produites, d'où un risque accru de colmatage du lit dans le haut fourneau et une mauvaise circulation des fluides. Ce risque est d'autant plus important que les hauts fourneaux sont grands. Selon Norgate et coll. (2009), pour amoindrir ces risques, une substitution supérieure à 20 % de coke par du charbon de bois ne devrait pas être effectuée.

Impacts sur la gestion des sortants

Enfin nous abordons les impacts de cette substitution sur les différents produits sortant du haut fourneau. Le premier produit à considérer est naturellement la fonte. La substitution par du charbon de bois aura une première conséquence positive, puisque la fonte produite à partir de charbon de bois ne contient presque pas (jusqu'à 0,02 %) de soufre, contrairement à la fonte produite en haut fourneau à coke (contenant plus de 0,08 % de soufre) qui nécessite une étape de désulfuration. Le soufre présent dans le haut fourneau provient presque exclusivement du coke, dont la teneur en soufre est supérieure à 0,6 %, alors que celle du charbon de bois est généralement inférieure à 0,1 %. Les fontes produites au Brésil dans des fourneaux à charbon de bois ne nécessitent pas d'étape de désulfuration (Chatterjee A. 1993; Worldsteel Association 2008).

Plusieurs conséquences sont attendues sur le gaz de gueulard. D'une part, le volume de vent étant plus important dans le cas d'un haut fourneau à charbon de bois, le volume des gaz de gueulard à traiter sera lui aussi plus important (SG PAM 2009-2011). Le charbon de bois étant plus friable, la quantité de fines présente dans ce gaz de gueulard sera supérieure à celle d'un haut fourneau à coke (SG PAM 2009-2011). Ensuite, comme nous l'avons vu plus tôt, le charbon de bois perd ses matières volatiles dans la partie haute et commence sa gazéification plus tôt, ce qui peut entraîner une mauvaise utilisation du monoxyde de carbone. Le gaz de

gueulard est alors plus riche en CO (et en matières volatiles, comme le CH₄ par exemple) et présente un pouvoir calorifique plus élevé (environ 4,0 MJ Nm⁻³ contre 3,2 MJ Nm⁻³ pour un haut fourneau à coke).

Enfin, le dernier produit du haut fourneau est le laitier, qui sera aussi modifié par cette substitution. Sa température par exemple passe de 1530 °C dans un haut fourneau à coke à 1400 °C avec du charbon de bois (Chatterjee A. 1993; Nogami H. et coll. 2004). Or une température de laitier plus faible implique une viscosité plus élevée et donc une évacuation plus difficile du haut fourneau. Mais la viscosité dépend aussi de sa composition et notamment sa basicité⁸. Nogami et coll. (2004) suggèrent que la basicité élevée des cendres du charbon de bois favoriserait la fusion du laitier et donc son élimination. Chatterjee (1993) au contraire, explique que la basicité du laitier serait faible (CaO/SiO₂ = 0,8), impliquant un besoin supplémentaire en fondants calcaires. Enfin certains auteurs (Chatterjee A. 1993; Nogami H. et coll. 2004) s'attendent à ce que la quantité de laitier produite soit considérablement réduite, compte-tenu de la faible teneur en cendres du charbon de bois par rapport à celle du coke. Cependant, dans le cas de SG PAM à Pont-à-Mousson, nous avons constaté que cela ne représenterait qu'une baisse de 10 % de la quantité de laitier, l'essentiel du laitier provenant de la gangue de l'aggloméré.

II.5.1.5. Utilisation de briquettes de charbon de bois seul ou mélangé avec du charbon fossile

Avelar Lucena et coll. (2008) ont étudié la production de briquettes à partir de déchets de carbonisation. Ces briquettes sont produites par compression et se présentent sous la forme de cylindres de 10 mm de diamètre et de longueur comprise entre 30 et 40 mm. Selon les auteurs, leurs propriétés mécaniques seraient suffisantes pour permettre leur utilisation en haut fourneau. Sur le même principe, Demirbaş (1999) a étudié le compactage de charbon de coquilles de noisettes en utilisant de la bio-huile comme liant. Le compactage est effectué entre 300 et 800 MPa et la bio-huile provient de la pyrolyse de coquilles de noisettes. Ce type de briquettes n'est cependant pas adapté pour une utilisation en haut fourneau, elles se dégraderaient très rapidement à haute température à cause de la volatilisation du liant.

Des briquettes constituées d'un mélange de biomasse et de charbon fossile pourraient être une autre option. Yaman et coll. (2001) se sont ainsi intéressés à différents mélanges de lignite et de biomasses variées (mélasses, pommes de pin, sciures, déchets d'olives, de papeterie et de cotonnerie). Il n'agit pas d'une application destinée à l'emploi en haut fourneau, mais l'idée est intéressante. Dans cette étude, la pression de briquetage varie de 50 à 250 MPa, et jusqu'à 30 % de biomasse ont été utilisés pour obtenir un produit final d'un pouvoir calorifique inférieur compris entre 15 et 20 MJ kg⁻¹. Les résultats montrent des propriétés mécaniques intéressantes pour des briquettes de lignite et de déchets de papeterie mais dont l'applicabilité dans le haut fourneau n'est cependant pas prouvée. En effet la tenue mécanique de telles briquettes à chaud et sous gaz réducteur n'a pas été testée à ce jour.

II.5.1.6. Conclusion

L'utilisation de biomasse par chargement au gueulard est une pratique courante au Brésil, qui serait donc vraisemblablement envisageable avec des hauts fourneaux classiques, dans le

⁸ La basicité d'un laitier s'exprime à partir du rapport de la quantité de ses constituants basiques (chaux CaO, magnésie MgO) à ses constituants acides (silice SiO₂, alumine Al₂O₃). Il est parfois simplifié au rapport CaO/SiO₂.

cas d'une substitution partielle du coke. D'après les mises au mille actuellement observées, on peut estimer le taux de remplacement du coke par du charbon de bois à 0,67 tonne de coke par tonne de charbon de bois injectée. En considérant que les briquettes de charbon de bois auraient un comportement similaire aux blocs de charbon de bois, le taux de remplacement des briquettes serait du même ordre de grandeur, ou légèrement inférieur. Dans le cas de briquettes issues d'un mélange de charbon de bois et de charbon fossile, le taux de remplacement du coke serait vraisemblablement compris entre 0,67 et 1, du fait du taux de carbone fixe plus élevé dans les briquettes composites que dans le charbon de bois brut.

Comme on l'a vu précédemment, une substitution trop importante pourrait entraîner des colmatages et donc des baisses importantes de la productivité voire des dommages. Pour éviter une telle situation, Norgate et coll. (2009) suggèrent de ne pas substituer plus de 20 % du coke. On peut cependant aussi envisager une utilisation plus limitée du charbon de bois ou des briquettes de charbon de bois qui ne seraient alors utilisés qu'en faible quantité, chargés avec l'aggloméré en remplacement du « petit coke », blocs de coke de diamètre compris entre 25 et 10 mm. Remplacer l'intégralité du petit coke dans le cas de SG PAM reviendrait à substituer 3 % de la mise au mille coke, ce qui correspondrait à un potentiel maximal de réduction des émissions de GES de 2,3%. Mathieson et coll. (2011) estiment qu'une plus grande fraction de biomasse pourrait être chargée avec l'aggloméré pour atteindre jusqu'à 7 % de réduction des émissions dans le haut fourneau, soit 5,4% de potentiel maximal de réduction des émissions de GES.

II.5.2. Injection aux tuyères

II.5.2.1. Exigences techniques d'une injection aux tuyères

L'injection de combustible aux tuyères d'un haut fourneau est une technique maintenant couramment utilisée. Elle consiste à injecter le combustible – de la poudre de charbon fossile pulvérisé, du fioul lourd ou du gaz naturel – de manière uniforme sur les tuyères réparties autour de la base du haut fourneau. La substitution, tout ou partie, de ces combustibles fossiles par de la biomasse ne devrait pas poser de difficulté majeure si le substitut continue d'assurer les principales fonctions du combustibles fossiles, à savoir (Burteaux M. 1991; Buchwalder J. et coll. 2003) :

- l'apport d'énergie, nécessitant un pouvoir calorifique important,
- l'apport en élément réducteur (CO ou H_2), impliquant une teneur importante en C ou en H,
- l'apport en élément d'alliage (C), donc ayant une forte teneur C,

De plus, afin de ne pas perturber la marche du haut fourneau, la teneur en eau de ce substitut devrait être faible (< 5 %). Enfin, l'injection aux tuyères impose que le substitut soit pulvérisé, et se présente sous la forme de poudre de granulométrie resserrée autour de 0,1 mm, d'un liquide, ou d'un gaz.

Pour satisfaire ces exigences, plusieurs types de produits biomasse pourraient être envisagés :

- poudres de biomasse plus ou moins prétraitées (poudre de charbon de bois, de biomasse torréfiée ou de biomasse séchée),
- biomasses liquides ou liquéfiées (lisier, bio-huile)
- gaz (syngaz, biogaz)

Il est par ailleurs important de noter que l'injection aux tuyères est limitée en termes de quantités. En effet, le haut fourneau ne peut fonctionner sans une quantité minimum de coke solide pour supporter les éléments chargés au gueulard. Poos et coll. (1991) ont évalué la mise

au mille coke minimale théorique à 120 kg t^{-1} fonte, le défaut de combustible et réducteur étant compensé par une injection de charbon fossile pulvérisé aux tuyères. Dans la pratique, seuls des taux d'injection de charbon fossile de 170 à 260 kg t^{-1} fonte ont été réalisés, correspondant à des mises au mille coke de 286 à 320 kg t^{-1} fonte (Babich A. et coll. 2002).

II.5.2.2. Injection de fines de charbon de bois

On peut dans un premier temps évoquer l'injection de fines de charbon de bois, dont les caractéristiques physico-chimique se rapprochent de celles du charbon fossile usuel. Ce type d'injection, très similaire à l'injection de charbon fossile, est de nos jours utilisé dans certains fourneaux brésiliens. En effet, les sidérurgistes brésiliens producteurs de leur charbon de bois ont intérêt à utiliser leurs fines afin d'optimiser leur processus, ces fines étant un de leurs principaux déchets. Par exemple, Campos de Assis (2010) s'y est intéressé en montrant la faisabilité technique et l'intérêt économique d'une telle solution. Une étude de la FAO (1983) explique qu'il est possible d'injecter jusqu'à 5 % du volume de charbon de bois d'un haut fourneau en fines. Dans cet article, le taux d'injection reste faible du fait de la teneur importante en cendres des fines, qui sont récupérées au sol. La FAO cite le cas d'un site sidérurgique australien à Wundowie qui a utilisé l'injection de fines de charbon de bois par le passé.

Les hauts fourneaux européens n'exploitent pas encore ce type de biomasse, mais certains auteurs l'envisagent (Helle H. et coll. 2009; Norgate T.E. et coll. 2009; Wing Ng K. et coll. 2010) ou étudient ce type d'injection activement (Babich A. et coll. 2010; Campos de Assis C. F. 2010; Machado J. G. M. S. et coll. 2010). Babich et coll. (2010) par exemple ont montré la faisabilité d'une injection de charbon de bois pulvérisé à la place d'un charbon fossile. Ce type d'injection aurait d'ailleurs plusieurs intérêts techniques. Leur étude a en effet montré que le comportement du charbon de bois lors de la combustion est comparable voire meilleur que celui du charbon fossile, qu'il soit injecté seul ou mélangé au charbon fossile. En effet, sa plus grande réactivité à O_2 et à CO_2 entraîne une combustion et une gazéification plus rapide. De plus, le degré de conversion, correspondant à la quantité de charbon brûlé dans la zone de combustion totale, est moins dépendant du ratio O/C (quantité O_2 dans l'air par rapport à la quantité de C dans le combustible) qu'avec du charbon fossile. Cependant un inconvénient est à noter : la réactivité du coke au CO_2 diminuerait en cas de contact avec des particules de charbon de bois imbrûlées.

Par ailleurs, le bois n'est pas la seule biomasse utilisable, il est en effet possible de carboniser d'autres types de biomasse comme des résidus agricoles ou des biomasses issues de cultures énergétiques, comme nous verrons dans les chapitres suivants.

II.5.2.3. Injection de biomasse torréfiée

La torréfaction est un procédé s'apparentant à une pyrolyse à basse température, entre 250 et $300 \text{ }^\circ\text{C}$, permettant de densifier le contenu énergétique de la biomasse, tout en limitant les pertes de matières. Chen et coll. (2011; 2012) ont étudié la combustion de biomasse torréfiée dans un four à chute, pour différents types de biomasses (bambou, palmier, enveloppe de riz, bagasse et amande) en vue d'une utilisation en haut fourneau. Cette étude a montré que la durée de combustion de la biomasse torréfiée était comparable voire meilleure que celle d'un charbon fossile à haute teneur en volatils, ce qui en fait un candidat potentiel pour une injection dans un haut fourneau. L'impact de ce type d'injection sur le fonctionnement du haut fourneau, sur sa température de flamme et sur le besoin en oxygène supplémentaire, n'a cependant pas été étudié à ce jour.

II.5.2.4. Injection de biomasse brute sèche

De la biomasse brute sèche pourrait également être injectée. Par exemple, Wing et coll. (2010) envisagent ce type d'injection avec de l'eucalyptus et du switchgrass. L'étude, basée sur un modèle mathématique du haut fourneau a montré que l'injection de biomasses brutes permettrait d'obtenir des températures de flamme élevées. En contrepartie, une grande quantité de biomasse devrait être injectée en raison d'une faible densité énergétique, typiquement de l'ordre de 18 MJ kg^{-1} de PCI (ECN 2012), résultant en un faible taux de substitution du coke, voisin de 0,2.

La biomasse brute pourrait par ailleurs être utilisée en co-combustion avec du charbon fossile. Chen et coll. (2009) ont ainsi étudié la possibilité d'injecter un mélange de charbon fossile et d'enveloppe de riz. Leur étude montre que pour une quantité dans le mélange inférieure à 50 %, la biomasse peut améliorer les performances de l'injection en favorisant l'apparition de réactions exothermiques et en inhibant certaines réactions endothermiques, sans pour autant augmenter la quantité d'imbrûlés produites. En revanche, la différence de densité entre la biomasse et le charbon fossile (environ 130 kg m^{-3} pour les enveloppes de riz, contre 850 kg m^{-3} pour le charbon fossile) est susceptible de poser problème lors de l'injection : le mélange pourrait ne pas être homogène, et sa répartition sur la circonférence du haut fourneau non uniforme.

En complément, on peut aussi mettre ce type d'injection en relation avec la co-combustion de biomasse et de charbon fossile pour la production d'électricité, qui est un sujet traité par un grand nombre d'auteurs, par exemple Sami et coll. (2001).

II.5.2.5. Injection de liquides issus de biomasse

Jusqu'au début de l'année 2010 des huiles de réduction, correspondent à la fraction liquide récupérée lors de l'étape de production de coke, étaient injectées dans les hauts fourneaux de SG PAM à Pont-à-Mousson. Il pourrait donc être envisagé d'utiliser le système d'injection pour l'injection d'huiles issues de biomasse.

Une ressource biomasse existante est la bio-huile, produite par pyrolyse rapide de biomasse. Le procédé de pyrolyse est dans ce cas réglé pour favoriser la formation de composés gazeux condensables, appelés goudrons ou bio-huiles⁹ selon leur utilisation. Par rapport aux huiles d'hydrocarbures, les bio-huiles se caractérisent par leur forte teneur en oxygène et en eau. Wing et coll. (2010) se sont intéressés à l'injection de cette biomasse en haut fourneau et ont utilisé un modèle mathématique du haut fourneau pour étudier sa faisabilité. Ce type d'injection permettrait d'obtenir une température de flamme élevée, mais serait peu intéressant d'un point de vue économique et environnemental. Du fait de la composition et du PCI de la bio-huile (Tableau 6), son injection en haut fourneau se traduirait, comme pour la biomasse brute, par un très faible taux de remplacement du coke (environ 0,14).

Tableau 6 : PCI et composition d'une bio-huile (Dynamotive 2012)

PCI	[MJ kg ⁻¹]	16
Carbone	[%]	43,21
Azote	[%]	0,14
Oxygène	[%]	48,8
Hydrogène	[%]	7,73

⁹ Afin de ne pas confondre bio-huiles et huiles végétales, dans la suite de ce manuscrit le terme bio-huile désignera exclusivement les huiles de pyrolyse.

Il est par ailleurs important de noter que le transport et le stockage de bio-huile peut poser des difficultés. Tout d'abord, les bio-huiles ne sont pas stables, leur qualité se dégradant au cours du temps. Par exemple, Diebold (2000) montre que la viscosité d'une bio-huile conservée à 35 °C peut doubler en l'espace de 90 jours, expliquant qu'une température de stockage inférieure à 20 °C doit être respectée afin de ralentir la cinétique d'augmentation de la viscosité. Par ailleurs, les bio-huiles contiennent une fraction importante d'acides (acide formique, acide acétique), synonyme d'un fort pouvoir corrosif rendant stockage et transport délicats. Pour la sidérurgie où les matières premières sont susceptibles d'être transportées sur de grandes distances et amenées à être stockées, il semble donc que la bio-huile soit un produit contraignant.

Une alternative à l'injection de bio-huile pourrait être l'injection de biocarburants. Ces derniers peuvent être de natures différentes selon le procédé de production employé : éthanol, éthyl-tertiobutyl-éther ou diester. Ce type de biomasse liquide présente un fort pouvoir calorifique (26 à 35 MJ kg⁻¹) et ses performances sont comparables aux carburants classiques (Basha S.A. et coll. 2009). Bien que l'injection de biocarburants en haut fourneau n'ait pas encore été étudiée, elle ne devrait pas poser de problème technique du fait des similitudes avec l'injection de fiouls lourds couramment pratiquée.

Les graisses animales peuvent également être envisagées (Ribbenhed M. et coll. 2007). Leur pouvoir calorifique est important (de l'ordre 39 MJ kg⁻¹ selon Gravalos et coll. (2008)) et Buchwalder et coll. (2003) ont montré que leur injection était réalisable. De la même manière, les huiles végétales, qui ont elles aussi un pouvoir calorifique élevé (39 MJ kg⁻¹ selon Gravalos et coll. (2008)), seraient une ressource possible.

II.5.2.6. Injection de gaz aux tuyères

L'injection de gaz au haut fourneau est une technique connue et déjà utilisée dans certains hauts fourneaux. Par le passé, SG PAM a testé l'injection de gaz naturel lorsque son coût était plus faible. On peut noter que Babich et coll. (2002) se sont intéressés plus généralement à l'injection de gaz réducteurs dans le haut fourneau. Dans leurs travaux, les gaz étaient issus de gazéification de charbon fossile, mais le principe pourrait être appliqué à la biomasse. Dans cette optique, il est possible de considérer des gaz issus de biomasse : le biogaz et le syngaz. Ce type d'injection aurait l'avantage de réduire la pollution du haut fourneau en minéraux indésirables – n'y ajoutant pas de cendres.

Le biogaz est produit en dégradant biologiquement de la biomasse humide non ligneuse (résidus agricoles, boues..) en absence d'oxygène afin d'obtenir un gaz contenant entre 50 et 70 % de CH₄, et du CO₂ pour le reste. Air Liquide a étudié l'utilisation de biogaz en haut fourneau et a mis en évidence une diminution possible de la consommation de coke pouvant atteindre jusqu'à 10 % (ENSAIA 2010).

Le syngaz est quant à lui produit par gazéification de biomasse à haute température. Composé essentiellement de CO et H₂, le syngaz est un gaz fortement réducteur. Cependant aucun travail ne s'est penché sur l'intérêt du syngaz pour application dans le haut fourneau. Le projet ULCOS, par exemple, orientait plutôt l'utilisation de syngaz vers les procédés de réduction directe, que vers l'utilisation en haut fourneau.

II.5.2.7. Conclusion

Une grande variété de biomasses de natures différentes est susceptible d'être injectée aux tuyères d'un haut fourneau. Le taux de remplacement de l'injection dépend cependant

fortement du pouvoir calorifique, de la teneur en matières volatiles et de l'humidité de la biomasse. Pour l'injection de solides, le cas de fines de charbon de bois, déjà utilisées dans certains hauts fourneaux brésiliens, aurait un taux de remplacement de 0,8 selon Wing et coll. (2010). Le taux de remplacement pour des fines de biomasse torréfiée, dont le pouvoir calorifique est plus faible, serait de l'ordre de 0,5. Enfin pour des fines de biomasse brute séchée, on n'atteindrait qu'environ 0,2 tonne de coke remplacée par tonne de biomasse injectée. Concernant les biomasses liquides, encore une fois le taux de remplacement serait dépendant de la teneur en eau et du pouvoir calorifique. Des biomasses liquides à fort contenu énergétique, comme les bio-carburants, huiles végétales ou graisses animales pourraient avoir un taux de remplacement proche ou dépassant l'unité. Les liquides moins énergétiques, comme les bio-huiles, liqueurs noires ou boues quelconques seraient moins intéressants, de grandes quantités devraient être injectées pour de faibles quantités de coke substitué (3 à 7 fois plus de biomasse injectée que de coke substitué). Enfin pour les gaz, seul le biogaz a été considéré, et selon sa qualité le taux de remplacement pourrait varier de 0,5 à 0,8, entre un gaz à faible teneur en méthane et un biogaz proche du gaz naturel.

Quelle que soit la nature de la biomasse injectée, l'injection aux tuyères est cependant limitée en quantité. En considérant une charge minimale de coke solide de 300 kg par tonne de fonte, valeur minimale atteinte dans la pratique (Babich A. et coll. 2002), cela correspondrait à une substitution de 36 % du coke, soit un potentiel maximal de réduction des émissions de GES de 27,5 %. Cependant, plusieurs auteurs (Mathieson J.G. et coll. 2011; Wing Ng K. et coll. 2012) estiment que seulement 25 % du coke pouvait être substitué afin de conserver la productivité et la qualité du produit final, ce qui correspondrait à un potentiel maximal de réduction des émissions de GES de 19,1 %.

II.6. Conclusion sur l'analyse de l'existant

Nous avons vu dans cette partie les différentes voies envisageables pour l'utilisation de biomasse dans les principaux procédés de la filière fonte. Les solutions sont variées et peuvent aussi bien s'appliquer au procédé principal, le haut fourneau, qu'aux procédés amonts servant à préparer les charges avant leur introduction dans le haut fourneau.

Le taux de remplacement des ressources fossiles par la biomasse dépend de plusieurs facteurs : la technique de substitution, le procédé où est utilisée la biomasse et les propriétés physico-chimiques de la biomasse et de la ressource substituée. Le Tableau 7 liste les différentes solutions techniques mentionnées dans ce chapitre, leur taux de remplacement et le potentiel maximal de réduction des émissions de GES associées.

La dernière colonne du tableau indique l'efficacité spécifique de chaque type de substitution. Cette valeur correspond à la quantité d'émissions de GES évitée par tonne de produit remplacé dans chaque cas. Le cas le plus intéressant est la substitution au haut fourneau puisqu'elle permet d'éviter deux émissions : une émission directe due à la combustion du carbone du coke dans le haut fourneau ($2,82 \text{ t}_{\text{CO}_2\text{eq}} \text{ t}^{-1} \text{ coke}$)¹⁰ et une émission indirecte due à la production du coke ($0,45 \text{ t}_{\text{CO}_2\text{eq}} \text{ t}^{-1} \text{ coke}$). Dans le cas d'une substitution à la cokerie, les émissions évitées dépendent de la fraction de biomasse utilisée pour la fabrication du bio-coke. Ici, en considérant que le bio-coke est produit à partir de 3 % de biomasse, on s'attend à réduire les émissions de $0,1 \text{ t}_{\text{CO}_2\text{eq}} \text{ t}^{-1} \text{ coke}$ remplacé par du bio-coke. Enfin à l'agglomération, la

¹⁰ Le coke contenant environ 90 % de carbone, on devrait avoir $3,2 \text{ t}_{\text{CO}_2\text{eq}} \text{ t}^{-1} \text{ coke}$, cependant une partie du carbone introduit dans le haut fourneau est stocké dans la fonte, les $0,4 \text{ t}_{\text{CO}_2\text{eq}} \text{ t}^{-1} \text{ coke}$ manquant correspondent à cette fraction de carbone dissous.

substitution permet d'éviter l'émission de GES due à la combustion du carbone de l'anthracite substitué, soit 3,16 t_{CO2eq} t⁻¹ anthracite.

Tableau 7 : Résumé des solutions de substitution des ressources fossiles par de la biomasse pour la production de fonte

	Taux de remplacement ¹ [t t ⁻¹ produit biomasse]	Potentiel maximal de réduction des GES ² [%]	Efficacité spécifique de la substitution [t _{CO2eq} évité t ⁻¹ combustible]
Haut fourneau			
Blocs de charbon de bois au gueulard	0,67	2,3	
Briquettes de charbon de bois au gueulard	0,6-0,67	5,4	
Fines de charbon de bois injectées aux tuyères	0,8	27,5	
Fines de biomasse brute ou torréfiée injectées aux tuyères	0,19-0,5	27,5	3,27
Bio-carbutants, huiles végétales ou graisses animales injectées aux tuyères	~1	27,5	
Bio-huiles injectée aux tuyères	0,14	27,5	
Biogaz injecté aux tuyères	0,5-0,8	7,7	
Cokerie			
Bio-coke à base de charbon fossile et de charbon de bois	0,6-1	2,3	~ 0,1
Agglomération			
Charbon de bois en substitut à l'anthracite	0,67-0,73	15	3,16

1 et 2 : définis au paragraphe II.2

Nous avons montré qu'un grand nombre de solutions est donc envisageable d'un point de vue technique. Afin de définir les types de biomasse utilisables pour une ou plusieurs de ces solutions, il est maintenant nécessaire d'identifier les différents types de biomasse existants et d'en déterminer la disponibilité locale ou nationale. Enfin, comme nous l'avons vu précédemment, la biomasse étant généralement synonyme d'injection à faible taux de remplacement, il nous faut étudier les différents procédés de prétraitement de la biomasse, brièvement évoqués dans ce chapitre. Ceux-ci nous permettraient en effet d'obtenir des produits biomasses plus riches énergétiquement ou plus facilement injectables.

III. La ressource biomasse

III.1. Définition de la biomasse

De manière générale, on peut considérer la biomasse comme étant l'ensemble de la matière organique végétale ou animale. La réglementation européenne la définit plus précisément comme « la fraction biodégradable des produits, déchets et résidus provenant de l'agriculture, de la sylviculture et des industries connexes, ainsi que la fraction biodégradable des déchets industriels et municipaux ». Afin de les différencier, le ministère de l'écologie, du développement durable, des transports et du logement (2010) classait les ressources en biomasse en cinq catégories, selon leurs origines :

- **le bois** : il peut se présenter sous forme originale (troncs, bûches) ou sous forme divisés (granulés et plaquettes forestières) ;
- **les sous-produits du bois** : correspondant à l'ensemble des déchets de l'exploitation forestière (branchage, écorces, sciures), des scieries (sciures, plaquettes), des industries de transformation du bois (menuiseries, fabricants de meubles, parquets), des fabricants de panneaux ou d'emballages ;
- **les sous-produits de l'industrie** : par exemple les boues issues de la pâte à papier (liqueur noire) et les déchets des industries agroalimentaires ;
- **les produits issus de l'agriculture traditionnelle** : les céréales et oléagineux, résidus tels que la paille, la bagasse (résidus ligneux de la canne à sucre) et les nouvelles plantations à vocation énergétique telles que les taillis à courte rotation (saules, miscanthus) ;
- **les déchets organiques** tels que les déchets urbains comprenant les boues d'épuration, les ordures ménagères, et les déchets en provenance de l'agriculture tels que les effluents agricoles.

On peut aussi classer les biomasses existantes selon le type d'exploitation dont elles sont issues : exploitations dédiées ou exploitations de résidus. Le Tableau 8 regroupe les biomasses selon ce critère. Dans le cadre de la réglementation européenne des quotas de CO₂, une liste détaillée des matières considérées comme biomasses a été établie (Commission Européenne 2008), ce document se trouve en annexe B.

Tableau 8 : Classement des biomasses selon leur type d'exploitation

	Types d'exploitation	Produits types
Exploitations dédiées	Forêts	Tous types de feuillus et résineux
	Culture énergétique Taillis à moyen ou court temps de rotation	Miscanthus, panic érigé, luzerne Saule, peuplier, eucalyptus
Résidus	Forestiers	Branches, feuilles, racines après abattage de bois d'œuvre
	De l'industrie du bois	Dosses, délignures, sciures, chutes
	Agricoles Domestiques	Paille, bagasse, cannes de maïs Déchets ménagers

III.2. Composition et caractéristiques de la biomasse végétale

De tous les types de biomasse, la biomasse végétale est la plus répandue sur terre. Il s'agit d'un matériau composite à base de polymères organiques. On peut la séparer en plusieurs catégories selon sa composition : la biomasse lignocellulosique (bois, herbe, paille, etc.), la biomasse à cellulose (céréales) et la biomasse oléagineuse (colza, tournesol, etc.) (Ngô C. et coll. 2011). Notre étude s'inscrivant dans une optique durable, l'utilisation de biomasses alimentaires n'est pas judicieuse. En effet, le principe de développement durable suggère l'adoption d'une notion de hiérarchie de l'usage de la biomasse plaçant en premier lieu l'alimentation, puis les usages industriels (matériaux) et enfin l'utilisation énergétique (Alexandre S. et coll. 2012). Les biomasses appartenant aux deux premières catégories décrites précédemment ne seront donc pas considérées par la suite de l'étude.

La biomasse lignocellulosique se compose principalement de composés chimiques de grande masse molaire : des polymères et oligomères glucidiques (la cellulose et l'hémicellulose) et la lignine, représentant respectivement 65 à 75 % et 18 à 35 % de la biomasse. La cellulose est un glucide formé à partir d'une chaîne de glucoses, il est responsable de la résistance des fibres végétales. L'hémicellulose est un mélange de différents monomères des glucides (glucose, mannose, galactose, xylose, arabinose). Enfin la lignine est une résine amorphe sans structure « fixe » qui joue le rôle de liant entre les fibres cellulosiques. Les Figures 7, 8 et 9 donnent des représentations typiques de ces trois composés chimiques. Leurs teneurs respectives diffèrent selon le type de biomasse (cf. Tableau 9 pour quelques exemples (Godin B. et coll. 2010)). Le bois par exemple, plus riche en cellulose et lignine sera plus résistant. En plus de ces trois composés, la biomasse peut contenir des minéraux inorganiques (cendres) et des composés extractibles (tanins, huiles et gomme) entre 5 et 30 % (Deglise X. et coll. 2004).

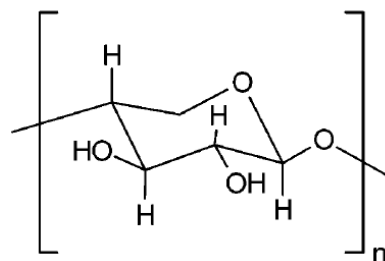


Figure 7 : Structure de la cellulose

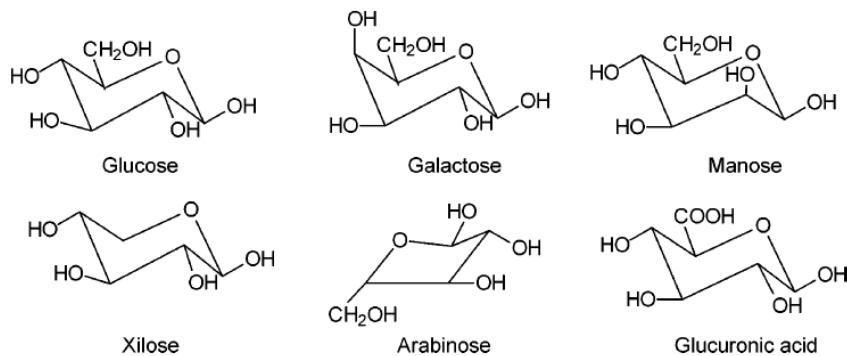


Figure 8 : Principaux composants de l'hémicellulose

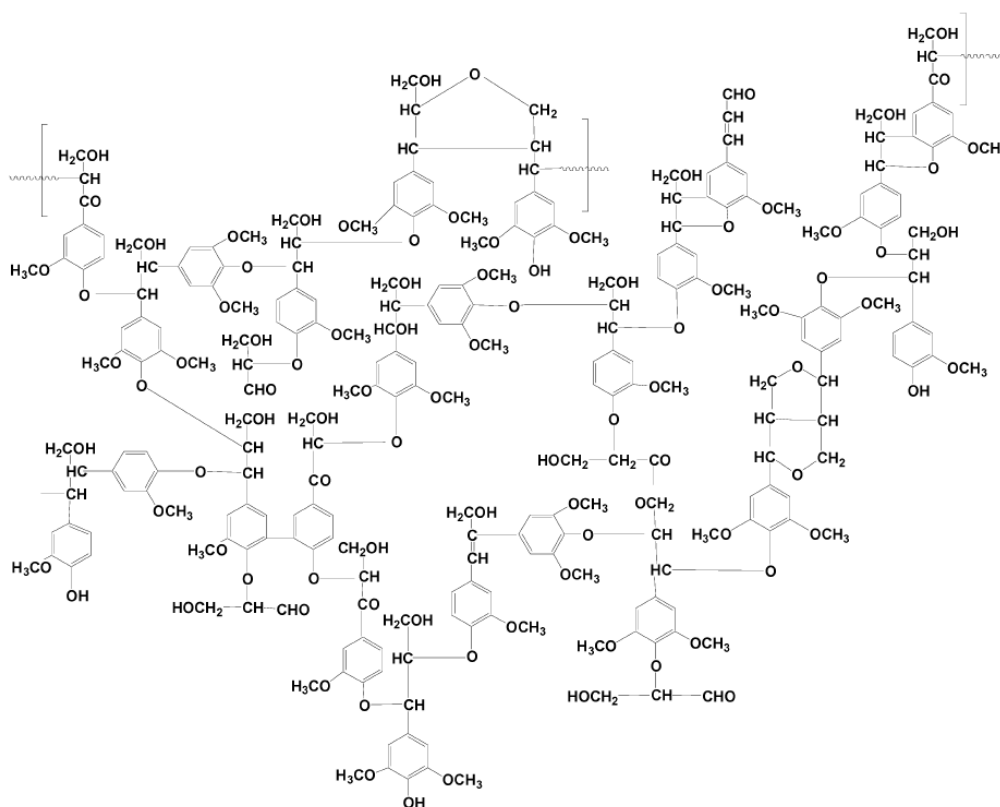


Figure 9 : Exemple d'une partie de structure de lignine de boulot

Tableau 9 : Teneur lignocellulosiques typiques de différentes natures de biomasses (Godin B. et coll. 2010)
Teneur Lignocellulosique* [%]

	Hémicellulose	Cellulose	Lignine
Chanvre	60,3	16,8	6,8
Paille de blé	36,6	29,8	16,9
Hêtre	45,4	27,9	23,1

* Les valeurs correspondent aux valeurs moyennées citées par (Godin B. et coll. 2010)

Outre sa teneur lignocellulosique, comme toute matière organique, la biomasse peut aussi être caractérisée par son analyse immédiate, à savoir sa teneur en carbone fixe, en matières volatiles et en cendres, ou son analyse élémentaire, sa teneur en carbone, hydrogène, oxygène et azote. Les Tableaux 10 et 11 en donnent quelques exemples. On peut noter que pour un type de biomasse donné, par exemple le bois, qu'il s'agisse de résineux ou de feuillus, les analyses élémentaires ou immédiates sont voisines. De même pour les végétaux à croissance rapide comme les herbes, on retrouve des taux de cendres similaires, beaucoup plus élevés que dans le bois.

Enfin d'un point de vue énergétique, il apparait que la plupart des biomasses végétales sèches ont des PCI autour de $18 \text{ MJ kg}^{-1}_{\text{sec}}$ (Tableau 10). Les PCI ou PCS (Pouvoir Calorifique Supérieur) sont des grandeurs qui peuvent être mesurées en utilisant une bombe calorimétrique, mais il est possible de les évaluer pour les biomasses végétales sèches dont les compositions sont connues en utilisant des formules empiriques. Un exemple d'évaluation du PCS à partir de l'analyse élémentaire est donné par la formule (2) de Channiwala et coll. (2002). Le PCI (sec) peut ensuite être déterminé par la relation 3. Naturellement, l'humidité influe significativement

sur le pouvoir calorifique d'une biomasse brute (humide)¹¹. On peut déterminer le PCI d'une biomasse humide à partir de son PCI sur sec en utilisant la formule 4.

$$PCS_{sec} = 0,3491\%C + 1,1783\%H + 0,1005\%S - 0,1034\%O - 0,0151\%N - 0,0211\%Cend. \quad \text{MJ kg}^{-1} \quad 2$$

$$PCI_{sec} = PCS_{sec} - L_v \cdot \%H \cdot \frac{M_{H_2O}}{M_H} \quad \text{MJ kg}^{-1} \quad 3$$

avec

$\%C$ = titre massique en carbone

$\%H$ = titre massique en hydrogène

$\%S$ = titre massique en soufre

$\%O$ = titre massique en oxygène

$\%N$ = titre massique en azote

$\%Cend.$ = titre massique en cendres

$$PCI_{humide} = PCI_{sec}(1 - H) - L_v \cdot H \quad \text{MJ kg}^{-1} \quad 4$$

avec

PCI_{sec} = PCI de la biomasse anhydre

H = le taux d'humidité en base humide

L_v = chaleur latente d'évaporation de l'eau (2,258 MJ kg⁻¹ à 25 °C)

Ainsi, à titre d'exemple, le PCI passe de 18 MJ kg⁻¹_{sec} à 9,9 MJ kg⁻¹_{hum} avec 40 % d'humidité.

Tableau 10 : Analyse immédiate et PCI de plusieurs biomasses de natures différentes (Erol M. et coll. 2010; Vassilev S.V. et coll. 2010; ECN 2012)

	C fixe [%]	Matières volatiles [%]	Cendres [%]	PCI [MJ kg ⁻¹ _{sec}]
Chêne	12,4	87,1	0,5	17,7
Peuplier	12,5	84,8	2,7	17,7
Pin	15,2	84,5	0,3	18,9
Bouleau	12,5	87,1	0,4	17,9
Hêtre	14,5	84,9	0,6	18,0
Herbe	19,1	75,2	5,7	18,7
Paille de blé	17,1	74,3	8,6	18,5

Tableau 11 : Analyse élémentaire de plusieurs biomasses de natures différentes

	C [%]	H [%]	N [%]	O [%]
Chêne	49,0	8,7	0,5	38,6
Peuplier	44,0	5,5	1,0	47,7
Pin	49,7	6,2	0,1	43,7
Hêtre	49,4	6,2	0,3	43,6
Herbe	46,4	5,1	1,3	37,6
Paille de blé	46,0	5,5	1,7	41,4

¹¹ L'humidité d'un solide peut être exprimée de deux manières : l'humidité sur base humide (masse d'eau/masse du solide humide), ou sur base sèche (masse d'eau/masse de solide anhydre). Dans la suite du chapitre, lorsque cela ne sera pas spécifié, il s'agira d'humidité base humide.

III.3. Transformation de la biomasse

Comparée aux combustibles classiques du haut fourneau, la biomasse brute, même séchée, a des caractéristiques chimiques et énergétiques relativement mauvaises, son PCI et sa teneur en carbone étant beaucoup plus faibles que celles du coke et du charbon (Tableau 12). Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, ces caractéristiques résulteraient en de faibles taux de remplacement et pourraient avoir des impacts sur la marche du procédé.

Tableau 12 : Comparaison des compositions et du pouvoir calorifique de biomasses brutes, de coke et de charbon fossile pour injection en haut fourneau (SG PAM 2009-2011; ECN 2012)

	Unités	Résidus forestiers	Paille sèche	Coke	Charbon
Carbone	[% sec]	50,3	45,5	88,0	84 ,8
Hydrogène	[% sec]	4,6	6,12	0,3	4,26
Azote	[% sec]	1,03	0,52	n.c.	2,2
Oxygène	[% sec]	40,0	40,0	1,5	4,9
Matières volatiles	[% sec]	82,4	n.c.	2,0	13,0
Cendres	[% sec]	4,0	7,8	10,0	5,6
Humidité	[% humide]	48,9	10,2	6,0	1,15
PCI sec	[MJ kg ⁻¹]	19,2	18,0	32,0	32,8
PCI humide	[MJ kg ⁻¹]	8,6	15,9	30,0	32,4

Afin de faciliter l'utilisation de biomasse, il est possible de transformer la biomasse par un procédé de prétraitement. Celui-ci a généralement pour but d'homogénéiser la biomasse qui peut être de nature diverse, de la concentrer, en augmentant sa densité énergétique, et de la rendre plus facilement injectable dans un réacteur (Helle H. et coll. 2009). Plusieurs types de procédés permettent de remplir cette fonction : les procédés thermiques et les procédés biologiques.

Le plus simple des procédés thermiques est le séchage, pendant lequel la biomasse n'est chauffée qu'à de faibles températures (inférieures à 200 °C). Les autres procédés thermiques reposent sur une pyrolyse de la biomasse, c'est-à-dire un chauffage dans un réacteur en absence d'oxygène, qui a pour effet de décomposer la biomasse en trois phases : solide, liquide et gazeuse. Trois principaux paramètres de pyrolyse sont ajustables, la taille de la biomasse, la température et le temps de séjour de la biomasse dans le réacteur. En jouant sur ces paramètres, il est possible de favoriser la production d'une ou deux de ces phases. Les procédés de carbonisation, de torréfaction, de pyrolyse rapide pour la production de bio-huile et la gazéification font partie de ces procédés thermiques.

Les procédés biologiques quant à eux réalisent la décomposition de la biomasse par l'action de micro-organismes. C'est le cas de la méthanisation et de la filière de production de bio-carburant de première génération.

Nous allons passer en revue ces différents procédés de prétraitement en détaillant leurs principales caractéristiques, notamment celles (rendement, produits et coproduits, coût, impact sur l'environnement) qui intéressent le plus directement la suite de notre étude.

III.3.1. Séchage de la biomasse

Dans notre cas, l'intérêt du séchage serait de réduire l'humidité présente dans la biomasse afin d'en augmenter le pouvoir énergétique ou en prévision d'une autre opération de traitement (pyrolyse). Mais le séchage du bois peut avoir d'autres fonctions. Par exemple, Månsson (2008), explique qu'il est nécessaire d'abaisser l'humidité du bois à moins de 20 % pour pouvoir le stocker sans risque de pourrissement.

Deux principaux types de séchage de biomasse sont possibles : le séchage naturel et le séchage forcé. Dans le premier cas, la biomasse est simplement laissée à l'air libre, sur le lieu de la découpe ou dans un lieu de stockage. Nous n'étudierons pas ce cas ici, car il s'agit d'un processus long et variable. Pour du bois par exemple, selon les conditions climatiques et la nature du bois, il faut compter entre 20 jours et une année pour atteindre une humidité de 20 % à partir d'un bois à 40 % d'humidité (US DoA 1999). Le séchage forcé est une opération qui consiste à fournir de l'énergie thermique pour vaporiser l'eau d'humidité de la biomasse et ce processus peut durer de quelques heures à 24 h.

III.3.1.1. Principe du séchage forcé de la biomasse

Pour sécher un solide, il faut une source de chaleur et un moyen d'évacuation de l'eau évaporée du solide. Deux grands types de technologies existent, les sècheurs dits directs et les sècheurs indirects.

Dans les sècheurs directs, la biomasse est au contact direct d'un fluide chaud, généralement de l'air chaud ou de la vapeur d'eau surchauffée, l'échange de chaleur se fait alors par convection. Plusieurs technologies sont disponibles. Le sécheur à tambour rotatif (Figure 10) est constitué d'un réacteur cylindrique horizontal ou incliné, tournant sur lui-même, dont la surface intérieure est dotée d'équipements permettant le brassage de la biomasse et sa progression au sein du réacteur. Une circulation d'air chaud dans le tambour à co-courant ou à contre-courant est provoquée afin de sécher la biomasse. Ce système est utilisé pour le séchage de biomasse divisée comme la sciure ou la plaquette forestière (de granulométrie inférieure à 1 mm et jusqu'à 30 mm), ou pour les boues. Un second système de sécheur direct est le sécheur flash. Il s'agit d'un tube vertical dans lequel la biomasse finement divisée est maintenue en suspension dans l'air chaud. Enfin un dernier système de séchage direct est le convoyeur à bande (Figure 11), qui consiste à faire circuler la biomasse sur une grille métallique. L'air chaud quant à lui peut circuler aussi bien à co- ou à contre-courant qu'à courant croisé (à travers la grille).

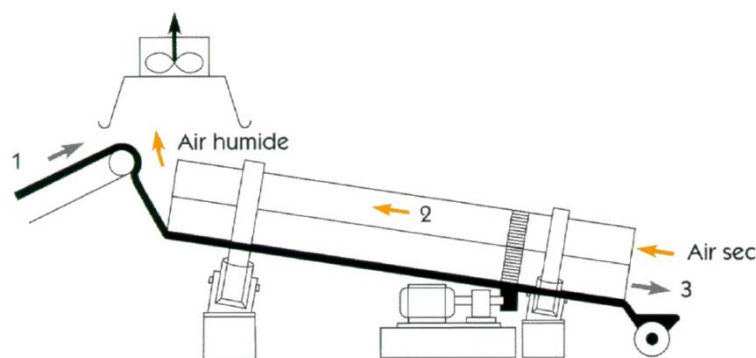


Figure 10 : Sécheur à tambour rotatif

Les sécheurs indirects consistent à chauffer la biomasse par l'intermédiaire d'une paroi, elle-même chauffée par une source de chaleur, le transfert de chaleur s'effectue alors par conduction ou rayonnement. C'est le cas par exemple de sécheurs à vis dans lesquels la biomasse est chauffée par contact avec la vis, elle-même chauffée par un fluide caloporteur dans son rotor ou bien par effet Joule. On peut aussi citer les sécheurs de type multi-étagé vertical qui consistent en une série de plateaux circulaires placés les uns au-dessous des autres. Des bras racleurs permettent aux particules de biomasse de s'étaler sur les plateaux et de passer de l'un à l'autre par des ouvertures situées sur ces derniers.

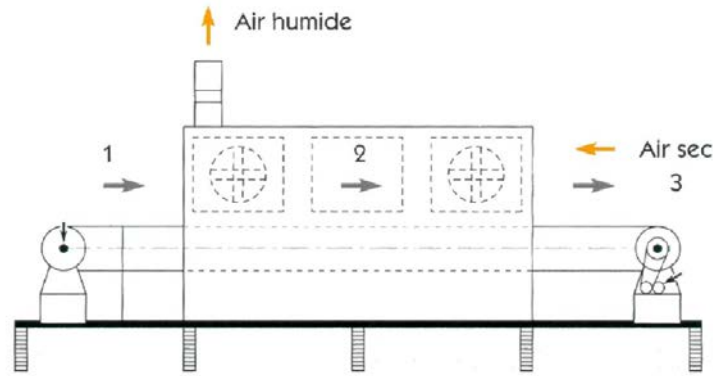


Figure 11 : Sécheur à bande en fonctionnement à contre-courant

Les sécheurs à tambour et les convoyeurs à bande étant les procédés les plus utilisés pour le séchage de biomasse, nous ne nous intéresserons dans la suite qu'au séchage direct. Celui-ci se déroule généralement en deux phases. Elles sont observables sur les courbes de séchage (Figure 12), qui donnent l'évolution de la vitesse de séchage (réduite) en fonction de l'humidité (réduite) de la biomasse.

La première phase est assez rapide, la biomasse commence par s'échauffer, puis la température reste constante jusqu'à ce que l'eau de surface soit intégralement évaporée, la température (dite température humide) et la vitesse de séchage pendant cette phase résultent d'un équilibre entre l'apport de chaleur extérieure, c'est-à-dire la différence de température entre la température humide et la température extérieure, et le transfert convectif externe de la vapeur dans le cas d'un chauffage par convection. Ce processus correspond aux plateaux à vitesse quasi-constante sur la Figure 12.

Lors de la seconde phase, le transport interne de l'eau au sein de la biomasse devient le processus limitant du séchage. La cinétique est alors contrôlée par le transport de l'eau liquide par capillarité et/ou par la diffusion de l'eau gazeuse dans les pores. La vitesse de séchage durant cette phase décroît avec l'humidité de la biomasse. En fin de séchage, la biomasse peut garder une faible fraction d'humidité résiduelle.

Il faut toutefois noter que la première phase n'est pas toujours observable lors du séchage de biomasse. En effet, il est rare que l'humidité de la biomasse soit suffisamment élevée pour que la première phase ait lieu, excepté lors du séchage de fruits ou de légumes.

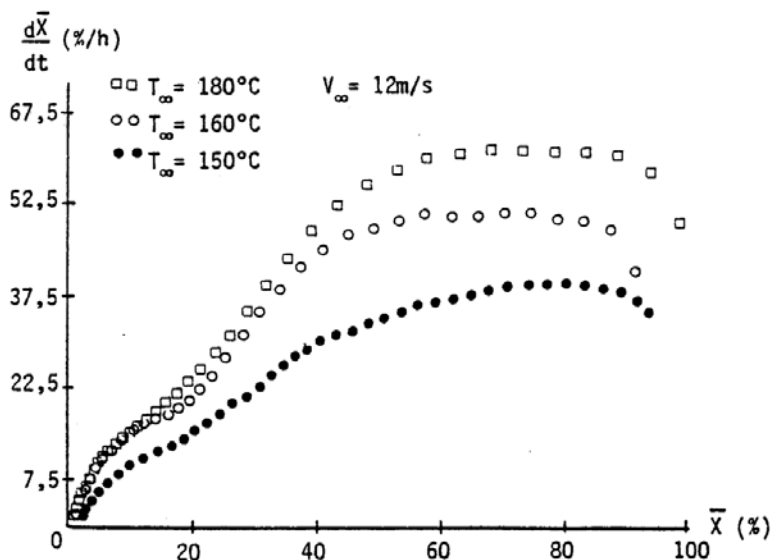


Figure 12 : courbe caractéristique de séchage de bois de hêtre (en vapeur surchauffée) (EdF 1985)

III.3.1.2. Besoin énergétique pour le séchage de la biomasse

Comme nous l'avons vu, pour sécher la biomasse, il est nécessaire d'augmenter la température de la biomasse jusqu'à sa température humide, puis d'évaporer l'eau. Cette quantité de chaleur peut être facilement calculée à partir de la capacité thermique de la biomasse et de la chaleur latente de vaporisation de l'eau. Par exemple, il faut environ 0,9 MJ pour sécher 1 kg de biomasse initialement à 40 % d'humidité et obtenir une biomasse à 10 % d'humidité.

III.3.1.3. Emissions associées au séchage de la biomasse

Le procédé de séchage peut être source de deux types d'émissions polluantes : des émissions indirectes liées à la production de chaleur lorsqu'un gaz est brûlé et des émissions de composés émis par la biomasse. En effet, de nombreuses études (Otwell L.P. et coll. 2000; McDonald A. G. et coll. 2002) ont montré que, lors du séchage, les bois commencent à subir une dégradation thermique à partir d'une température de chauffe de 130 °C. Les produits de cette dégradation sont des COV (Composés Organiques Volatils), à savoir du méthanol, formaldéhyde, acétaldéhyde, pentanal, hexanal, acide formique, acide acétique, alcools et furfural. Le Tableau 13 liste ces différentes émissions et les quantités associées.

Månsson (2008) a obtenu une corrélation (formule 5) permettant d'évaluer la quantité de COV produits par le séchage de sciure de bois, en prenant en compte les paramètres de séchage, à savoir la température de séchage, l'humidité finale du bois et la saison de coupe de l'arbre.

$$\log(COV) = 3,052 - 0,0113 \cdot T - 0,0661 \cdot H + 0,152 \cdot M - 0,000285 \cdot T \cdot H + 0,0000603 \cdot T^2 + 0,00242 \cdot H^2 \quad 5$$

avec

T = température du gaz ou du médium séchant, en °C,

H = teneur en humidité finale, en %,

M = saison de coupe ($M = -1$ en juin, $M = 1$ en décembre),

COV = quantité de COV libérés, en $\text{mg}_C \text{kg}_{\text{sec}}^{-1}$.

Tableau 13 : Emissions de COV lors du séchage, en mg kg⁻¹ de bois d'après (McDonald A. G. et coll. 2002)

Composés	Quantité émise
Méthanol	14,3
Ethanol	37,45
Acide formique	3,85
Acide acétique	6,55
formaldéhyde	0,5
acétaldéhyde	4,33
acétone	2,45
Autres	1,65

III.3.2. Procédé de carbonisation

La carbonisation est le plus ancien procédé de transformation thermique de la biomasse et il présente plusieurs intérêts. D'une part, on augmente la densité énergétique de la biomasse : à partir d'une biomasse sèche à 18 MJ kg⁻¹ de PCI, on peut produire un charbon de biomasse, ou biochar¹², de PCI supérieur à 30 MJ kg⁻¹. Rappelons qu'un PCI élevé est une propriété importante des combustibles pour les applications industrielles fonctionnant à haute température, telles que le haut fourneau. D'autre part, la carbonisation réduit la teneur en matières volatiles, ce qui permet de réduire la production de fumées et de suies lors de l'utilisation du biochar. Cela offre par exemple la possibilité de gazéifier le biochar afin de produire des gaz sans goudrons, plus propres et utilisables en turbine ou dans des moteurs nécessitant un haut degré de pureté (Pelaez-Samaniego M.R. et coll. 2008).

III.3.2.1. Principe de fonctionnement

Le procédé de carbonisation, une pyrolyse lente, consiste à chauffer la biomasse, le plus souvent du bois ou des résidus de bois, à pression et température définies et contrôlées et en absence d'oxygène pour produire un charbon libéré d'une partie des matières volatiles contenues dans la biomasse brute. Il en résulte la formation de solide (le biochar) et de gaz dont une partie est condensable.

Le processus de carbonisation peut être décomposé en 4 phases (FAO 1983; Campos Ferreira O. et coll. 2000; Deglise X. et coll. 2004; Pelaez-Samaniego M.R. et coll. 2008), par exemple pour la carbonisation du bois :

- Séchage, de 100 à 120 °C. L'eau absorbée ou chimiquement liée à la biomasse est vaporisée.
- Pré-carbonisation : de 120 °C à 250-270 °C. Phase endothermique de décomposition lente du bois, dégradation des hémicelluloses, puis de la cellulose, en passant par un intermédiaire instable, le levoglucosane, qui produit des liquides pyroligneux (acide acétique, méthanol, acide formique) et une petite quantité de gaz non condensables (CO, CO₂).
- Carbonisation : à partir de 250-270 °C. Décomposition spontanée du bois, réaction rapide et exothermique. Une partie de la biomasse est carbonisée et la majeure partie des goudrons et acides pyroligneux sont libérés (produits condensables aromatiques, comme phénols, crésols, vanilline attribués à la dégradation de la lignine) et des gaz

¹² Dans la littérature le biochar fait parfois spécifiquement référence au charbon de biomasse utilisé pour l'amendement des sols (nous en parlerons brièvement dans au paragraphe II.3.4.5). Pour faciliter la lecture, le terme biochar sera utilisé dans la suite du manuscrit pour désigner le « charbon de biomasse » en général.

combustibles caractéristiques de la décomposition des produits primaires apparaissent (H_2 , CO , CH_4).

- Carbonisation finale : à partir de 300-320 °C. Formation du charbon de bois dont l'origine est principalement la lignine. S'il n'y a pas de nouvel apport de chaleur extérieure le processus s'arrête de lui-même et la température atteint un maximum à environ 400 °C. Si le chauffage est maintenu, une température de 500 °C donnera par exemple une teneur en carbone et en volatils de respectivement 85 % et 10 %. Différents degrés de carbonisation sont donc envisageables, d'une carbonisation faible à une température proche de 400 °C avec un temps de carbonisation de l'ordre de quelques heures, à une carbonisation poussée à température supérieure ou égale à 500 °C pendant des durées de plusieurs heures à plusieurs jours.

L'évolution de la composition d'une biomasse au cours du processus de pyrolyse peut être visualisée sur un diagramme de Van Krevelen. Ceuli-ci représente le rapport atomique H/C en fonction de celui O/C (Figure 13, l'évolution de la composition est représentée par la flèche rouge). Au début de la pyrolyse, à basse température, on assiste à une réduction importante de la teneur en oxygène (évaporation de l'eau, formation de CO , CO_2 et liquide pyrolygneux), puis avec l'augmentation de la température, on assiste à une libération d'hydrogène de plus en plus importante (dans les goudrons d'une part, mais aussi sous forme de H_2 , CH_4), pour finalement obtenir un produit avec des teneurs élevées en carbone et faibles en hydrogène et oxygène. Ainsi, une biomasse qui aura été pyrolysée à plus haute température, et pendant un long temps de séjour, aura un taux de matières volatiles faible et inversement, un taux de carbone fixe élevé. De cette manière on peut distinguer un biochar produit à haute température (500 °C), d'un biochar produit à 400 °C en connaissant son taux de carbone fixe.

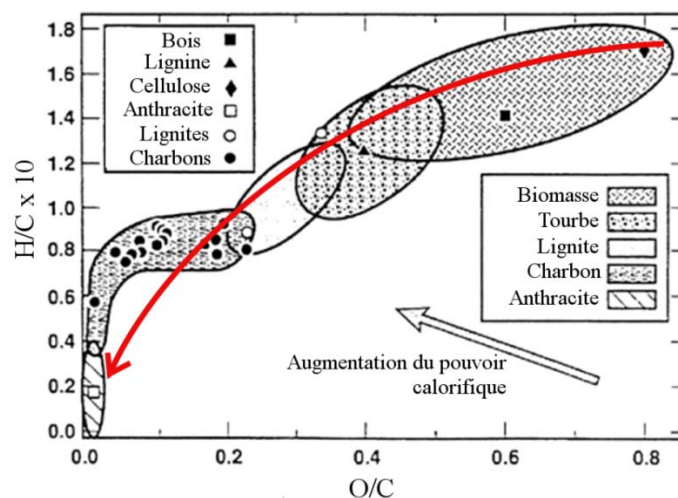


Figure 13 : Diagramme de Van Krevelen pour différents types de combustibles, l'évolution de la composition d'une biomasse au cours d'une pyrolyse est représentée par la flèche rouge.

Ces quatre phases thermiques sont dépendantes de la vitesse et de la durée de chauffe de la carbonisation. De ce fait, la nature et la granulométrie de la biomasse utilisée, le type de four et les conditions de chauffage appliquées auront une incidence sur le rendement final en matières solides (Grønli M. 2002). De manière générale, de grosses particules de biomasse et un chauffage lent favorisent la formation de produit solide en allongeant le temps de contact entre le charbon et les matières volatiles créées. Ces dernières n'étant pas stables à haute température en présence de matières solides, elles s'adsorbent sur la surface des solides et se décomposent en formant du carbone sous forme graphite, de l'eau, du CO_2 et du CH_4 (Antal M.J. et coll.

1996; Grønli M. 2002). La Figure 14 montre un exemple de ce type de résidus carbonés observables dans la structure poreuse d'un charbon de bois.

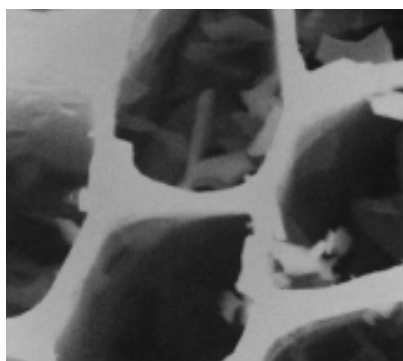


Figure 14 : Détail des pores d'un charbon de bois montrant des dépôts de carbone graphitique sur leur surface (Miura M. et coll. 2004).

Différentes méthodes de chauffage, ou dispositifs techniques traditionnels ou industriels existent pour réaliser la carbonisation. Selon la méthode utilisée, la carbonisation peut permettre d'accumuler dans le biochar entre 30 et 60 % de l'énergie chimique (PCI) contenue dans la biomasse initiale, le reste étant libéré sous forme d'énergie chimique et sensible dans les sous-produits (gaz ou liquide). Suivant le dispositif de carbonisation, ces sous-produits seront valorisés en interne ou non.

La littérature (Grønli M. 2002; Pelaez-Samaniegoa M.R. et coll. 2008) dénombre trois principaux types de chauffage utilisés pour la carbonisation (Figure 15), le chauffage interne, le chauffage externe et le chauffage par recirculation de gaz.

Dans le cas d'un chauffage interne, une partie de la biomasse à carboniser est brûlée sous un flux d'air contrôlé. Ce type de chauffage permet d'obtenir des rendements matière de 20 à 35 %, généralement faibles du fait que l'énergie de pyrolyse provient de la biomasse. Les durées de carbonisation vont typiquement de 20 h à 7 jours, voire 30 jours pour certains procédés traditionnels. Enfin les fumées produites s'échappent généralement sans postcombustion. Il s'agit principalement de fours traditionnels (fours en briques, four en nid d'abeille, four Missouri, four en meule de terre ou four CML) dont quelques exemples sont présentés sur les Figures 16 et 17.

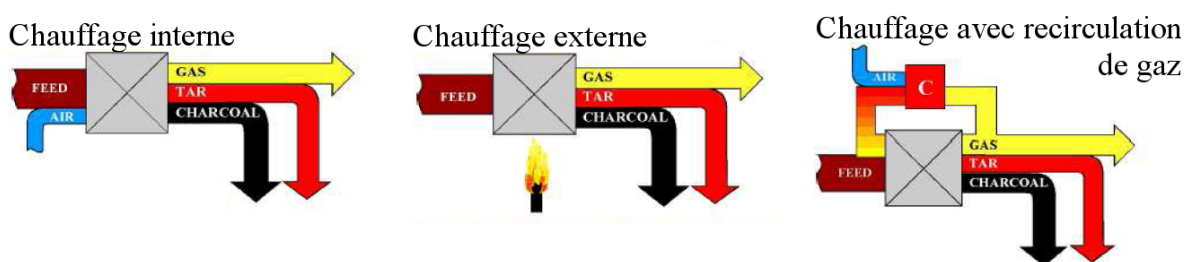


Figure 15 – Schéma du principe de fonctionnement des trois types de fours à carbonisation



Figure 16 : Exemple de fours traditionnels, une meule en terre à gauche et un four dit en « nid d'abeille » à droite (FAO 2008)

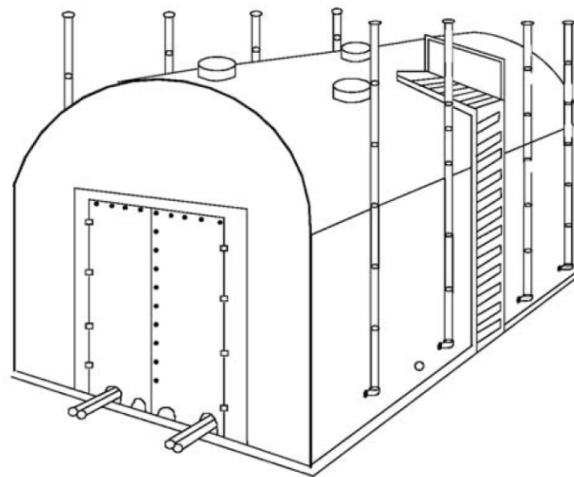


Figure 17 : Schéma d'un four Missouri (FAO 2008)

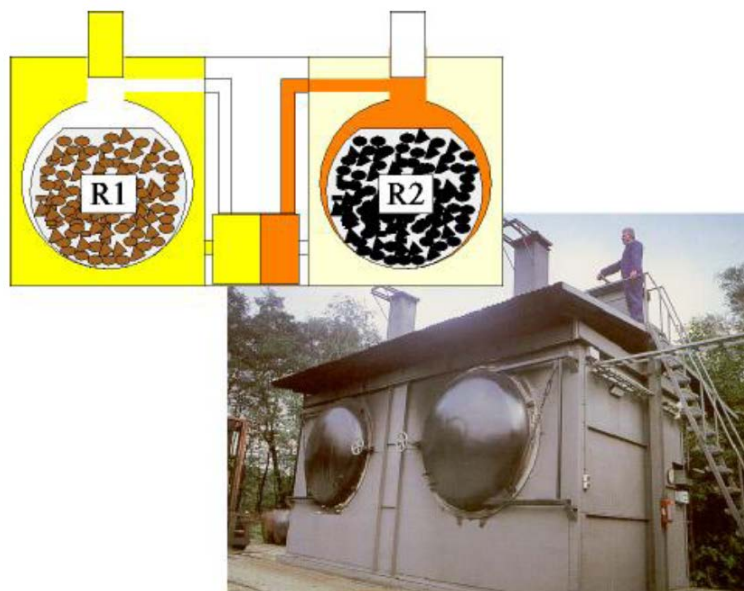


Figure 18 : Couple de fours VMR en fonctionnement batch : les gaz de pyrolyse de l'un servent à chauffer l'autre (Chaabane A. et coll. 2010)

Les procédés à chauffage externe consistent à chauffer le four par l'extérieur, ce qui permet d'éviter toute entrée d'oxygène. Les parois chauffent la biomasse par conduction et rayonnement. Le rendement matière est plus élevé (30 à 32 %) et les durées de cycle sont plus courtes qu'en chauffage interne (8 à 12 h). L'énergie nécessaire au chauffage et à la pyrolyse

est fournie par les fumées de carbonisation qui sont récupérées et brûlées à cet effet. Cela nécessite donc l'emploi de plusieurs fours dans le cas de procédés fonctionnant en batch. Un exemple de procédé fonctionnant sur ce principe est présenté Figure 18 : fours VMR (Van Marion Retort).

Enfin dans les procédés de carbonisation par recirculation de gaz, une partie des goudrons et des gaz produits est brûlée dans une chambre de combustion externe puis redirigée dans le réacteur, en contact direct avec la matière première. Dans ce cas, le gaz chauffe la biomasse par convection. Le cycle de carbonisation peut durer de 16 à 35 h. Comme dans le cas précédent, les fumées de carbonisation sont brûlées, et dans les systèmes les plus optimisés, la chaleur sensible des fumées de postcombustion est utilisée pour une opération préalable de séchage de la biomasse. Les procédés existants de ce type sont les procédés Degussa, Lambiotte (Figure 19) et Lurgi.

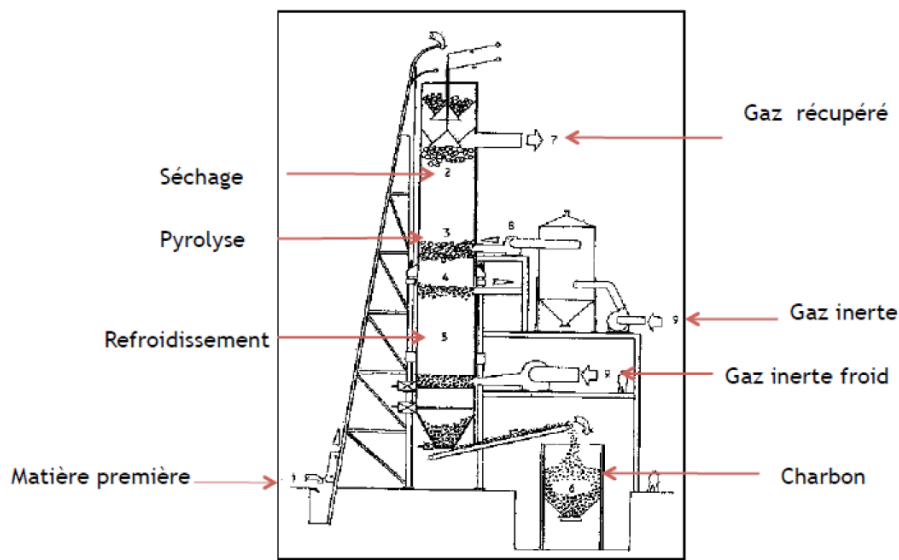


Figure 19 : Four vertical continu, procédé Lambiotte (FAO 1985)

III.3.2.2. Caractéristiques physico-chimiques du biochar

Les caractéristiques chimiques (PCI, composition élémentaire, teneur en carbone fixe, en volatils et en cendres) et physiques (densité, granulométrie) du biochar joueraient un rôle important en cas de substitution des combustibles classiques de la filière de production de fonte par du biochar. Lors de la carbonisation, les polymères composants la biomasse (cellulose, hemicellulose et lignine) sont décomposés de manière plus ou moins prononcée, faisant évoluer ces caractéristiques.

Concernant la composition chimique, en se référant à l'évolution type représentée sur le diagramme de Van Krevelen de la Figure 13, on s'attend à une réduction de la teneur en matières volatiles dans la fraction solide, donc de la teneur en hydrogène et en oxygène, tout en conservant une quantité importante de carbone. De plus, l'intégralité des cendres restant dans la fraction solide, leur teneur devrait augmenter. Cela est valable quel que soit le type de biomasse carbonisée. A titre d'exemple, on peut citer les résultats de Ryu et coll. (2007), qui ont carbonisé trois types de biomasses différentes (bois de pin, baldingère faux-roseau et des déchets communs), et ont porté les teneurs en oxygène, hydrogène et carbone des produits sur un diagramme de Van Krevelen (Figure 20). Comme nous l'avons dit précédemment, les paramètres de carbonisation vont jouer un rôle important quant à la composition du produit

final. Par exemple, le Tableau 14 tiré de la même étude montre l'évolution de la composition élémentaire des trois biomasses citées précédemment en fonction de la température utilisée pour la carbonisation. Plus la carbonisation sera prononcée (haute température, long temps de séjour de la biomasse dans le réacteur), plus la teneur en volatils sera faible, et plus on augmentera la teneur en carbone et en cendres du biochar. Et si le comportement de tous les types de biomasse est globalement identique du point de vue d'un diagramme de Van Krevelen, on remarque, en observant les PCI listés dans le Tableau 14, que ce PCI est fortement dépendant de la teneur en cendres initiale de la biomasse.

On peut aussi noter que, comme expliqué au paragraphe II.3.2.1, la connaissance de la teneur en carbone fixe d'un charbon de bois permet de connaître l'avancement de la carbonisation qu'il a subie : un charbon de bois carbonisé autour de 400 °C aura une teneur en carbone fixe de l'ordre de 70 %, tandis qu'une carbonisation plus poussée, à des températures proche de 500 °C conduira à un taux de carbone fixe proche de 85 %.

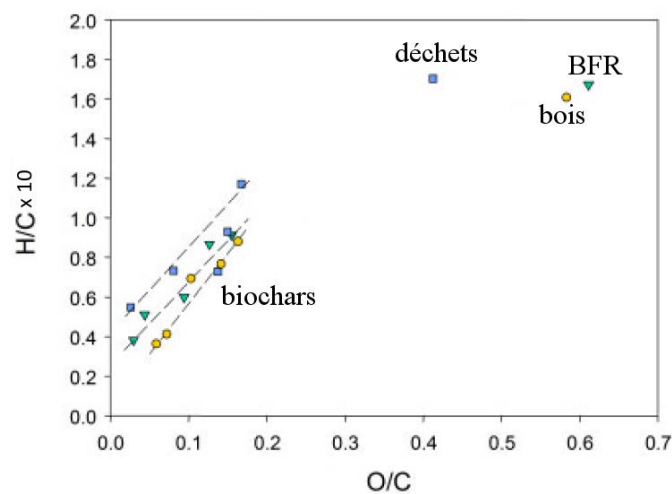


Figure 20 : Diagramme de Van Krevelen de la composition élémentaire des biochars de bois de pin, baldingère faux-roseau et de déchets communs (Ryu C. et coll. 2007)

Tableau 14 : Tableau comparatif des compositions et du pouvoir calorifique de différentes biomasses brutes et carbonisées à 400 et 600 °C (Ryu C. et coll. 2007)

	C	O	H	C-fixe	MV	Cendres	PCI
	[% sec]	[% sec]	[% sec]	[% sec]	[% sec]	[% sec]	[MJ kg ⁻¹]
Bois de pin							
Brute	52,0	41,0	7,0	13,3	86,5	0,2	18,0
400 °C	79,8	15,0	5,2	64,0	35,0	1,0	32,0
600 °C	88,5	8,5	3,0	92,0	9,0	2,0	34,0
Baldingère faux-roseau							
Brute	50,0	40,9	7,0	17,1	76,9	6,0	19,5
400 °C	77,9	16,1	5,9	63,0	22,0	15,0	28,0
600 °C	85,1	10,7	4,2	75,0	8,0	17,0	27,0
Déchets communs							
Brute	57,2	31,0	8,2	13,3	72,7	14,0	20,5
400 °C	80,1	16,0	3,8	24,0	47,0	31,0	22,0
600 °C	84,7	10,2	5,2	43,0	7,0	50,0	17,5

Les propriétés physiques d'une biomasse sont aussi affectées par la carbonisation. La masse volumique de la biomasse diminue au cours de la carbonisation. Par exemple, le charbon d'eucalyptus préparé pour les hauts fourneaux brésiliens de SG PAM, de carbonisation moyenne, avec une teneur en carbone fixe de 75 %, présente une masse volumique approchant

750 kg m⁻³, alors que la masse volumique du bois initial était de l'ordre de 1200 kg m⁻³. De plus, les polymères responsables des qualités mécaniques du bois brut étant décomposés par la carbonisation, le biochar obtenu est d'autant plus friable que la température de carbonisation est élevée.

III.3.2.3. Rendement de carbonisation

Le rendement de la carbonisation d'une biomasse peut être exprimé de plusieurs manières, selon que l'on s'intéresse au contenu énergétique ou à la masse, et qu'on considère la masse de charbon finale (sec ou humide) ou la masse de carbone contenue. De plus, le charbon n'étant pas un matériau « pur », il n'existe pas de composition type clairement définie, par exemple, sa teneur en carbone peut varier entre 70 et 95 % suivant son degré de carbonisation. Pour éviter les confusions et permettre une comparaison fiable des procédés de carbonisation, on peut définir trois types de rendements : rendement massique en charbon, rendement en carbone fixe et rendement énergétique (voir annexe E)¹³.

Un des principaux inconvénients de la carbonisation réside dans son faible rendement, qui peut l'amener à être considérée comme un procédé médiocre par rapport à l'utilisation directe de bois (Kammen D.M. et coll. 2005). En effet, même si le produit final dispose d'un contenu énergétique important, à cause du faible rendement massique, on aboutit à un rendement énergétique de l'ordre de 50 %. Une grande partie de l'énergie contenue dans la biomasse est évacuée dans les matières volatiles. Un grand nombre d'auteurs ont étudié les rendements obtenus en fonction des paramètres opératoires (Tableau 15). De manière générale, on peut retenir une valeur moyenne de 0,3 kg⁻¹_{biochar} kg⁻¹_{biomasse} comme étant représentative du rendement de l'opération de carbonisation qu'il s'agisse d'un procédé moderne ou de type traditionnel « amélioré ». Les principales différences observables dans le Tableau 15 ne sont liées qu'au type de biomasse carbonisée et au degré de carbonisation. Seul Antal (1996) se démarque, en expérimentant une carbonisation à haute pression (10 bar) permettant d'atteindre des rendements plus importants (jusqu'à 46 %).

Tableau 15 : Différents rendements de carbonisation reportés dans la littérature et les conditions opératoires associées (rendements massiques exprimés en kg_{biochar} kg⁻¹_{biomasse}).

Réf.	Four	Essence bois	Rendement	Temps	C-Fixe [%]	Pression [MPa]
1	Expérimental	Eucalyptus	43-46,1	75-210 min	~75	1
2	Expérimental	Bouleau	28,8-29,5	1 à 6 h	72,5-79,1	0,1
2	Expérimental	Epicéa	31,7-33	1 à 6 h	69,1-78,7	0,1
2	Expérimental	Pin	28,8-32,1	1 à 6 h	69,6-86,6	0,1
3	Expérimental	Epicéa	25,7-38,3	n.c.	70,5-91,2	0,1
4	VMR	Mélange	20	n.c.	~85	0,1
5	Meule de terre	Eucalyptus	21,6-34,2	2-7,1 j	~70	0,1

1 : (Antal M.J. et coll. 1996), 2 : (Antal M.J. et coll. 2000), 3 : (Demirbaş 2001), 4 : (Carbo France 2010), 5 : (Pennise D. M. et coll. 2001)

III.3.2.4. Coproduits de la carbonisation

En plus du biochar, deux sous-produits sont créés par le procédé : les liquides pyrolygneux et des gaz non condensables. Les liquides pyrolygneux peuvent être valorisés de deux façons, énergétiquement (au sein du procédé dans le cas de carbonisation à chauffage externe ou à

¹³ Bien que le rendement massique ne soit pas le rendement le plus pertinent, c'est le rendement qui est habituellement reporté dans la littérature. Sauf mention spécifique, c'est donc celui qui sera utilisé.

recirculation) ou bien dans l'industrie agro-alimentaire (comme « fumée liquide »). Les gaz non condensables quant à eux, parfois appelés PIC (Products of Incomplete Combustion), contiennent CO, CO₂, CH₄, des alcanes, des alcènes et d'autres composés oxygénés. Certains de ces gaz ont un impact environnemental important, dont la contribution à l'effet de serre. D'après Strezov et coll. (2007), la carbonisation d'une poudre de charbon entraîne la formation de gaz non condensables contenant entre 35 et 90 % de CO₂, 23-35 % de CO, 1,2-7 % de CH₄, 0,2-2,4 % de C₂H₄, 0,05-0,7 % C₂H₆. Cette composition est cependant très dépendante du procédé de carbonisation. Dans le cas d'un procédé traditionnel par exemple, la quantité d'oxygène présente dans le réacteur n'est pas forcément contrôlée et les gaz et goudrons libérés peuvent ainsi subir une postcombustion. Des compositions de gaz de carbonisation sont données dans le Tableau 16 en fonction du type de fours dont ils sont issus. Il ne s'agit que de fours de carbonisation de bois.

Tableau 16 : Compositions de gaz libérés et rendements associés à la production de charbon de bois (toutes les unités sont exprimées pour 1kg de charbon de bois produit)

Réf.	CO ₂ [kg kg ⁻¹]	CO [g kg ⁻¹]	CH ₄ [g kg ⁻¹]	N ₂ O [g kg ⁻¹]	NO _x [g kg ⁻¹]	C _x H _y [g kg ⁻¹]	Goudrons [g kg ⁻¹]	Rendement [kg kg ⁻¹]	Type de four
1	1,802	223	44,6	0,15	0,063	92,6	-	27,5	Meule de terre
1	1,382	324	47,6	0,045	0,028	80,9	-	34,1	Four en nid d'abeille
1	1,533	373	56,8	0,051	0,014	45,9	-	28,7	Four en briques
1	0,543	162	36,5	0,011	0,0054	23,9	-	36,4	Four Missouri
2	3,3	440	150,0	-	-	410,0	-	20,0	Four industriel
2	1,35	700	170,0	-	-	0,0	-	31,0	Four industriel
2	1,54	230	40,0	-	-	8,0	-	28,0	Meule de terre
2	-	170	50,0	-	-	20,0	-	25,0	Batch non contrôlé
2	-	30	8,0	-	-	40,0	-	25,0	Batch contrôlé
2	2,63	90	20,0	-	-	0,0	-	-	Meule de terre
3	0,996	162	31,8	0,017	-	29,7	58,0	33,3	Four en nid d'abeille en briques
3	1,140	226	27,7	0,046	-	95,3	65,0	29,8	Meule terre
4	0,55	145	55,0	-	0,012	80,0	155,0	-	Missouri
5	1,192	336	-	-	-	72,0	133,0	32,7	Four en métal à combustion partielle

Sources : 1 : (Pennise D. M. et coll. 2001) ; 2 : (Daniel M. Kammen 2005); 3 : (Smith K. R. et coll. 1999) ; 4 : (U.S. EPA 1995) ; 5 : (Shah N. et coll. 1992)

Dans le cas d'une utilisation de biochar pour la production de fonte, on retiendrait un procédé de carbonisation industriel « propre ». Il comporterait donc une postcombustion. Cependant, aucune donnée fiable n'est disponible concernant les émissions des procédés utilisant une postcombustion. Nous avons donc estimé les quantités de CO₂ produites en utilisant les données du Tableau 16 et en considérant une postcombustion idéale. On peut ainsi estimer que de 0,93 à 5,0 kg_{CO2} kg⁻¹ de charbon de bois produit pourraient être émis, selon le type de procédé et le rendement associé.

III.3.2.5. Aspects énergétiques de la carbonisation

Besoin

Il est assez difficile d'évaluer la quantité d'énergie nécessaire à la carbonisation de biomasse. Cette quantité va dépendre d'une part de la nature de la biomasse, mais aussi du procédé utilisé. Un grand nombre d'articles donnent des valeurs du besoin énergétique pour la pyrolyse de biomasse en s'appuyant sur des analyses de calorimétrie différentielle à balayage (DSC). Dans ce type d'étude, il s'agit d'un chauffage rapide qui ne correspond pas tout à fait à

la carbonisation. Selon ces articles, les besoins énergétiques pour pyrolyser de la biomasse à 600 °C varieraient entre -1,5 et 1,5 MJ kg⁻¹ de biomasse. Ce qui signifie que le procédé peut être aussi bien endothermique qu'exothermique. Plusieurs auteurs estiment cependant ce besoin à une valeur proche de 650 kJ kg⁻¹ de bois (Numazawa S. 2000; He F. et coll. 2006; Roberts K.G. et coll. 2010), ce qui correspond à un besoin d'environ 2,2 MJ kg⁻¹ de charbon produit (soit environ 50 % du PCI carbone finale produit).

A cette énergie de carbonisation on doit ajouter le besoin énergétique correspondant à l'énergie nécessaire au séchage. En reprenant la valeur calculée au paragraphe II.3.1.2 sur le séchage, on obtient un besoin énergétique d'environ 4,9 MJ kg⁻¹ de charbon de bois produit.

Energie récupérée

L'énergie libérée dans les gaz, sous forme de chaleur sensible et d'énergie chimique, est estimée à environ 8 MJ kg⁻¹ de charbon de bois produit. En comparant ce chiffre au 2,2 ou 4,9 MJ kg⁻¹ charbon des besoins, on remarque que le processus de carbonisation peut donc être totalement autonome et fonctionner sans apport d'énergie extérieure sauf pour les phases transitoires. Dans le cas de procédés industriels, les gaz issus de postcombustion sont effectivement utilisés à la fois pour la carbonisation et le pré-séchage du bois.

III.3.2.6. Coût du charbon de bois

Achat

Il est possible de faire produire du charbon de bois par des producteurs locaux ou bien de l'importer de pays étrangers. Le principal problème associé à l'achat de charbon de bois industriel en France ou en Europe est le fait que le charbon produit est avant tout destiné à un usage domestique (barbecue). Son coût est donc relativement élevé (500 à 750 €t⁻¹) et sa disponibilité localement faible (voir le paragraphe III.4.8 concernant la disponibilité du charbon de bois).

Production

On pourrait envisager de monter une unité de production de charbon de bois dédiée à l'alimentation d'une usine de production de fonte. Le Tableau 17 donne des ordres de grandeur des coûts d'investissement. Cependant, de nos jours, c'est le coût de la matière première qui prédomine dans le coût total du charbon de bois. En effet, on l'estime à environ 100 €t⁻¹ biomasse sèche, ce qui implique un coût total d'environ 300 €t⁻¹ biochar lié à l'approvisionnement en biomasse.

Tableau 17 : Capacités, rendement typique et coût d'investissement des technologies existantes de carbonisation (United Nations Centre for Human Settlements 1993)

Type de four	Capacité [m ³]	Rendement [% masse sèche]	Coût [\$]
Four en briques	9-45	25-35	150 - 1500
Meule de terre	3-100	10-31	< 200
Four en métal	25-200	20-28	2000 - 5000
Four en béton	70-350	25-33	8000 - 15000
Four Lambiotte	2-40 000 t an ⁻¹	22-35	40 000 - 2 000 000

III.3.3. Procédé de torréfaction

La torréfaction est un procédé à basse température, intermédiaire entre le séchage et la carbonisation. La biomasse est chauffée jusqu'à des températures de 200 à 300 °C pendant 15 à 150 min. Ce procédé de prétraitement fait disparaître certains des inconvénients de la biomasse brute, à savoir, sa faible densité énergétique, son humidité élevée, son hygroscopicité, sa propension à pourrir lors du stockage et le coût énergétique lié à son broyage.

Plusieurs auteurs (Lipinsky E.S. et coll. 2002; Boerrigter H. et coll. 2006) ont montré que la torréfaction permet de multiplier la densité énergétique par 1,3 ; on atteint généralement un rendement massique de 70 % et un rendement énergétique de 90 %.

La teneur en humidité d'une biomasse torréfiée est réduite à moins de 5 %, et sa faible hygroscopicité prévient toute augmentation de cette teneur. En effet, lors de la torréfaction, les groupes -OH présents dans les molécules d'hémicelluloses et responsables du caractère hydrophile de la biomasse sont dégradés (Gupta 2003).

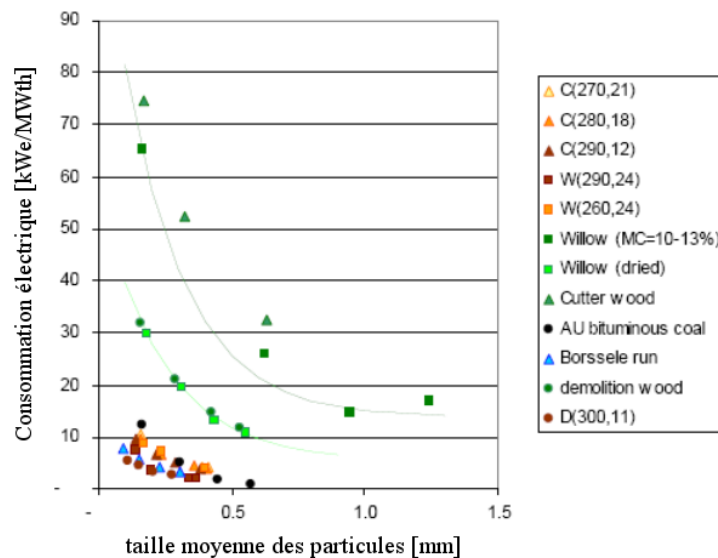


Figure 21 : Amélioration de la broyabilité avec la torréfaction (Boerrigter H. et coll. 2006)

Enfin, après torréfaction, la biomasse est plus facile à broyer comme en témoigne la Figure 21 (Boerrigter H. et coll. 2006). L'énergie nécessaire pour broyer une biomasse jusqu'à une taille donnée est divisée par un facteur 3 à 6 quand on passe de la biomasse brute à la biomasse torréfiée. L'amélioration de la broyabilité s'explique par la dégradation des hémicelluloses : dans la biomasse brute, les hémicelluloses forment des enchevêtrements ou réseaux avec la cellulose. Lorsque les hémicelluloses sont dégradées, les réseaux conférant sa solidité au bois le sont également (Bergman P.C.A. et coll. 2005).

III.3.3.1. Principe de la torréfaction

Le principe de la torréfaction est identique à celui de la carbonisation, la seule différence réside dans la durée de séjour de la biomasse dans le réacteur et dans la température de chauffe plus faible. Lors de la torréfaction, la température de la biomasse ne dépasse pas 300 °C, ce qui permet de rester dans la phase de réactions endothermiques et donc de n'avoir qu'une décomposition partielle.

III.3.3.2. Composition de la biomasse torréfiée

La biomasse torréfiée garde une composition proche de la biomasse brute (cf. Tableau 18 dans le cas du bois de bouleau). Son humidité est entièrement éliminée même à faible température de torréfaction, par contre son PCI n'augmente que lentement.

Tableau 18 : Comparaison d'une biomasse brute et de cette même biomasse après torréfaction à différentes températures (Pach M. et coll. 2002)

	C [% sec]	H [% sec]	N [% sec]	O [% sec]	H ₂ O [%]	PCI [MJ kg ⁻¹]	Fraction solide [%]
Bouleau brut	45,5	6,2	0,1	48,2	5,4	16,4	100
Bouleau torréfié à 230 °C	50,8	6,0	0,16	43,0	1,7	18,8	86,9
Bouleau torréfié à 280 °C	56,6	5,6	0,17	37,6	1,6	21,1	68,9

III.3.3.3. Rendement de la torréfaction

Comme pour la carbonisation, le rendement de torréfaction dépend des conditions du traitement thermique (températures variant de 200 à 300 °C et durées de quelques dizaines de minutes à quelques heures) que l'on choisit pour obtenir différentes qualités de produit torréfié. La Figure 22 montre, par exemple, le rendement massique en produit solide d'une pyrolyse de biomasse divisée en fonction de la température et du temps de séjour. Pour une torréfaction jusqu'à 300 °C, ce rendement peut ainsi varier de 0,3 à plus de 0,9.

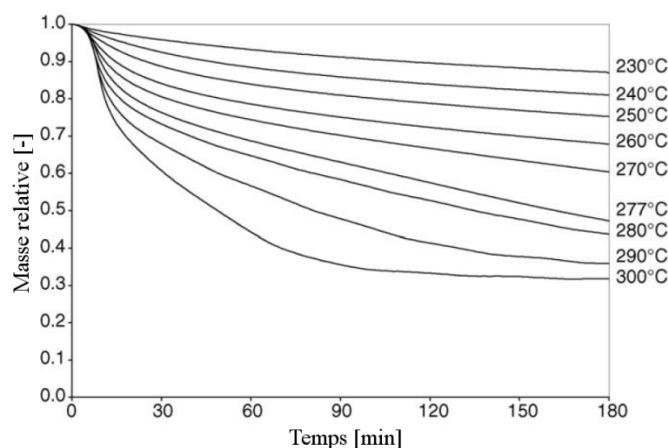


Figure 22 : Evolution du rendement massique en fonction de la température/durée de torréfaction de peuplier (Prins M.J. et coll. 2006)

III.3.3.4. Procédés industriels

Bien que ce procédé soit beaucoup étudié, il existe encore peu d'applications industrielles fonctionnelles. De plus, le débouché classique de la biomasse torréfiée étant la production de chaleur ou d'électricité, les applications existantes aujourd'hui sont généralement des unités intégrant à la fois le séchage, la torréfaction et la pelletisation de la biomasse.

Le Tableau 19 répertorie plusieurs procédés industriels de production de granulés ou de biomasse torréfiée ainsi que les productivités associées (données issues de présentations à la « Central European Biomass Conference » de Graz, janvier 2011).

Tableau 19 : Liste de producteurs ou futurs producteurs de biomasse torréfiée en Europe et les procédés utilisés

Société	Nom du procédé	Type de procédé	Ville	Production
Stramproy Green	Stramproy	Lit mobile	Steenwik	90 kt an ⁻¹
ECN	BO2-technology	Lit mobile	n.c.	n.c.
ECN	BO2-technology	Lit mobile	Petten	60 kg h ⁻¹
Topell Energy	Torbed	Toroïdal à lit fluidisé	Duiven	60 kt an ⁻¹
Torr Coal	Torr Coal	n.c.	Dilsen-Stokkem	35 kt an ⁻¹
Andritz	ACB	Four tournant	Frohnleiten	1 t h ⁻¹
BioEndev	n.c.	n.c.	n.c.	3,3-4,3 t h ⁻¹

III.3.3.5. Besoins énergétiques

Selon Bergman (2005), le procédé de torréfaction doit être intégré à une unité complète regroupant l'unité de séchage et de torréfaction sur un même site afin de conserver la chaleur sensible de la biomasse séchée et donc minimiser les pertes thermiques. De plus, le procédé de torréfaction étant sensible à l'humidité d'entrée, le fait de le coupler à un sécheur peut permettre d'homogénéiser le produit avant l'étape de torréfaction. Lors du processus de torréfaction de biomasse, la majeure partie de la demande d'énergie correspondrait à la phase de pré-séchage, c'est à dire à l'évaporation de l'eau libre (Figure 23). Le besoin énergétique dépendra de l'humidité de départ de la biomasse. La seconde étape la plus énergivore est la phase de « post-séchage », où, cette fois, l'eau liée est vaporisée. Le reste correspond à l'élévation en température de la biomasse et de l'humidité jusqu'aux différents paliers.

Le besoin thermique du séchage a été calculé dans le paragraphe II.3.1.2, il vaut 0,9 MJ kg⁻¹ de biomasse brute initiale à 40 % d'humidité. A cela s'ajoute l'énergie nécessaire pour chauffer la biomasse jusqu'à la température de torréfaction, qui est d'environ 0,6 MJ kg⁻¹ de biomasse brute. Soit un total de 1,5 MJ kg⁻¹ de biomasse brute (humide) à torréfier, correspondant à environ 3 MJ kg⁻¹ de biomasse torréfiée (soit environ 20 % du PCI).

Tableau 20 : Caractéristiques des gaz de torréfaction issus de trois biomasses. Durée de torréfaction de 2 h, quantités exprimées en g par kg de biomasse brute, gaz anhydres (Pach M. et coll. 2002)

	Température [°C]	Gaz produit [g]	CO ₂ [%]	CO [%]	CH ₄ [%]	C _x H _y [%]	PCI [MJ Nm ⁻³]	Total CO ₂ [g]
Bouleau	230	16	81,0	18,8	0,1	0,05	2,3	17,2
Bouleau	280	48	75,0	24,5	0,3	0,13	3,1	52,8
Bagasse ¹	230	26	83,0	16,9	0	0,06	2,1	27,7
Bagasse	280	152	75,5	24,0	0,3	0,13	3,1	167,0
Pin	230	7	70,0	29,4	0,2	0,08	3,6	7,9
Pin	280	47	64,3	35,1	0,4	0,12	4,4	54,1

1 : la bagasse est le résidu fibreux récupéré après broyage et extraction de la canne à sucre.

D'après Kiel (2011), le processus de torréfaction est un processus exothermique et les gaz produits au sein du réacteur suffisent pour alimenter en énergie la torréfaction et le séchage. Par exemple, Bergman (2005) a montré que, malgré leur importante teneur en eau, les gaz issus de la torréfaction auraient un PCI compris entre 5,3 à 16,2 MJ Nm⁻³. De tels pouvoirs calorifiques sont suffisants pour fonctionner en régime autotherme. Des calculs effectués à partir de compositions de gaz issues de la littérature (Tableau 20) montrent cependant que le pouvoir calorifique des gaz produits serait plus faible qu'indiqué par Bergman (2005). Aux plus faibles valeurs (2 - 3 MJ Nm⁻³) le procédé devra nécessiter un apport d'énergie.

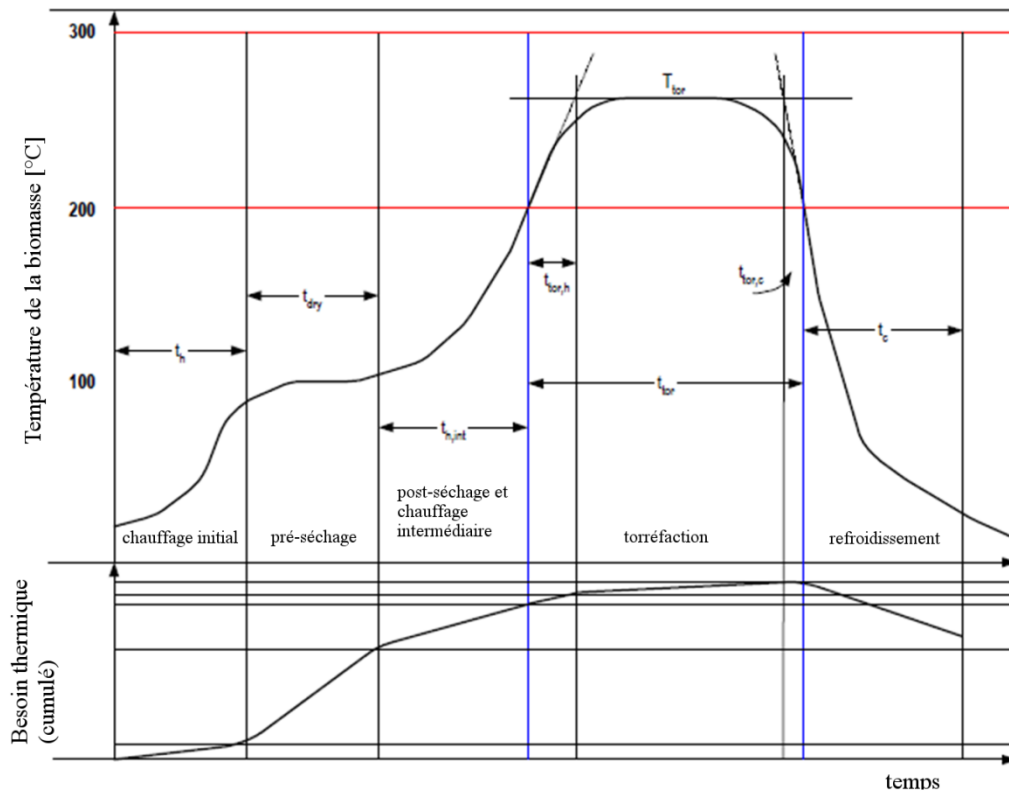


Figure 23: Différentes étapes de la torréfaction de biomasse (Bergman P.C.A. et coll. 2005)

III.3.3.6. Coût

Deux sources nous permettent d'estimer des coûts de production de biomasse torréfiée. Selon Boerrigter (2006) une poudre de bois torréfiée coûterait 95 €t^{-1} (à 21 MJ kg^{-1}), pour un coût de la ressource de $14 \text{ €kg}^{-1}_{\text{MS}}$, soit un coût de torréfaction de $75 \text{ €t}^{-1}_{\text{biomasse torréfiée}}$. Pour Bergman (2005) par contre, le coût du traitement de la biomasse, comprenant le séchage et la torréfaction serait d'environ 100 €t^{-1} de produit torréfié. A cela devrait encore être ajouté le coût de la biomasse brute.

III.3.3.7. Emissions

Comme nous l'avons vu, les gaz issus du réacteur de torréfaction sont généralement brûlés afin de fournir l'énergie nécessaire à la torréfaction, voire au séchage. On peut ainsi facilement estimer les émissions de CO_2 , mais plus difficilement quantifier les émissions d'autres gaz (NO_x , COV, etc.) qui sont liées aux conditions de combustion du gaz. A partir des données du Tableau 20, on peut estimer que, en fonction du degré de torréfaction et de la nature de la biomasse, on aurait entre 8 et 167 g de CO_2 émis kg^{-1} de biomasse brute.

III.3.4. Procédé de pyrolyse pour la production de bio-huile

Nous avons vu que le charbon de bois n'était pas la seule ressource biomasse envisageable pour une application dans les hauts fourneaux et, puisque jusqu'à la première moitié de l'année 2010 SG PAM injectait des huiles de réduction pulvérisées aux tuyères, il nous a paru légitime d'envisager l'utilisation de liquides d'origine biomasse. Bien que son utilisation en haut fourneau présente certains inconvénients (cf. chapitre II), nous souhaitons aborder ce procédé et évoquer des pistes d'amélioration du produit qui pourrait le rendre plus intéressant.

III.3.4.1. Principe de fonctionnement

Une nouvelle fois, il s'agit de pyrolyser la biomasse afin de produire trois phases : une partie solide (charbon), une partie gazeuse et une partie liquide (gaz condensables). Cette dernière qui était appelée « goudron » dans le cas de la carbonisation est appelée dans ce contexte « bio-huile » puisque sa formation est privilégiée.

Le procédé de base est similaire à celui de la carbonisation : la biomasse est chauffée en absence d'oxygène, mais les paramètres opératoires sont modifiés : une température plus élevée (jusqu'à 650 °C), une biomasse de faibles dimensions (généralement inférieures à 5 mm), une vitesse de chauffe élevée ($>100 \text{ K s}^{-1}$) et un temps de séjour court (de 0,5 à 5 s). D'où le nom de pyrolyse rapide ou pyrolyse flash (Mohan D. et coll. 2006). L'humidité de la biomasse doit être la plus basse possible (inférieure à 6-10 % selon Lepez (2011)) afin de minimiser la proportion d'eau dans la bio-huile, ce qui nécessite obligatoirement une étape de séchage préalable.

III.3.4.2. Différents types de réacteurs

Il existe plusieurs types de réacteurs pour la pyrolyse rapide de biomasse (Adam J. 2005; Mohan D. et coll. 2006; Mauviel G. et coll. 2009) : à lit fluidisé (bouillonnant ou circulant), à double vis, à cône rotatif, sous vide, ablatif et cyclone.

Le réacteur à lit fluidisé semble être le plus performant et le plus utilisé à l'échelle industrielle. Des descriptions détaillées de tous les procédés ainsi que de leurs performances sont présentées dans les articles cités précédemment.

III.3.4.3. Rendement du procédé

Le rendement massique, correspondant à la masse de bio-huile récupérée sur la masse de biomasse brute initiale, peut varier entre 60 et 95 % (Mohan D. et coll. 2006) et dépend de la nature de la biomasse (bois, paille, papier, ou autre) – par exemple, une teneur importante en lignine aura tendance à réduire ce rendement – de sa granulométrie, du type de réacteur utilisé et des paramètres opératoires appliqués.

III.3.4.4. Composition et caractéristiques d'une bio-huile

Une bio-huile est un mélange complexe d'eau (15 à 30 %) et d'un grand nombre de composés organiques, qui se condensent en formant une microémulsion. Branca et coll. (2005) ont montré que les bio-huiles pouvaient contenir plus de 80 composés différents, pouvant être des alcools, des cétones, acides, composés furfuryliques et phénoliques, hydrocarbures cycliques ou aromatiques... Plusieurs auteurs ont simplifié la composition des bio-huiles en utilisant des formules simples telles que $\text{CH}_{2,5}\text{O}$ (BTG-BTL 2009), $\text{CH}_{1,9}\text{O}_{0,7}$ (Mohan D. et coll. 2006) et $\text{CH}_{2,15}\text{O}_{0,85}$ (Dynamotive 2009).

Du fait de l'importante teneur en acides, les bio-huiles ont généralement un pH faible, ce qui en fait des produits corrosifs et donc contraignants pour le transport et le stockage. Enfin leurs mauvaises performances attendues en injection en haut fourneau sont dues à leur importante teneur en eau, résultant en un faible PCI par comparaison aux combustibles liquides classiques utilisés en haut fourneau (Tableau 21). Elles ont cependant l'avantage d'être plus denses et plus fluides que des huiles lourdes.

Tableau 21 : Caractéristiques physico-chimiques de deux bio-huiles et du fioul lourd (Mesa-Perez J.M. et coll. 2007; UOP et coll. 2008; Dynamotive 2012)

Paramètres	Unités	Dynamotive	BTG	Fioul lourd
PCS	[MJ kg ⁻¹]	16-19	17-20	42
Densité	[-]	1,2	1,15-1,25	0,94
pH	[-]	2-3	2,5-3	7
Humidité	[%]	20-25	15-30	0,1
Cendres	[%]	<0,02	<0,1	0,03
Viscosité cinématique	[10 ⁻⁶ m ² s ⁻¹]	70 (à 20 °C) 4 (à 80 °C)	20,8 à 830	50 (à 50 °C) 41(à 80 °C)

III.3.4.5. Coproduits de pyrolyse rapide

Dans le cas de la pyrolyse rapide, les coproduits sont les gaz et les résidus solides. Le gaz est, dans la plupart des procédés, récupéré et brûlé en parallèle de la pyrolyse pour fournir tout ou partie de la chaleur nécessaire. La récupération et la combustion permettent d'une part de réduire l'impact environnemental (le gaz étant constitué de CO₂, CO, H₂, CH₄ (Mohan D. et coll. 2006), il a un impact environnemental fort, notamment en terme d'effet de serre) et d'autre part d'augmenter le rendement global du procédé en valorisant mieux l'énergie.

Les résidus solides, le biochar, peuvent être utilisés au sein du procédé de pyrolyse ou bien récupérés puis valorisés. Par exemple, plusieurs auteurs (Woolf D. et coll. 2010; Hammond J. et coll. 2011) ont suggéré d'amender les sols agricoles avec du biochar. Cela permettrait d'une part d'améliorer la qualité des sols, et d'autre part de stocker du carbone dans les sols pendant une durée de plusieurs centaines d'années. En effet, Hammond et coll. (2011) ont expliqué qu'après l'amendement d'un terrain agricole avec du biochar, seulement 15 % du carbone contenu était libéré sous forme de CO₂ dans les jours ou années qui suivent l'amendement. Cette fraction est appelée carbone instable. La majeure partie, le carbone stable, resterait dans le sol jusqu'à 500 ans, formant ainsi un puits de carbone.

III.3.4.6. Besoins énergétiques

Le besoin énergétique lié à la pyrolyse de biomasse a déjà été exprimé précédemment et est de l'ordre de 650 kJ kg⁻¹ de biomasse. Comme pour la torréfaction, il est nécessaire de sécher au préalable la biomasse, ce qui représente un besoin énergétique supplémentaire de 0,9 MJ kg⁻¹ de biomasse brute. Le besoin total s'élève ainsi à environ 1,5 MJ kg⁻¹ de biomasse brute, soit 3,8 MJ kg⁻¹ de bio-huile produite (environ 40 % du PCI). Comme pour la torréfaction, il est possible d'utiliser les coproduits pour subvenir aux besoins énergétiques. En effet, les gaz mais aussi la fraction solide produite, le biochar, peuvent être brûlés. Le PCI du gaz et du biochar valent, respectivement, autour de 6 MJ Nm⁻³ et 27 MJ kg⁻¹. Une pyrolyse standard produisant environ 0,1 Nm³ de gaz et 0,2 kg de biochar, il est donc possible de récupérer 6 MJ kg⁻¹ de biomasse pyrolysée ou 15 MJ kg⁻¹ de bio-huile produite, ce qui est supérieur au besoin global.

III.3.4.7. Emissions

Encore peu d'informations sont disponibles sur les émissions liées à la pyrolyse de biomasse pour la production de bio-huile. Seules les émissions de CO₂ sont généralement renseignées et elles dépendent significativement de l'énergie utilisée pour le chauffage du réacteur.

III.3.4.8. Applications industrielles et productivité

Le procédé de conversion de la biomasse en bio-huiles par pyrolyse est une technologie assez récente qui ne compte encore que peu d'applications industrielles à grande échelle. Les principaux producteurs de bio-huiles sont listés dans le Tableau 22 avec les réacteurs utilisés et les capacités de production associées (UOP et coll. 2008; Dynamotive 2009).

Cependant, d'après Lepez (2011), le marché des bio-huiles à usage énergétique ne serait pas encore fonctionnel : les grands producteurs comme Dynamotive ou ENSYN sont pour le moment positionnés sur le marché des huiles aromatiques et sont seulement en train de développer la communication en vue d'un usage énergétique.

Tableau 22 : Informations sur les trois principaux producteurs de bio-huiles

Producteur	Pays	Production	Type de réacteur	Rendement [% massique]
Dynamotive	Canada	15 à 200 t j ⁻¹	lit fluidisé bouillonnant	60-75
ENSYN	Canada	n.c.	lit fluidisé circulant	55-80
BTG	Pays-Bas	5 t hr ⁻¹	cône rotatif	50-70

III.3.4.9. Coût d'achat et de production de bio-huiles

Trois sources accessibles permettent d'évaluer le coût des bio-huiles : le rapport de projet d'un groupe d'élèves de l'Ecole des Mines de Nancy, une étude de marché de 2007 réalisé par une entreprise canadienne et une étude d'investissement. Ces différentes sources permettent de calculer les coûts selon différents scénarios : une production locale ou une production extérieure. Ce travail a été synthétisé dans le Tableau 23. Les données les plus récentes proviennent du travail réalisé par les élèves de projet, elles montrent qu'au prix actuel de la biomasse bois énergie (environ 100 €t⁻¹_{MS}), le coût de la bio-huile dépasserait 300 €t⁻¹, ce qui en fait une ressource biomasse chère.

Tableau 23 : Coût d'achat et de production de bio-huile

Réf.	Coût [€t⁻¹]	Coût [€GJ⁻¹]	Coût biomasse [€t⁻¹]	Investissement [M€]	Durée fonctionnement [années]	PCI [MJ kg⁻¹]
1	225 - 450	15 - 23,7	50-150	4,9	10	15-19
2 – Import	72 - 200	4,8 - 10,5	0 - 80	n.c.	n.c.	15-19
3 – Production Europe	181 - 332	11,3 - 20,8	50-150	6,5	5	n.c.
3 – Production Canada	88,5 - 118,8	5,9 - 6,25	13,3-19,2	6,5	n.c.	n.c.
4 – Production locale	168 - 320	10,5 - 20	50-150	4,7	5	n.c.

1 : (Etudiants EMN 2010), 2 : (Bradley 2006), 3 : (Stewart G.W. 2004), 4 : (Stewart G.W. 2004; Bradley 2006)

Pour les conversions de devises des calculs provenant de sources canadiennes, le taux de change a été pris à 1,2 \$can = 1 €

III.3.4.10. Amélioration du produit

Afin d'améliorer la bio-huile en vue d'une utilisation en haut fourneau, il serait nécessaire de densifier son contenu énergétique. Deux voies seraient envisageables : parvenir à réduire l'humidité de la bio-huile en séparant l'eau par un procédé d'extraction (physique ou chimique) ou bien en utilisant plusieurs étages de condensation en sortie du réacteur de pyrolyse.

Enfin, une dernière piste serait de réaliser un mélange bio-huile et biochar, appelé bio-slurry, qui permettrait d'avoir un produit visqueux pompable et doté d'un PCI plus élevé que la bio-huile.

III.3.5. Procédé de production de bio-slurry

La production de bio-slurry – encore au stade pilote – se base sur un procédé de pyrolyse rapide classique, mais avec l'avantage d'un rendement élevé (jusqu'à 80 à 85 %) et d'un produit dont le PCI est plus élevé que la biomasse brute (supérieur à 20 MJ kg⁻¹). L'intérêt pour cette technologie est lié à la volonté d'augmenter le PCI des biomasses de faible densité (comme la paille), afin de réduire les coûts de transport vers un second site centralisé de gazéification. Dans notre cas, il pourrait être intéressant de s'arrêter au stade de bio-slurry puisqu'il s'agit d'une substance liquide pouvant donc être potentiellement injectée aux tuyères.

III.3.5.1. Principe de fonctionnement

Le principe est celui d'une pyrolyse classique, mais avec la possibilité de condenser et de récupérer les goudrons ou bio-huiles à plusieurs niveaux de température. Ceci permet, selon les réglages, d'obtenir des fractions liquides contenant peu d'eau (< 15 %) à fort pouvoir calorifique et des fractions plus riches en eau (> 50 %) moins intéressantes.

III.3.5.2. Composition du bio-slurry

Le bio-slurry étant un mélange de goudron et de solide, on peut obtenir différentes compositions selon les fractions utilisées pour chaque phase. Le Tableau 24 présente un résumé des compositions des goudrons selon l'étage de condensation et celle de la fraction solide.

Tableau 24 : Composition élémentaire des produits de pyrolyse de hêtre (Raffelt K. et coll. 2006)

	H ₂ O [%]	Cendres [%]	C [%]	H [%]	N [%]	O [%]
Fraction liquide 1	6,4	0	58,6	6,2	0,3	28,4
Fraction liquide 2	13,6	0	51,8	6,3	0,4	27,8
Fraction liquide 3	49,7	0	24,3	3,8	0,3	21,9
Fraction liquide 4	67,4	0	10	2,9	0,1	19,6
Biochar	4,2	5,5	81,1	2,5	0,4	6,2

III.3.5.3. Rendement

Cette technique nouvelle est encore au stade pilote, mais une étude publiée (Raffelt K. et coll. 2006) donne l'ordre de grandeur des différents rendements, à savoir jusqu'à environ 85 % (70 % goudron, 15 % biochar) à partir de bois et jusqu'à 80 % (52,5 % goudron, 27,5 % biochar) à partir de paille.

III.3.5.4. Procédé existant

Un seul procédé existe pour le moment, le procédé Lurgi, dont une unité pilote de 0,5 t hr⁻¹ fonctionne actuellement. Il s'agit d'un pyrolyseur appelé « twin-screw mixing reactor » (Figure 24), utilisant deux vis sans fin pour alimenter le réacteur avec un mélange de biomasse et d'une substance caloporteuse. Cette dernière, du sable ou des billes d'acier, permet un chauffage

rapide et homogène de la biomasse. Une fois la biomasse pyrolysée, les gaz chauds entraînent les vapeurs et les particules solides qui sont ensuite séparées dans un cyclone pour récupérer le biochar, puis dans un condenseur à plusieurs étages pour la récupération des goudrons.

Bien que ce procédé fonctionne, il ne s'agit encore que d'une installation pilote, et le produit final ne répond pas encore au cahier des charges initial. La technologie est donc intéressante, mais non encore applicable.

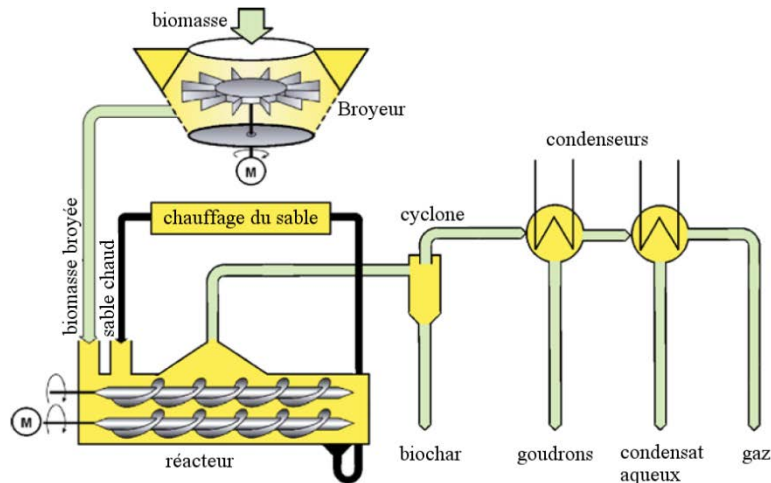


Figure 24 : Schéma du procédé Lurgi « twin-screw mixing reactor » pour la production de bio-slurry (Raffelt K. et coll. 2006)

III.3.5.5. Coproduits du procédé

Deux coproduits sont issus du procédé : les gaz de pyrolyse et les goudrons riches en eau qui n'auront pas été utilisés pour la production du slurry. En considérant que l'intégralité des goudrons est utilisée dans le bio-slurry, il n'est produit que du gaz de pyrolyse, à hauteur de $0,11 \text{ Nm}^3 \text{ kg}^{-1}$ de biomasse pyrolysée. Ce dernier contient environ 53 % de CO_2 , 36 % de CO , 6 % CH_4 , 3 % H_2 et 2 % d'autres hydrocarbures, pour un bois dur pris comme biomasse initiale. Ce gaz a un PCI de $5,9 \text{ MJ Nm}^{-3}$ (Dahmen N. et coll. 2012).

III.3.5.6. Besoins énergétiques

Besoins thermiques

Selon Raffelt (2006), les besoins énergétiques varieraient entre 0,8 et $3,5 \text{ MJ kg}^{-1}$. L'importance de ce besoin provient de l'usage de sable comme substance caloporteuse, sable qu'il est nécessaire de chauffer. La quantité de sable est un facteur limitant puisqu'il faut entre 6 et 20 fois plus de sable que de biomasse. Réduire le ratio sable/biomasse permettrait de diminuer ce besoin énergétique. Le besoin thermique n'est alors que partiellement comblé par la combustion du gaz de pyrolyse (coproduit).

Besoins électriques

La biomasse doit entrer dans le pyrolyseur sous forme de particules fines (inférieures à 3 mm), ce qui requiert un broyage, gourmand en énergie électrique. Il faut également de l'électricité pour liquéfier le bio-slurry. En effet, les particules de biochar produites sont très poreuses et leur mélange avec les goudrons forme une substance très visqueuse qui n'est pas directement exploitable. Il faut alors la liquéfier par un procédé électrique qui n'est pas spécifié.

III.3.5.7. Emissions

Les émissions sont dues à la combustion des gaz de pyrolyse et des goudrons non utilisés. La teneur en carbone de ces deux coproduits étant connue, il est possible d'estimer la quantité de CO₂ qui serait alors émise par une combustion idéale : 0,2 kg_{CO2} kg⁻¹ biomasse pyrolysée.

III.3.5.8. Coût

D'après Henrich (2009) Il faudrait compter environ 184 € pour produire une tonne de bio-slurry : 45 €t⁻¹ paille sèche (correspondant à 67 €t⁻¹ bio-slurry, avec un rendement massique de 0,67) ; 18 €t⁻¹ biomasse de transport sur 30 km (soit 26,8 €t⁻¹ bio-slurry) ; 37,3 €t⁻¹ bio-slurry pour les opérations de broyage, séchage, pyrolyse et liquéfaction et enfin 53 €t⁻¹ pour la main d'œuvre.

III.3.6. Procédé de gazéification

Une dernière exploitation du procédé de pyrolyse de biomasse permet de favoriser la production de la fraction des gaz non condensables. Il s'agit de gazéification. Plusieurs auteurs (Demirbaş 2001; Mohan D. et coll. 2006) s'accordent sur le fait qu'il s'agit du procédé de pyrolyse le plus efficace puisqu'il est possible d'atteindre des rendements énergétiques jusqu'à hauteur de 65 - 75 %. De plus, il s'agit d'une technologie déjà bien maîtrisée et utilisée pour gazéifier du charbon fossile, qui dispose déjà de nombreuses applications.

III.3.6.1. Principe de fonctionnement

Plusieurs technologies de réacteurs de gazéification existent, les lits fixes, les lits fluidisés et les lit entraînés. Pour ces trois technologies, le principe consiste dans un premier temps à effectuer une pyrolyse de la biomasse avant de brûler partiellement les matières volatiles libérées et la fraction solide produite en ajoutant une petite quantité d'oxygène. Cela permet de former principalement CO₂, CO et H₂O et d'élever la température jusqu'à 700 °C voire plus de 1300 °C selon le type de réacteur. A ces températures, une réaction de gazéification entre CO₂ et le carbone ainsi qu'une réaction de gaz à l'eau avec la vapeur d'eau se produisent pour former CO et H₂. La vapeur d'eau est fournie soit en utilisant de la biomasse humide (lit fixe et lit fluidisé, dont la Figure 25 illustre le fonctionnement) soit en l'injectant dans le réacteur avec le comburant (lit entraîné). Le gaz ainsi formé est couramment appelé gaz de synthèse ou « syngaz ».

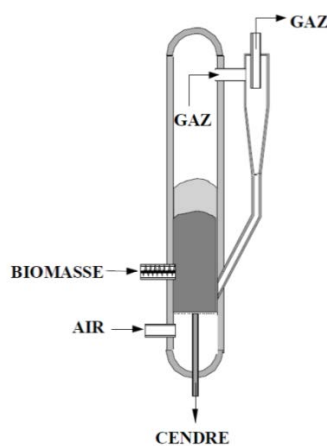


Figure 25 : Exemple d'un réacteur de gazéification à lit fluidisé

III.3.6.2. Composition et pouvoir calorifique du syngaz

La composition du syngaz produit est fortement dépendante du procédé, et notamment du comburant (air ou oxygène pur). Le type de biomasse utilisé peut aussi influencer sur sa composition. A titre d'exemple, le Tableau 25 liste différentes compositions obtenues pour différents procédés et types de biomasses.

Le PCI du syngaz est en général relativement faible en comparaison de celui gaz naturel puisqu'il est rare qu'il dépasse 6 ou 7 MJ Nm⁻³. Malgré ce faible PCI, l'utilisation de syngaz a l'avantage que la quantité d'oxygène nécessaire dans le comburant pour brûler l'intégralité de CO et H₂ est beaucoup plus faible que pour le gaz naturel. Cela implique que lors de la combustion la charge à chauffer en azote supplémentaire sera elle aussi plus faible, ce qui finalement permet d'atteindre des températures de flamme élevées. Par exemple, 1 Nm³ de syngaz de composition classique (réf. 2 ou 4 dans le Tableau 25) permet d'atteindre près de 1800 °C (contre 2450 °C pour 1 Nm³ de gaz naturel). Et dans le cas où le syngaz est produit à partir d'oxygène pur (sa teneur en azote est presque nulle), il est possible d'atteindre une température de flamme de l'ordre de 2400 °C.

Tableau 25 : Compositions de syngaz produits, selon différents auteurs

Réf.	CO [%]	CO ₂ [%]	H ₂ [%]	CH ₄ [%]	H ₂ O [%]	C _x H _y [%]	N ₂ [%]	PCI [MJ Nm ⁻³]	Biomasse utilisée
1	30	25	43	1	-	-	0	8,3	Liqueur noire
2	17,5	15	7	4,5	-	-	55	4,3	Résidus de bois
3	4,6	12,9	5,9	-	33	3,4	40,2	1,6 – 2,4	Déchets bois humide
4	16-19	14,4-17,5	9,5-12	5,8-7,5	-	-	48-52	5,3-6,3	Plaquette forestière

1 : (Landälv I.) ; 2 : (Könemann J.W. et coll. 2007) ; 3 : (Engström F. 1999) ; 4 : (Stahl K. et coll. 1999)

III.3.6.3. Coproduits

Lors de la gazéification, une grande partie de la biomasse est transformée en gaz. Il reste une petite fraction de résidus solides (de 0,01 à 0,1 kg kg⁻¹ biomasse gazéifiée), contenant environ 95 % de carbone et 2 à 3 % de cendres. Dans le cas d'un réacteur à haute température (> 1500 °C, comme les flux entraînés), il est possible que les cendres se liquéfient pour former un vitrifiat. Enfin, une petite quantité de goudrons peut aussi se retrouver dans le gaz, à hauteur de 0,1 à 150 g Nm⁻³ de gaz. Des composés inorganiques sont aussi émis dans le gaz, gênants pour les applications du type synthèse de biocarburants de seconde génération qui reposent sur des procédés catalytiques.

III.3.6.4. Besoin énergétique

Comme pour la pyrolyse classique, on peut estimer le besoin thermique pour gazéifier la biomasse à environ 650 kJ kg⁻¹ de biomasse. Dans ce cas, cette énergie provient de la combustion partielle des matières volatiles et des résidus carbonés au sein du réacteur de gazéification.

Un besoin électrique est également nécessaire afin de réduire la taille de la biomasse en entrée de réacteur. En effet, pour les réacteurs les plus perfectionnés (flux entraînés), la biomasse doit avoir une granulométrie de l'ordre de 0,5 mm, ce qui nécessite une étape de broyage consommatrice d'énergie.

III.3.7. Méthanisation

La valorisation de la biomasse peut aussi être réalisée par voie biologique : par digestion anaérobie, procédé aussi appelé méthanisation. Ce bioprocédé est un processus naturel biologique de dégradation de la matière organique en absence d'oxygène, qui prend place dans les sédiments, les marais, les rizières, ainsi que dans le processus digestif de certains animaux. La matière subit une dégradation par microorganismes pour former principalement un gaz riche en CH_4 et CO_2 , appelé biogaz, et un digestat liquide ou solide.

III.3.7.1. Mécanisme de méthanisation

La méthanisation se décompose généralement en trois phases (Moletta R. 2008) : l'hydrolyse et l'acidogénèse ; l'acétogénèse et la méthanogénèse.

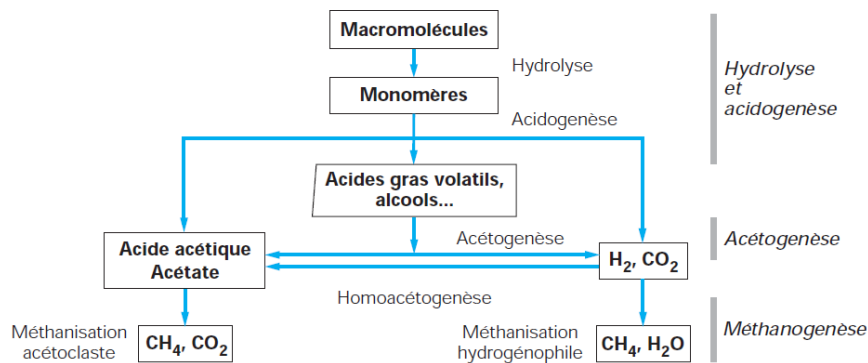


Figure 26 : Flux de matière et étapes de la digestion anaérobie de la matière organique (Moletta R. 2008)

L'hydrolyse et l'acidogénèse transforment la matière organique solide en intermédiaires tels que des acides gras volatils (AGV), des alcools, de l'acide acétique (CH_3COOH), de l'hydrogène (H_2) et du CO_2 . L'hydrolyse est une étape de dégradation des solides, c'est souvent l'étape cinétiquement limitante. La présence de lignine, qui n'est pas dégradée dans ces conditions, empêche l'accès des enzymes à la matière fermentescible, ce qui explique que le bois soit difficilement méthanisable.

La seconde phase d'acétogénèse conduit à la production d'acide acétique, de CO_2 et de H_2 . Elle est couplée à l'homoacétogénèse qui consiste en la formation d'acide acétique à partir d'hydrogène et de gaz carbonique.

Enfin, la méthanogénèse se fait à partir de l'acide acétique (méthanogénèse acétoclaste) et de la réduction de CO_2 par H_2 (méthanogénèse hydrogénéophile). On considère, généralement, qu'environ 70 % du méthane recueilli dans le biogaz est produit par méthanogénèse acétoclaste.

Les microorganismes assurant la dégradation des solides puis la méthanisation nécessitent des conditions chimiques favorables. Ainsi, une trop forte concentration en certains éléments peut entraîner des inhibitions (Moletta R. 2008), par exemple les sulfates et les métaux lourds.

III.3.7.2. Composition du biogaz

Comme pour les procédés thermiques, le gaz produit par méthanisation dépend de la biomasse utilisée. Le Tableau 26 permet de comparer différentes biomasses utilisées et traitées dans des unités de méthanisation distinctes et leur influence sur la composition du biogaz produit.

Tableau 26 : Composition du biogaz produit dans différentes unités de méthanisation (Rasi S. et coll. 2007)

	CH₄ [%]	CO₂ [%]	N₂ [%]	H₂S [ppm]
Déchets décharge	47-57	37-41	< 1-17	36-115
Boues d'épuration	61-65	36-38	< 2	n.c.
Déchets fermiers	55-58	37-38	< 1-2	32-169

On remarque que le gaz produit contient une grande quantité de CO₂, ainsi que de H₂S, éléments qui, selon l'utilisation du gaz, peuvent être gênants. Des systèmes de purification existent, permettant d'éliminer une grande partie de CO₂ et de H₂S présent dans le gaz, pour obtenir des biogaz contenant jusqu'à 96 % de CH₄ (Moletta R. 2008).

III.3.7.3. Rendement de la méthanisation

Comme pour le charbon de bois, le rendement de méthanisation pourrait être exprimé de différentes manières, massique ou énergétique. Puisque la teneur en méthane varie en fonction de la biomasse utilisée, un simple rendement massique n'est pas une donnée fiable. Aussi est-il possible d'utiliser un rendement en méthane, qui est défini par l'équation 6. Quelques exemples de ce rendement en méthane figurent dans le Tableau 27. (Ward A.J. et coll. 2008)

$$PM = \frac{\eta_{dig} \%_{CH_4}}{\rho_{gaz}} \quad 6$$

avec:

PM = Potentiel méthanogène ($m^3_{CH_4} \text{ kg}^{-1}_{\text{solide brut}}$)

η_{dig} = efficacité de la digestion (en kg kg^{-1})

ρ_{gaz} = densité du gaz produit (en kg m^{-3})

$\%_{CH_4}$ = teneur méthane dans le gaz (en % vol.)

Tableau 27 : Potentiel méthanogène de différentes sources de biomasse (Ward A.J. et coll. 2008)

	Potentiel méthanogène [$m^3_{CH_4} \text{ kg}^{-1}_{\text{solide brut}}$]
Déchets municipaux	0,11-0,59
Végétaux divers (paille, feuilles, graines)	0,189-0,42
Déchets de fruits, légumes, fumiers	0,148-0,473

III.3.7.4. Coproduit

Le principal coproduit de la méthanisation est le digestat, qui contient une grande partie de cendres (dont de l'azote, du phosphore, et du potassium). Ce digestat est un produit intéressant pour les agriculteurs puisque dans le cas de méthanisation de produit agricole, il est possible d'épandre le digestat sur les champs afin de les fertiliser.

III.3.8. Conclusion sur les procédés de prétraitement

Le Tableau 28 récapitule les procédés abordés et leurs caractéristiques principales.

Tableau 28 : Récapitulatif des procédés abordés

Biomasses	Procédé	Produit	Besoin énergétique	Rendement massique	Coût
			[MJ kg ⁻¹ produit]	[%]	[€GJ ⁻¹]
Biomasses lignocellulosiques (bois, résidus agricoles), déchets agro-alimentaires secs	Carbonisation	Charbon	4,9	0,2 – 0,35	10-25
	Torréfaction	Biomasse torréfiée	3,0	0,75-0,9	10
	Pyrolyse rapide	Bio-huile	3,8	0,5-0,8	10,5-28,1
	Pyrolyse rapide	Bio-slurry	1,2-5,2	0,67	8-10
	Gazéification	Syngaz	n.c.	n.c.	n.c.
Lisier, fumier, déchets agroalimentaires	Méthanisation	Biogaz	n.c.	0,7	4-6,5

*n.c. : non connu

De tous les procédés existants que nous venons de décrire, seules la carbonisation et la torréfaction seront conservées dans la suite de l'étude. En effet, les produits issus des autres procédés ne sont pas adaptés au cas étudié. Tout d'abord les produits gazeux, syngaz et biogaz ont été éliminés de l'étude à cause de la situation géographique de l'usine SG PAM, les hauts fourneaux étant implantés au cœur d'une ville. L'injection de gaz au haut fourneau requerrait une unité de stockage placée entre l'unité de production de biogaz ou de syngaz et le haut fourneau afin d'assurer l'homogénéité du gaz et la continuité dans son approvisionnement. Ce type d'installation est coûteux et difficile à mettre en place pour des raisons de sécurité. La bio-huile et le bio-slurry ont aussi été éliminés des produits biomasses utilisables du fait de son faible PCI pour la bio-huile, et des difficultés actuelles pour obtenir un produit satisfaisant à partir du procédé de production de bio-slurry.

Il est maintenant nécessaire de déterminer quelles biomasses seraient utilisables, et il faut pour cela identifier leurs disponibilités et les confronter avec le besoin de SG PAM.

III.4. Disponibilité de la biomasse

Afin de s'assurer de la viabilité d'une option biomasse pour la production de fonte, il est nécessaire de faire un état des lieux des ressources biomasses existantes. Ce travail permet de préciser la nature et les quantités des différentes biomasses disponibles. Dans ce cadre, différentes échelles d'observation peuvent être considérées : l'échelle locale (département et région), nationale, voire internationale.

III.4.1. Le bois énergie

Le bois est souvent classé en trois groupes distincts par les acteurs forestiers :

- le bois d'œuvre (BO), utilisé pour le mobilier et les bâtiments,
- le bois d'industrie (BI), utilisé en trituration, c'est-à-dire pour la production de papier et de panneaux de particules,
- le bois énergie (BE), utilisé pour le chauffage industriel ou domestique et pour produire de l'électricité.

Le bois énergie représente donc le bois issu de l'exploitation des forêts disponible en supplément du bois d'œuvre et du bois d'industrie. Il peut aussi bien s'agir de résidus forestiers que de résidus de l'utilisation des grumes (sciures, copeaux, chutes...). Le BI et le BE sont cependant souvent considérés comme une seule et même ressource appelée BIBE : le BI

comme le BE consistant en des morceaux de bois de petite taille, déchets ou sous-produits de l'exploitation forestière et de l'industrie du bois d'œuvre. Toutefois, une partie du BIBE n'est utilisable qu'en BE : c'est le cas des écorces par exemple, non utilisables dans le procédé de papeterie.

Note : les professionnels forestiers expriment les quantités de bois en volumes. Cependant, dans le cadre de ce travail nous avons, par souci de cohérence avec le reste du mémoire ; préféré les exprimer en unités de masse. Le facteur de conversion utilisé pour passer du volume à la masse est de $0,5 \text{ t}_{\text{MS}} \text{ m}^{-3}$, ce qui correspond à la valeur moyenne utilisée par l'IFN (2004). De plus, afin de s'affranchir des humidités variables, les masses données dans la suite de ce chapitre seront exprimées en matière sèche, sauf mention contraire.

III.4.1.1. Exploitabilité ou difficulté d'exploitation

Un paramètre important pour la détermination de la disponibilité de la biomasse bois est son exploitabilité. Ce paramètre influence fortement le coût de la ressource. Il peut se caractériser de diverses manières :

- l'impraticabilité du terrain, par exemple une pente supérieure à 50 %, la présence de cours d'eau, un terrain meuble,
- la difficulté technique de collecte, par exemple dans le cas des résidus forestiers, le ramassage manuel long et coûteux.

Cet aspect doit être pris en compte dans l'évaluation des ressources disponibles puisqu'une exploitation « difficile » requiert l'utilisation de techniques plus élaborées, comme le lançage, le câblage ou l'hélicoptage, techniques d'une part coûteuses et d'autre part en désaccord avec l'intérêt environnemental premier de l'utilisation de biomasse.

Ginisty et coll. (2007) ont quantifié l'exploitabilité de la biomasse forestière en définissant une notion « d'accessibilité du bois ». Cette accessibilité est définie pour les forêts de cinq grandes régions françaises sur la Figure 27 et se décompose en 4 classes :

1. facile : 100 % du bois est techniquement disponible,
2. moyen : 80 % du bois est techniquement disponible,
3. difficile : 30 % du bois est techniquement disponible,
4. très difficile : 0 % du bois est techniquement disponible.

La Figure 27 nous montre par exemple que dans la grande région Nord-Est, plus de 95 % du bois est facilement ou moyennement accessible.

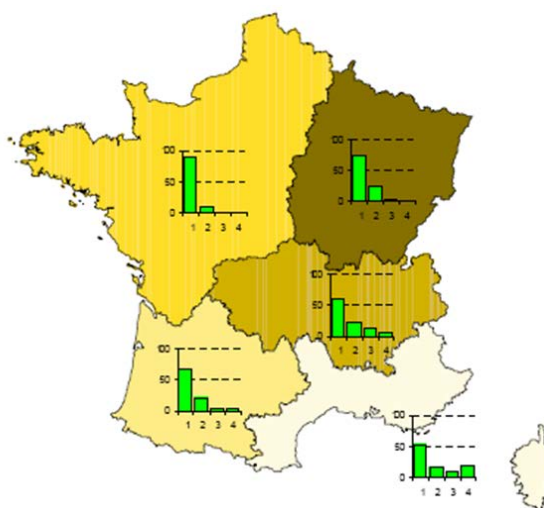


Figure 27 : Répartition surfacique des peuplements forestiers en fonction de la classe d'accessibilité et par interrégion (Ginisty C. et coll. 2007)

III.4.1.2. Disponibilité au niveau mondial

L'approvisionnement de biomasse à l'échelle mondiale est considéré comme peu viable d'un point de vue environnemental. Dans le cas de notre étude, où nous nous intéressons à des biomasses traitées, une partie de la biomasse est libérée lors de l'étape de traitement. Il paraît aberrant de transporter cette masse « morte » sur de grandes distances, en particulier pour les biomasses de faible densité (paille). Aussi, seuls les cas du bois énergie et du charbon de bois seront abordés à une échelle mondiale, afin de pouvoir comparer le cas brésilien au cas européen.

Au Brésil, la productivité surfacique des forêts varie de 10 à 40 m³ ha⁻¹ selon le type d'arbre (généralement plantations d'eucalyptus) et les techniques utilisées (clonage, automatisation) (Piketty M. et coll. 2009). Ces rendements élevés permettent une production intensive de charbon de bois. Par exemple, selon Shaw (2008), la production de 1 Mt_{fonte} an⁻¹ requiert une plantation de 45 000 ha d'eucalyptus. Mais pour des plantations de rendement plus classique, la production annuelle de 1 Mt de fonte à partir de charbon de bois nécessiterait environ 66 600 ha de plantation (en considérant un charbon à 80 % carbone, 10 % perte en manutention, 0,4 t_{carbone} t⁻¹_{fonte}, et une productivité surfacique de 25 m³ ha⁻¹).

Le cas brésilien n'est cependant pas directement transposable à un cas français. Il peut y avoir un problème de quantité et de constance de qualité du charbon de bois. L'exploitation de plantations d'eucalyptus clonés au Brésil permet d'approvisionner l'industrie sidérurgique avec un charbon de bois de qualité constante (une seule essence de bois) et en quantité suffisante. Par contre, les forêts françaises et européennes restreignent l'utilisation du charbon de bois à un emploi marginal avec un charbon hétérogène, dépendant des essences de bois exploitées. Si SG PAM s'approvisionne chez différents fournisseurs, la qualité du charbon dépendra de la région géographique de production du bois, du procédé et des fournisseurs... On ne sait pas encore bien comment les changements des propriétés physico-chimiques du charbon (dus à la diversité des bois utilisés et à leurs proportions variables selon la saison) influeraient sur le fonctionnement du haut fourneau. Par exemple, pour une utilisation en chargement gueulard, un bois dense fera un charbon plus dense et donc plus résistant, au contraire, un bois tendre serait à éviter. On peut néanmoins estimer que la surface nécessaire à la production de 1 Mt_{fonte} an⁻¹ à partir d'une filière au charbon de bois en France serait d'environ 800 000 ha, en prenant une productivité volumique française environ 6 fois plus faible qu'au Brésil, et pour une densité moyenne du bois de moitié moins élevée.

Les autres types de biomasses ne sont pas considérés à l'échelle mondiale. En effet, l'importation de biomasse non traitée autre que le bois serait coûteuse et difficile, la biomasse étant de faible densité, impliquant le transport de gros volumes.

III.4.1.3. Disponibilité de la biomasse bois énergie au niveau national

En France, deux faits expliquent la disponibilité du bois énergie : l'augmentation de la ressource en bois sur pieds et la faible fraction de l'arbre utilisée en bois d'œuvre.

Le premier phénomène s'explique par le fait que l'exploitation du bois en France est plus faible que l'accroissement de la forêt. Les grands massifs ligneux français croissent d'environ 51,3 Mt an⁻¹, ce qui représente 0,54 % d'accroissement surfacique annuel, ou encore un gain de 19 600 ha an⁻¹ entre 2000 et 2005 (UNECE et coll. 2011). Sur ces 51,3 Mt, seuls 30 Mt sont exploités (Agreste 2007). Cela laisse chaque année environ 20 Mt de bois non prélevés en forêt. En 2006 sur la ressource disponible, seulement 6 Mt ont servi en bois d'industrie (papeterie, panneaux de particules) et 1,5 Mt au bois énergie (Ministère de l'économie de l'industrie et de l'emploi 2008).

Cette disponibilité supplémentaire due à l'accroissement de la forêt doit cependant être nuancée par le fait qu'une partie de cette ressource disponible est difficile à exploiter. Ginisty et coll. (2007) donnent des chiffres prenant compte de la difficulté d'accessibilité des forêts (Tableau 29). Ces chiffres signifient qu'en France, sur la ressource théoriquement disponible, 18,1 Mt an⁻¹ seraient potentiellement exploitables chaque année, à quoi on pourrait ajouter 7,1 Mt an⁻¹ dus aux événements conjoncturels (tempêtes ou autres imprévisibles), soit un total de 25,2 Mt an⁻¹ disponibles sur pieds.

Tableau 29 : Disponibilités théoriques de BIBE en (Mt an⁻¹) avec réfaction due à l'accessibilité (Ginisty C. et coll. 2007)

Pérenne	Conjoncturelle	Total
18,1	7,1	25,2

Le second aspect s'explique par le fait que l'intégralité d'un arbre abattu n'est pas utilisable en BO. En effet, sur les 30 Mt d'arbres abattus annuellement pour utilisation en BO, environ 60 % de bois fort commercial est utilisé en scierie, soit 18 Mt. Les 12 Mt restantes peuvent potentiellement faire partis du BIBE. A titre d'exemple, la FAO (1990) décompose le bois d'œuvre en divers sous-produits, listés avec leurs proportions respectives dans le Tableau 30. Près de 40 % de l'arbre est laissé en forêt, et seuls 30 % sont réellement utilisés pour des activités d'ouvrages. Les 30 % restants, sciures, écorces ou plaquettes, sont parfois valorisés sous forme de panneaux de particules, parfois en bois énergie. Ainsi annuellement environ 12 Mt de résidus forestiers et environ 9 Mt de déchets de scieries sont disponibles pour le BIBE.

Tableau 30 : Répartition des pertes lors de la production de bois d'œuvre

	Proportion [%]	Taille [mm]	Humidité [%]	Cendres [%]
Laissé en forêt				
Cime, branches, feuillage	23,0	-	30-60	3,0-20
Souche (sans les racines)	10,0	-		
Sciure	5,0	-		
Opération de scierie				
Blocs, bords et découpes	17,0	> 100	40-60	5,0-50
Sciures poudre	7,5	0-1	2-10	0,1-0,5
Sciures autres	7,5	1-10	25-40	0,5-2,0
Pertes diverses	4,0	-	-	-
Ecorce	5,5	1-100	25-75	1,0-2,0
Bois/planches	28,0	-	-	-

L'IFN (Inventaire Forestier National) qui recense les populations dans les forêts françaises a mis à disposition un outil en ligne permettant d'estimer les quantités de résidus forestiers, aussi appelés rémanents, disponibles en France métropolitaine. Le terme « forêt » concerne trois types de surfaces boisées : les boqueteaux (entre 0,5 et 4 ha), les bois (plus de 4 ha) et les peupleraies (peupliers cultivés) (Derrière N. et coll. 2006). Dans son outil, l'IFN dissocie les rémanents forestiers en deux catégories selon leur taille : le petit bois et le menu bois. Ils sont définis sur la Figure 28 et des exemples de leur répartition, assez similaire d'un bois à un autre, sont donnés dans le Tableau 31. Des études menées par l'ADEME (2008) ont montré que l'exploitation des rémanents pouvait avoir des impacts négatifs sur les sols forestiers, notamment en terme d'appauvrissement et de tassement des sols. De leur étude ressort que seuls les rémanents de type petit bois (diamètre > 7 cm) devraient être exploités.

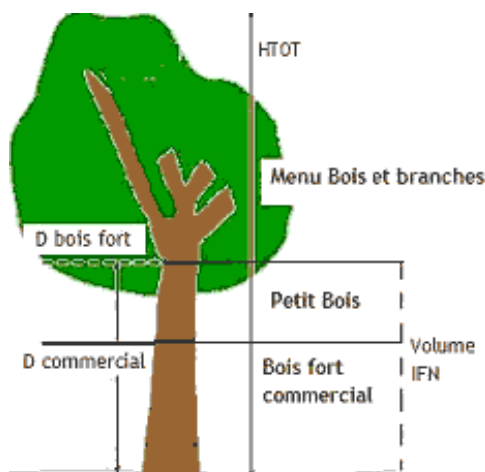


Figure 28 : Schéma des compartiments de l'arbre (IFN et coll. 2004)

Tableau 31 : Exemples de répartitions du bois selon la taille pour des feuillus et des résineux, données en % volumique (IFN et coll. 2004)

Essence	Bois fort commercial	Petit bois	Menu bois
Chêne	50	12	38
Hêtre	49	13	38
Pin maritime	72	3	25
Douglas	71	4	25

Il faut également noter que depuis que les études citées ont été effectuées (2005 à 2008), le secteur du bois énergie en France s'est fortement développé et les disponibilités effectives sont susceptibles d'avoir évolué. Le problème est de connaître la disponibilité réelle actuelle. Le rapport Prevot (2010) par exemple, annonce que 17 Mt an⁻¹ de sous-produits issus de la sylviculture, non encore exploitées, seraient disponibles en France. Ces sous-produits correspondraient vraisemblablement aux rémanents forestiers (branches, feuillage), ce qui correspondrait aux chiffres de Ginisty et coll. (2007) vus précédemment.

Les déchets de l'industrie du bois peuvent être de deux natures : résidus de scierie, représentant environ 55 % du volume de bois entrant en scierie (Tableau 30) ou déchets de fin de vie de bois d'œuvre. Ils sont classés en trois catégories (Prevot G. 2010) :

- la biomasse : bois exempt de toute contamination ;
- les bois faiblement adjuvantés : palettes, panneaux, bois d'ameublement ;
- les bois traités à la créosote, aux CCA (cuivre, chrome et arsenic) et les bois ignifugés.

La quantité de déchets secs et non contaminés de l'industrie du bois en France est estimée entre 2 et 2,8 Mt an⁻¹ (Masero J. 2010; Prevot G. 2010). Les sciures peuvent être utilisées pour la fabrication de combustibles granulés et les chutes, dosses et délignures peuvent être broyées pour être transformées en plaquettes. Cependant seulement 1 Mt serait effectivement disponible. Des 1,0 à 1,8 Mt restantes, deux tiers sont valorisés comme matière première (panneaux, charbon de bois) et un tiers est valorisé énergétiquement sur place. De même 13,4 Mt an⁻¹ de déchets humides de l'industrie du bois seraient produits (principalement écorce), dont seuls 4,0 Mt seraient effectivement disponibles, le reste étant déjà valorisé énergétiquement en interne.

III.4.1.4. Disponibilité au niveau régional

Chaque année, l'IFN actualise les populations forestières dans quelques départements français. Le dernier inventaire réalisé en Meurthe-et-Moselle a eu lieu en 1990, en Moselle en 1993, dans les Vosges en 1992, en Meuse en 1991, en Alsace en 1999-2002, et en Franche Comté en 1994 et 1995. Les valeurs sont récapitulées pour la Lorraine et la Franche Comté dans le Tableau 32 (Ginisty C. et coll. 2007; IFN 2009). En regroupant ces deux régions, les chiffres de l'IFN et de Ginisty et coll. montrent que 2,5 à 4 Mt seraient potentiellement disponibles annuellement dans l'est de la France. L'outil en ligne de l'IFN (2004) permet de ne considérer que la biomasse de taille suffisante pour éviter l'appauvrissement du sol. Il montre que 502 kt seraient disponibles. Mais, du fait de l'ancienneté de l'inventaire, des événements climatiques ayant eu lieu depuis, et de l'évolution du marché de la biomasse, il est difficile de savoir quelle fiabilité accorder à ces informations.

Tableau 32 : Disponibilité en bois énergie en Lorraine et en Franche-Comté (toutes les valeurs sont exprimées en Mt an⁻¹)

Région	Accroissement	Exploitation	Dont BIBE	Disponibilité	
				[1]	[2]
Lorraine	3	1,8	1,4	1,2	1,5-2,5
Franche-Comté	2,5	1,3	0,9	1,4	1-1,5

1 : (IFN et coll. 2004) ; 2 : (Ginisty C. et coll. 2007)

Plus récemment, Renaud (2011) affirme que dans la région Lorraine, seulement 100 kt de BIBE seraient encore disponibles. Selon différents acteurs du marché de la biomasse forestière, le marché bois énergie sur la grande région Lorraine/Alsace/Franche-Comté serait déjà en partie bloqué, pour deux principales raisons. D'une part, contrairement au reste de la France,

cette grande région dispose d'un grand nombre de forêts domaniales ou communales, gérées par l'ONF (environ 63 %, contre 25 % au niveau national) et l'ONF préfère éviter l'exploitation des rémanents forestiers, ce qui n'est pas toujours le cas dans les forêts privées. D'autre part, les professionnels du bois étrangers (principalement d'Allemagne) s'y approvisionnent puisqu'ils peuvent y trouver des prix plus intéressants qu'en Allemagne ou en Belgique, où les aides pour l'utilisation énergétique de biomasse sont plus favorables qu'en France.

Il ne faut cependant pas s'arrêter à ce chiffre puisque depuis 2011 plusieurs organismes de production forestières s'emploient à intégrer la production de bois énergie dans la sylviculture afin d'en accroître la production. Par exemple ONF Energie et Sylvowatts souhaitent développer leur production de plaquette forestière pour atteindre respectivement 600 et 150 kt annuelles d'ici 2014 et 2016 (Fraud B. et coll. 2012). Enfin la DRAAF (2012) a effectué une compilation des différentes valeurs de la littérature concernant la disponibilité du bois énergie en Lorraine entre 2009 et 2012, la chiffrant entre une disponibilité nulle et 450 kt. Il faut noter que contrairement aux données brutes de l'IFN, ces derniers chiffres prennent en compte plusieurs facteurs de raréfaction (exploitabilité, sensibilité des sols, facteurs économiques et consentement à vendre).

Concernant les déchets de l'industrie du bois, la même tendance qu'au niveau national se retrouve : une grande partie des déchets produits est exploitée en interne en valorisation énergétique ou pour la production de panneaux de particules. Le Tableau 33, qui donne la répartition des sous-produits d'une scierie ainsi que leurs principales utilisations, montre que seulement 11 % peuvent être valorisés énergétiquement. Dans ce cas, il faut noter que la valorisation énergétique comprend généralement l'utilisation énergétique en interne.

Tableau 33 : Répartition des produits et de leurs utilisations dans l'industrie du bois en Lorraine (GIPEBLOR et coll. 2006)

	Répartition [%]	Panneaux [%]	Papier [%]	Chaudière [%]	Charbon [%]	Compost [%]	Particulier [%]
Plaquette	29,1 à 41,4	9 à 37	45 à 91	0 à 18	0	0	0
Sciures	23,9 à 32,9	80 à 99	0	0	0	0	1 à 4
Ecorces	11,9 à 13,2	0	0	42 à 48	0	22 à 26	0 à 8
Purges	12,5 à 35,1	93 à 99	0	0	0 à 7	0	0 à 1

Un autre type de déchets sont les palettes de bois, qui, après utilisation, sont récupérées puis revalorisées, à savoir reconstruites si cela est possible, sinon elles sont broyées et dirigées vers une unité de valorisation énergétique. L'entreprise Epalia, sur son site de Toul, traite ainsi 45 000 palettes par mois, dont seulement 0,8 kt an⁻¹ sont broyées et revalorisées. Il s'agit donc de quantités relativement faibles.

III.4.1.5. Problématique du transport de résidus forestiers

Le transport du bois représente une question critique pour le secteur du bois énergie. En effet, selon Angus-Hankin et coll. (1995), le transport représente 20 à 40 % du coût final du bois énergie. Les résidus forestiers ont une densité brute (non compactée) de l'ordre de 140 kg m⁻³ apparent, or pour optimiser le transport (optimiser la masse de produit transporté par rapport au volume maximum transportable, en transportant toujours le poids maximal autorisé) il est nécessaire que le produit transporté ait une densité minimum comprise entre 213 et 312 kg m⁻³ apparent. Afin d'augmenter la densité des résidus plusieurs techniques peuvent être utilisées :

- Compactage (densité jusqu'à 300 kg m⁻³ apparent)
- Mise en botte/balle (jusqu'à 300 kg m⁻³ apparent)

- Transformation en plaquette (jusqu'à 340 kg m⁻³ apparent)
- Presse (jusqu'à 357 kg m⁻³ apparent)

III.4.2. Les résidus agricoles (paille de céréales et maïs)

III.4.2.1. La paille

Disponibilité de la biomasse au niveau national

La paille est une ressource relativement abondante en France puisqu'il s'agit d'un résidu de la culture des céréales (blé, orge, avoine, seigle). Environ 30 millions de tonnes sont produites chaque année, dont 40 % restent généralement sur la parcelle et sont enfouis ou brûlés, et environ 55 % sont utilisés comme litière ou en alimentation pour le bétail. D'après ces chiffres de l'ADEME (1998) seuls 1,5 Mt de paille seraient alors exploitables pour l'énergie. Dans un article plus récent (Sourie J.C. 2006), l'INRA estime que sur les 30 Mt annuelles, 4,5 à 5,5 seraient affectables à l'énergie. L'association Record, dans son rapport (Prevot G. 2010) fixe ce chiffre à seulement 2,8 Mt an⁻¹. Il faut noter que la paille est une ressource biomasse encore peu exploitée en France et sa collecte n'est pas encore organisée. Aussi, peu de données sont accessibles quant à sa disponibilité régionale. On peut néanmoins estimer la quantité de paille produite en s'appuyant sur les tonnages de céréales à paille produits, qui sont connus (Tableau 34). A partir de ces chiffres, on peut calculer les tonnages de pailles théoriquement produites en se basant sur un rendement paille/grains. Ce rendement varie entre 0,5 et 0,9 tonne de paille par tonne de grains (voir annexe D). Ce calcul permet d'estimer la quantité de paille produite annuellement en France entre 21,3 à 38,4 Mt, ce qui rejoint les chiffres cités précédemment.

Tableau 34 : Quantités de céréales produites en France (production en Mt de grain an⁻¹) (Ministère de l'agriculture 2012)

Céréales (total)	63,8
Blé tendre	33,9
Orges, escourgeons	8,8
Maïs	15,9
Autres céréales	5,3

Les problèmes majeurs concernant cette ressource sont la très forte disparité entre les régions et la nécessité de mettre en place des organisations de collecte (Prevot G. 2010). En outre, les agriculteurs rechignent à vendre une partie de leur paille, généralement laissée en andains, car cela pourrait dégrader les propriétés de leur sol. Pour compenser, il leur faut utiliser des fertilisants supplémentaires dont le coût doit pouvoir être équilibré par la vente de la paille (voir annexe C). Ainsi, une étude de l'INRA montre qu'il serait possible de convaincre 50 % des producteurs de vendre leur paille en andains si le coût d'achat atteignait le double de la valeur des fertilisants supplémentaires, soit 20 €t⁻¹. 80 % des producteurs seraient prêts à vendre leur paille en andains pour un prix de vente supérieur à 30 €t⁻¹. Dans ces conditions, jusqu'à 30 % de la paille produite serait accessible, soit environ 10 Mt an⁻¹.

Disponibilité au niveau régional

Comme dans le cas national, la quantité de paille produite annuellement par région ou département peut être estimée par le calcul. A partir des productions annuelles de grains (Tableau 35), on estime que respectivement 377 à 678 et 1 280 à 2 300 kt de paille sont produites en Meurthe-et-Moselle et en Lorraine. En considérant que les exploitants seraient prêts à vendre un tiers de leur paille, cela signifierait que 126 à 226 kt et 470 à 850 kt de paille seraient disponibles respectivement en Meurthe-et-Moselle et en Lorraine.

Tableau 35 : Quantités de grains de céréales produites en Lorraine (production en kt an⁻¹)(CAL 2010; Agreste 2011)

	Lorraine (Agreste 2011)	Meurthe et Moselle (CAL 2010)
Céréales	2 318	754
Oléagineux	498	119

III.4.2.2. Autres résidus de céréales

L'industrie du grain produit une autre forme de résidus en grande quantité, à savoir le son de blé ou les cosses d'avoine par exemple. Prevot (2010) estime la production de ces résidus à 19 Mt an⁻¹. Cependant, du fait de leur teneur élevée en protéines, ils sont entièrement consommés pour la nourriture animale. De ce fait le coût de cette ressource est élevé et elle ne peut être considérée comme disponible.

III.4.2.3. Cannes de maïs

Disponibilité de la biomasse au niveau national

Outre le blé et l'orge, l'agriculture française produit également de grandes quantités de maïs, dont la culture produit également des résidus exploitables : les cannes. Prevot (2010) explique que 3 800 kt an⁻¹ de cannes de maïs seraient disponibles en France en ne prélevant que 30 % du gisement. De plus il n'y aurait pas d'utilisations concurrentes autres que le brûlage ou le retour à la terre. Il faut néanmoins noter que les caractéristiques chimiques des cannes de maïs n'en font pas la biomasse idéale pour utilisation en haut fourneau. Comme on peut le voir dans le Tableau 36, la quantité de cendres et la teneur en phosphore sont élevées.

Tableau 36 : Caractéristiques des cannes de maïs ensilées (Leclerc M.C. 2003)

	Moyenne	Extrêmes
Humidité [%]	78	70-81
cendres [%MS]	8	7-9,7
Azote [%MS]	6	5-7
Cellulose [%MS]	35	30-37
Calcium [g kg ⁻¹ _{MS}]	5	-
Phosphore [g kg ⁻¹ _{MS}]	1	-

Il est possible d'estimer le coût moyen de cette biomasse : selon (Leclerc M.C. 2003), le rendement moyen de cannes récupérées est de 5 à 6 t_{cannes} ha⁻¹. Le coût de la récolte étant d'environ 90 €ha⁻¹ et le taux de matière sèche de 22 % (Tableau 36), on arrive à un coût de 15 à 18 €t⁻¹_{humide}, soit environ 68 à 82 €t⁻¹ de matière sèche.

Disponibilité au niveau régional

Comme pour la paille, on peut estimer la quantité de cannes de maïs produite localement en Meurthe-et-Moselle et en Lorraine en s'appuyant sur les chiffres de production de grain et les rendements en tonnes de canne par tonnes de grain produit. Ce rendement est de l'ordre de 1 t_{cannes} t⁻¹_{grain}, ce qui permet d'estimer des disponibilités de 38,6 et 130 kt an⁻¹, respectivement en Meurthe-et-Moselle et en Lorraine.

III.4.3. Déchets d'élevage

Un dernier type de déchets agricoles sont les déchets issus de l'élevage de bétail. Environ 20 millions de bovins, 182 millions de volailles et 15 millions de porcins sont élevés en France. Afin d'estimer la production annuelle de déchets d'élevage, on peut s'appuyer sur les valeurs moyennes de production journalière ou annuelle de fumier et de lisier par type de bétail. Les Tableaux 37 et 38 donnent des ordres de grandeurs de ces valeurs (Werner U. et coll. 1989) ainsi que les quantités estimées pour la France, la Lorraine et la Meurthe-et-Moselle. Du fait de leur forte teneur en eau, ces déchets ne sont adaptés qu'à la production de biogaz (paragraphe II.3.7), et ils sont de plus très fréquemment épandus en tant que fertilisant sur les champs.

Tableau 37 : Quantités de fumier rapportées au bétail, par tête et par jour en France, en Lorraine et en Meurthe-et-Moselle

	Fumier [kg _{brut} jour ⁻¹ tête ⁻¹]	France [Mt _{brut} an ⁻¹]	Lorraine [kt _{brut} an ⁻¹]	Meurthe-et-Moselle [kt _{brut} an ⁻¹]
Poulets	0,0675-0,09	2,1 – 2,9	8,7– 12,0	n.c.
Porcs	0,6-1,5	1,0 – 2,5	7,4 – 18,7	2,1 – 5,2
Bovins	6,75-40	15,1 – 89,6	779 – 4 617	163-968
<i>Total</i>	-	18,21 – 95,0	795 – 4 647	165 - 973

Tableau 38 : Quantités de lisier rapportées au bétail, par tête et par jour en France, en Lorraine et en Meurthe-et-Moselle

	Lisier [kg _{brut} jour ⁻¹ tête ⁻¹]	France [Mt _{brut} an ⁻¹]	Lorraine [kt _{brut} an ⁻¹]	Meurthe-et-Moselle [kt _{brut} an ⁻¹]
Poulets	0,0675-0,09	2,1 – 2,8	8,7– 11,6	n.c.
Porcs	0,9-2,25	1,5 – 3,75	11,1 – 27,8	3,2 – 7,9
Bovins	5,4-40	12,1 – 89,5	623 – 4 616	130-966
<i>Total</i>	-	15,7 – 96,0	643– 4 656	134- 974

III.4.4. Les cultures dédiées

On peut considérer plusieurs types de cultures dédiées : les cultures agricoles « énergétiques » et les taillis à court ou très court temps de rotation (TCR ou TTCR). Les principales essences de cultures énergétiques sont la luzerne, la fétuque et le miscanthus. Les deux premières sont déjà relativement connues, les deux dernières sont très récentes et ne sont expérimentées que depuis la fin des années 90 pour subvenir au besoin en biomasse énergétique (principalement production de bio-carburants). Le Tableau 39 ci-dessous permet de comparer la productivité et la durée de cycle de différentes essences et types de cultures dédiées.

Tableau 39 : Caractéristiques techniques des différents types de cultures dédiées existantes (AILE 2007; Nijskens P. 2007; FCBA 2010)

	Rotation [an]	Cycle [an]	Productivité [t ha ⁻¹ an ⁻¹]	PCI [MJ kg ⁻¹]
Luzerne, fétuque	< 1	3 à 10	10	16,9
Miscanthus	1	15	12	18
Saule, peuplier	3	21	10-15	17,6

Selon l'association France Miscanthus, il y avait 2000 ha de plantations de miscanthus en France en 2009, ce qui représente un potentiel de seulement 24 kt an⁻¹. En fait, les exploitations de miscanthus sont réalisées sur projet, cela signifie que lorsqu'un projet fortement consommateur de biomasse est mis au point, il est possible d'envisager l'implantation de champs de miscanthus dans les alentours du lieu du projet. Cette ressource n'est donc techniquement pas disponible pour notre étude.

La luzerne quant à elle est une culture qui se développe, avec environ 300 000 ha en France. Son rendement étant d'environ $13 \text{ t ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$, on peut estimer qu'environ 3,9 Mt seraient disponibles annuellement. Il faut cependant noter que la luzerne est principalement cultivée pour sa teneur en protéine, qui en fait une ressource intéressante pour l'alimentation animale, utilisation concurrente de la biomasse énergie. C'est donc une ressource difficile d'accès.

Selon l'IFN, il y aurait en France 193 000 ha de peupleraies, représentant une production annuelle d'environ 2,4 Mt. Selon l'inventaire de 1991, 2,4 Mha de taillis existeraient en France, soit 30 Mt an^{-1} . Les taillis sont cependant principalement situés dans les régions du sud de la France.

III.4.5. Déchets de l'industrie des biocarburants

L'industrie des biocarburants de première génération génère des coproduits que sont les drèches, pulpes et tourteaux. Les drèches sont la fraction solide restante des graines (blé, orge, maïs) après fermentation de l'amidon en alcool. Les tourteaux sont les résidus solides des graines après extraction de l'huile des graines d'oléagineux. Lors de la production de biocarburants, 1 tonne de blé produit 370 litres d'éthanol et 370 kg de drèches ; 1 t de maïs produit 400 litres d'éthanol et 320 kg de drèches (Daniel Ballerini 2006).

Selon Prevot (2010), 5 usines des Groupes Tereos, Cristal Union, Soufflet, Roquette et Agengoa Bioenergy produisent des biocarburants. Sur ces 5 sites, environ 700 000 tonnes de drèches de blé et de maïs seraient disponibles. Cette ressource est riche en protéine et est utilisée de préférence en alimentation animale. Elle n'est donc pas accessible car son prix est trop élevé, 110 à 196 €t^{-1} pour les drèches de blé et 135 à 176 €t^{-1} pour les tourteaux de colza ou de tournesol.

III.4.6. Déchets organiques

Les boues résiduaires de stations d'épuration représentent une ressource importante puisqu'en France, 850 kt sèches étaient produites en 1990. En 2005, leur production était estimée à 1,3 Mt annuelles. 25 % d'entre elles étaient placées en décharge, 55 % étaient valorisées dans l'agriculture, et 20 % étaient incinérées (Guivarch A. 2001). Elles ne sont pas une ressource biomasse idéale puisqu'elles sont très humides ($> 70 \%$ d'eau), ce qui implique un besoin énergétique important pour les sécher et les exploiter.

En Lorraine 37,5 kt de boues de stations d'épuration ont été produites en 2009. 19,9 kt de ces boues ont été utilisés en épandage, 12,8 kt en compostage, 3 kt en incinération et 1,5 kt ont été placés en décharge (Chambre d'Agriculture de Lorraine 2009).

III.4.7. Les déchets agroalimentaires

Les industries agroalimentaires produisent en France une importante quantité de déchets organiques, principalement sous forme humide : environ 2 600 kt (matière sèche) de boues et d'effluents. Ces déchets sont valorisés de différentes manières : 1 210 kt en épandage (principalement les déchets des industries laitières et fruitières), 49 kt sont compostées (déchets des industries de boissons, viandes et laiteries), 1 200 kt partent en station d'épuration (déchets des industries des viandes, laitières et boissons), 46 kt sont méthanisées (déchets d'industries laitières), 127 kt sont incinérées (déchets de viandes et poissons), 20 kt sont valorisées pour les

matières (déchets de viandes, fruits et d'industries laitières). Seule la fraction incinérée serait potentiellement exportable et utilisable dans notre cas, soit 127 kt.

En Lorraine, selon l'Agreste (2008) ces boues et effluents représentent 64,7 kt : 10,9 kt de déchets organiques et 26,8 kt d'autres déchets (verres, plastiques, métaux, papiers cartons, bois, autres).

III.4.8. Charbon de bois

Le charbon de bois est également une ressource biomasse à considérer. Cette ressource a l'intérêt d'être un produit raffiné : comme expliqué dans le chapitre II, le pouvoir calorifique et la forte teneur en carbone du charbon de bois lui permettrait d'être utilisé directement dans la filière de production de fonte.

En France la production de charbon de bois représente environ 50 kt an⁻¹. Le besoin en charbon de bois domestique – pour utilisation en barbecue ou restauration – s'élève à 100 kt an⁻¹. Les 50 kt manquantes sont assurées par une importation massive depuis des pays de l'Est. Dans l'Est de la France, deux producteurs principaux sont établis : Carbo France à Ecurey (Meuse) et Gbmf à Leuglay (Côte d'Or) produisant respectivement 10 et 5 kt an⁻¹. Gbmf dispose d'une unité de production annuelle de 15 kt à Neussargues (Cantal).

Le charbon peut aussi être acheté à l'étranger. En tant que produit fini, son transport sur de grandes distances serait plus rentable que celui de la biomasse brute. De grandes quantités de charbon sont produites en Asie du Sud Est et en Amérique du Sud. Par exemple, l'entreprise norvégienne Norsilva AS s'est spécialisée dans l'approvisionnement de charbon de bois et dispose d'une capacité d'approvisionnement de 100 kt an⁻¹ de charbon de bois produit en Asie du Sud Est, cette capacité d'approvisionnement pourrait cependant être augmentée au besoin.

Il serait donc possible de faire produire du charbon de bois par des producteurs locaux, ou bien de l'importer de pays étrangers. Le principal problème associé à l'achat de charbon de bois industriel en France ou en Europe est financier : le charbon étant avant tout destiné à un usage domestique (barbecue), son coût est relativement élevé. Les coûts et les quantités de différentes qualités de charbon de bois proposées par les trois entreprises cités précédemment ont été listés dans le Tableau 40.

Tableau 40 : Coûts de charbon de bois chez les producteurs contactés

	Granulométrie [mm]	Disponibilité max. [t an ⁻¹]	Prix [€t ⁻¹]
Norsilva AS			
Blocs	> 10	Selon besoin	~350 (livrées)
Fines	0-10	Selon besoin	~320 (livrées)
Poussières	0-5	Selon besoin	~320 (livrées)
Carbo France			
Blocs	> 20	8000	750 (HT non livrées)
Fines 1	10-20	750	180 (HT non livrées)
Fines 2	0-10	750	180 (HT non livrées)
Poussières	0-6	450	180 (HT non livrées)
Gbmf			
Fines 1	5-15	550	300 (livrées)
Fines 2	0-5	550	250 (livrées)
Poussières	< 0.5	320	250 (livrées)
Autres	> 20	n.c.	220-400

III.5. Exploitation durable de la biomasse forestière

L'utilisation de biomasse en guise de ressource énergétique est envisageable, sous condition que les sites de production de biomasse soient gérés durablement. L'exploitation durable est définie comme « l'intendance et l'utilisation de forêts et de surfaces forestières d'une manière et à un rythme qui garantissent le maintien de leur biodiversité, productivité, capacité de régénération, vitalité et leur potentiel de remplir à présent et dans l'avenir leurs fonctions écologiques, économiques et sociales, à des niveaux locaux, nationaux et globaux, et qui ne détériorent pas les autres écosystèmes» (Stupak I. et coll. 2007).

Dans ce cadre, il existe des réglementations nationales dans certains pays, indiquant le taux d'utilisation maximale des parcelles et des périodes de jachères pour l'agriculture. Mais il existe encore peu de réglementations nationales ou internationales concernant la gestion durable des forêts. Cependant des labels, basés sur des critères définis, ont été créés pour garantir des productions respectant des normes durables. A cela doit s'ajouter la préservation de la qualité des sols utilisés par l'amendement.

En Europe, la PAC a mis en place une jachère environnementale obligeant les agriculteurs à consacrer au minimum 3 % de la SCOP de leurs exploitations à une surface de couvert environnemental ; en France cela représente 250 à 500 000 ha.

Dans le cadre du processus des conférences ministérielles pour la protection des forêts, des critères ont été définis pour caractériser une gestion forestière durable. Ces critères ont été compilés sous la forme d'une certification internationale appelée PEFC (« Programme de reconnaissance des certifications forestières », « Programme for the Endorsement of Forest Certification » en anglais) (PEFC 2010) :

- conservation et amélioration appropriée des ressources forestières et de leur contribution aux cycles mondiaux,
- maintien de la santé et de la vitalité des écosystèmes forestiers,
- maintien et encouragement des fonctions de production des forêts (bois et non bois),
- maintien, conservation et amélioration appropriée de la diversité biologique dans les écosystèmes forestiers,

- maintien et amélioration appropriée des fonctions de protection de la gestion des forêts (notamment sol et eau),
- maintien d'autres bénéfiques et conditions socio-économiques.

Un second label international existe : le label FSC. Celui-ci repose sur 10 principes et est de fait plus contraignant (FSC 2012).

III.6. Conclusion sur la biomasse

Pour conclure, le Tableau 41 liste les différents types de biomasses dont nous avons parlé et en donne les disponibilités à différentes échelles.

En ne considérant plus que la carbonisation et la torréfaction comme procédé viables pour l'étude, il est possible d'évaluer l'étendue du besoin en biomasse brute pour SG PAM. Ces procédés offrent des rendements en matière sèche compris entre 0,3 et 0,8. Pour une réduction des émissions d'environ 20 %, cela nécessiterait un besoin en produit équivalent coke d'environ 56,4 kt an⁻¹. D'après les valeurs de taux de remplacement données dans le chapitre I (analyse de l'existant), cela correspondrait à un besoin de 112,8 et 70,5 kt an⁻¹ pour, respectivement, la biomasse torréfiée et du biochar, soit entre 141 et 235 kt_{MS} an⁻¹ de biomasse brute.

A partir de ces valeurs, on peut ne retenir que 3 types de biomasses si seule l'exploitation locale (régionale) est considérée : le bois énergie, la paille de céréale et les cannes de maïs. Cependant, les fortes teneurs en cendres et plus particulièrement en phosphore des cannes de maïs (voir Tableau 36) empêcheraient son utilisation dans le processus de fonte. De la même manière, la paille peut également avoir une teneur en cendres importante, qu'il faudra surveiller en cas d'utilisation. Enfin le charbon de bois, disponible à l'échelle mondiale, reste également une ressource possible dans le cadre de notre étude, puisqu'il s'agit d'un produit à fort pouvoir calorifique.

Tableau 41 : Synthèse des disponibilités des principales biomasses en Lorraine, en France et dans le monde. Les quantités sont exprimées en kt_{MS} an⁻¹.

	Lorraine	France	Monde
Bois énergie	100 - 600	25 200	n.c.
Pailles céréales	470 - 850	~10 000	n.c.
Cannes de maïs	130	3 800	n.c.
Miscanthus	n.c.	24	n.c.
Déchets organiques	~ 15	127	n.c.
Charbon de bois	0	0	> 100

IV. Modélisation

IV.1. Intérêts du couplage méthodologique modélisation systémique/analyse de cycle de vie

Afin de disposer de données d'Inventaires de Cycle de Vie (ICV) fiables pour les principaux procédés nouveaux ou sujets à modification, le haut fourneau, l'unité d'agglomération et le procédé de traitement de la biomasse, nous avons développé des modèles physico-chimiques détaillés de ces procédés en utilisant le logiciel Aspen Plus.

Aspen Plus est un logiciel de modélisation systémique de procédés sous forme de diagrammes de flux. Il est doté d'une base de données thermodynamiques, permettant de calculer des bilans de matières et d'énergie pour des réactions chimiques (à l'équilibre thermodynamique, fonctions de cinétiques ou encore à partir d'avancements définis par l'utilisateur), pour des processus physiques (compression, séparation, etc.) et des échanges d'énergie. Les opérations unitaires sont modélisées sous la forme de blocs reliés entre eux par des flux de matière, de chaleur ou de travail. Les propriétés des flux d'entrée (composition, débit massique, température et pression) sont fixées par l'utilisateur et les flux suivants sont calculés de manière séquentielle, la séquence pouvant être définie automatiquement par le logiciel ou manuellement. Le logiciel et les principaux blocs de calcul utilisés dans ce chapitre sont présentés plus en détail dans l'annexe V.

Le couplage méthodologique ICV/modélisation physico-chimique a deux principaux avantages sur les techniques classiques d'inventaires de cycle de vie (Iosif A.M. 2009). D'une part, il est possible d'obtenir des données pour des fonctionnements particuliers des procédés, dans des conditions non standard, ou bien pour un procédé industriel non encore existant. Dans notre cas le haut fourneau utilisant de la biomasse est un procédé existant dont on envisage le fonctionnement en conditions non standard, et le procédé de prétraitement peut quant à lui être considéré comme un procédé nouveau. D'autre part, l'utilisation de la modélisation systémique permet d'assurer le bouclage des bilans massiques et énergétiques sur les procédés considérés et donc aussi sur l'inventaire d'ACV, ce qui n'est pas toujours le cas des inventaires issus de mesures industrielles, de questionnaires, ou provenant de la littérature.

IV.2. Modélisation du procédé de prétraitement

IV.2.1. Intérêts de la modélisation de l'unité de pyrolyse

Il s'agit dans un premier temps d'évaluer les besoins énergétiques d'un procédé permettant d'obtenir une biomasse torréfiée ou carbonisée, puis de réaliser une première optimisation simple afin d'utiliser au mieux l'énergie libérée dans les gaz lors de la pyrolyse. Enfin la modélisation doit permettre de réaliser un inventaire des émissions liées au procédé.

IV.2.2. Modélisation de l'unité de pyrolyse

IV.2.2.1. Choix du procédé : réacteur à four tournant

Comme nous l'avons vu précédemment au chapitre III, la pyrolyse consiste à dégrader la biomasse en la chauffant dans une atmosphère privée d'oxygène. Celle-ci provoque la dégradation des trois éléments constitutifs de la biomasse, la cellulose, l'hémicellulose et la lignine. Trois produits sont alors formés : une phase solide (appelée charbon ou char), une

phase gazeuse et une phase liquide (aussi appelée goudrons). Il est possible de favoriser la production d'une ou deux de ces phases en jouant sur les paramètres opératoires du procédé de pyrolyse. On en dénombre trois principaux : la température de chauffe, le temps de séjour et la vitesse de chauffe. Ce dernier paramètre est lié à la taille des particules de biomasse et au type de chauffe (convection, conduction ou rayonnement). Le Tableau 42 indique les répartitions typiques de chaque phase et les paramètres opératoires associés aux trois procédés classiques de traitement de la biomasse, décrits dans le chapitre III.

Tableau 42 – Répartition des produits d'une pyrolyse en fonction des paramètres opératoires (Bridgwater A.V. 2003)

		Paramètres opératoires	Liquide	Char	Gaz
			[%]	[%]	[%]
Pyrolyse rapide	Température modérée, temps de séjour court		75	12	13
Carbonisation	Faible température, très long temps de séjour		30	35	35
Gazéification	Haute température, long temps de séjour		5	10	85

Notre étude porte sur la modélisation d'un procédé qui permette de favoriser la production d'un produit solide de PCI élevé à partir de biomasse divisée (plaquette forestière). Cela correspond à une pyrolyse lente (torréfaction ou carbonisation) réalisée à faible température. Le chapitre III a listé plusieurs procédés existants actuellement pour la production de charbon de bois ou de biomasse torréfiée. Les procédés de carbonisation existants ne sont cependant adaptés qu'au traitement de biomasse de grande dimension (supérieure à 10 cm) et les procédés de torréfaction conduisent à la production de biomasse faiblement torréfiée, de PCI inférieur à 23 MJ kg⁻¹, ou sont encore au stade de développement. Notre intérêt s'est ainsi tourné vers un procédé de torréfaction fondé sur une des technologies existantes, mais dont on augmenterait la température de traitement jusque vers 350 voire 400 °C.

Différentes technologies de sécheurs existants sont susceptibles d'être utilisées pour la torréfaction (Sule I.O. 2012). La confrontation de leurs caractéristiques techniques a conduit Sule à considérer les réacteurs à lit mobile comme la solution technique la plus attrayante, comme permettant des transferts de masse et de chaleur élevés et offrant un bon contrôle de la température et du temps de séjour des particules de biomasse. D'après Kleinschmidt (2011), le réacteur à lit mobile est une technologie recommandée par les concepteurs d'unité de torréfaction, mais les réacteurs à vis ou à tambour tournant sont en pratique les plus utilisés. Ces derniers sont en effet basés sur des technologies éprouvées – en particulier pour des applications de séchage de solides divers. La solution d'un réacteur à vis a par exemple été envisagée par Zheng et coll. (2012) et des unités industrielles, brevetées, ont été conçues par l'entreprise Etia. Il s'agit d'un système très simple : la rotation de la vis permet de faire circuler la biomasse d'un bout à l'autre du réacteur, et l'application d'un courant électrique à cette vis assure le chauffage de la biomasse par conduction. Cette technique a donc l'avantage de la simplicité, le temps de séjour et la température au sein du réacteur étant réglés par simple commande électrique. Cependant, d'un point de vue énergétique, cette solution présente l'inconvénient de nécessiter un apport en énergie électrique, alors que les gaz produits par la torréfaction pourraient être utilisés. Kiel et coll. (2008) indiquent en effet que les gaz de torréfaction peuvent être récupérés et brûlés afin de fournir l'énergie nécessaire au pré-séchage de la biomasse et à la torréfaction.

Tableau 43 – Technologies existantes pour la torréfaction de biomasse

Type de four	Type de chauffage	Caractéristiques
Tambour tournant	Direct - indirect	Technologie courante – faible transfert de chaleur et difficulté de contrôle de la température
Lit fluidisé	Direct	Technique très utilisée, bon transfert de chaleur, vitesse de chauffe peut être trop rapide en torréfaction
Lit mobile	Direct	Bon contrôle du temps de séjour et de la température, bon transfert de chaleur
Convoyeur à vis	Indirect	Technologie éprouvée, bon contrôle du temps de séjour, mais transfert de chaleur médiocre
Réacteur à micro-ondes	Indirect	Technologie nouvelle, chauffage non uniforme
Four à étages	Direct	Transfert thermique élevé, mauvais contrôle du temps de séjour

Nous avons décidé de baser la modélisation du procédé de traitement de la biomasse sur la technologie de réacteur à four tournant, technique éprouvée pour des applications à basse température et permettant la réutilisation des gaz de torréfaction. Les fours tournants actuellement utilisés en torréfaction sont conçus pour fonctionner en chauffage indirect : le gaz chauffe les parois du four, la biomasse étant alors chauffée par conduction et rayonnement, c'est le cas du procédé de l'entreprise Andritz par exemple (2012b). Dans notre cas, le four se rapprocherait plutôt du fonctionnement d'un tambour de séchage, dans lequel le gaz chauffant est en contact direct avec la biomasse et les transferts de chaleur sont réalisés par convection.

IV.2.2.2. Description du modèle

La modélisation des réacteurs à tambour tournant a fait l'objet de nombreuses publications, concernant processus et des solides divers (Patisson F. et coll. 2000; Heydenrych M.D. 2001; Marias F. et coll. 2005; Le Guen L. et coll. 2011) dont la pyrolyse et le séchage de biomasse (Marias F. 2003; Sofialidis D. et coll. 2005; Benati E. et coll. 2011). Ce type de réacteur se présente sous la forme d'un tube cylindrique généralement muni de releveurs ou de pales assurant le brassage des particules solides (Figure 29), le gaz vecteur circule suivant l'axe du cylindre.

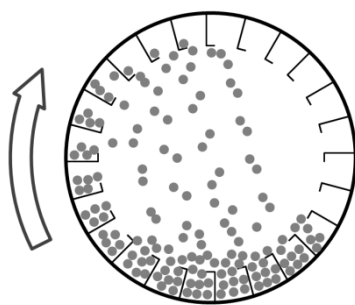


Figure 29 – Brassage des particules de biomasse (points gris) par les releveurs du tambour, dissociant les particules de biomasses en deux fractions : une partie dans le fond du réacteur formant un lit, la seconde s'écoulant depuis les releveurs.

Compte tenu des objectifs assignés à notre modélisation, nous avons cherché à bâtir un modèle qui reste simple sur le plan numérique. Le réacteur que nous avons retenu est modélisé en 1D et en régime stationnaire. L'écoulement du gaz et celui du solide, à co-courant, sont supposés du type piston, considérant donc un mélange radial idéal de la phase gazeuse, d'une part, et de la phase solide, d'autre part, et aucun mélange selon la direction axiale. Les caractéristiques physiques du réacteur et de la biomasse traitée sont listées dans le Tableau 44. Les bilans de masse et d'énergie sont effectués sur des tranches élémentaires de volume dV défini par une section S_{react} et une longueur dx (Figure 30). Par contre, afin d'obtenir un modèle

global représentatif et prédictif, il nous a semblé nécessaire de s'attacher à décrire les phénomènes thermiques et physico-chimiques (échange de chaleur, évaporation de l'humidité, réactions de décomposition du bois).

Tableau 44 – Caractéristiques physique du réacteur et de la biomasse

	Unités	Valeur
Longueur	[m]	8
Diamètre	[m]	3
Vitesse biomasse	[m s ⁻¹]	0,002
Granulométrie biomasse	[m]	0,02
Remplissage	[-]	0,3

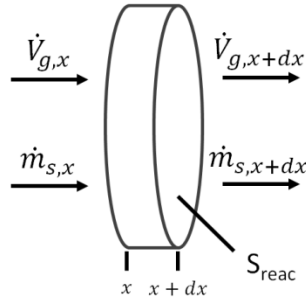


Figure 30 – Tranche élémentaire du réacteur rotatif pour le calcul des bilans massiques et énergétiques

L'ensemble des notations utilisées pour la modélisation est explicité dans la section Notations au début du mémoire.

Parmi les hypothèses de modélisation, on soulignera les principales :

- la température au sein des particules est homogène (pas de gradient interne) ;
- seuls les échanges thermiques par convection entre le gaz et la biomasse sont considérés, les autres échanges de chaleur (avec les parois du four par conduction ou rayonnement) ne sont pas pris en compte ;
- le rétrécissement des particules de biomasse est considéré comme négligeable ;
- les pertes thermiques sont négligées.

IV.2.2.3. Surfaces d'échange

Dans un premier temps, comme dans le modèle utilisé par Le Guen et coll.(2011), il est nécessaire de définir les surfaces d'échange au sein du réacteur afin de déterminer les flux de chaleur et de matière échangés. Du fait de nos hypothèses, seules deux surfaces sont à définir :

- S_{gs1} : aire de l'interface entre le gaz et les particules solides en chute,
- S_{gs2} : aire de contact entre le gaz et la surface du lit de particule au fond du tambour.

Dans cette approche, les interactions entre les particules sont donc négligées. Pour le calcul de S_{gs1} , le nombre de particules en chute ($N_{p,chute}$) a été arbitrairement fixé à un cinquième du nombre total de particules ($N_{p,tot}$) de biomasse dans le volume de contrôle (dV_{reac}). De même, la surface S_{gs2} est prise arbitrairement égale, par unité de longueur, à un quart de la circonférence du tambour, de diamètre ($D_{tambour}$).

$$S_{gs1} = 4\pi R_p^2 N_{p,chute} \quad \text{avec} \quad N_{p,chute} = \frac{1}{6} N_{p,tot} \quad \text{et} \quad N_{p,tot} = \frac{\dot{m}_s \cdot t_{sejour} \cdot dV_{reac}}{\rho_s \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot R_p^3 \cdot V_{reac}} \quad 7$$

$$S_{gs2} = L_{lit} dx \quad \text{avec} \quad L_{lit} = \frac{1}{4} \pi D_{tambour} \quad 8$$

IV.2.2.4. Transfert de chaleur

Les particules sont chauffées par l'intermédiaire des deux surfaces S_{gs1} et S_{gs2} par convection. Le flux thermique transféré est donné par la relation 9. Les coefficients de transferts convectifs h_{gs1} et h_{gs2} sont définis à partir des nombres de Nusselt par les corrélations tirées de Le Guen et coll. (2011), listées dans le Tableau 45.

La vitesse v_g correspond à la vitesse axiale relative du gaz par rapport aux particules. On considère que la vitesse de chute et la vitesse de déplacement des particules le long du tambour sont négligeables par rapport à cette vitesse, v_g est donc égale à la vitesse superficielle du gaz par rapport au tambour. Cette dernière est calculée à partir du débit volumique des gaz et de la surface libre dans le tambour.

$$\dot{Q}_{conv} = (h_{gs1}S_{gs1} + h_{gs2}S_{gs2})(T_g - T_s) \quad 9$$

Tableau 45 – Calcul des coefficients de transfert de chaleur entre le gaz et les particules de biomasses

Coefficient de transfert	Nombre de Nusselt	Nombre de Reynolds	Nombre de Prandtl
$h_{gs1} = \frac{k_{th,g}Nu_{gs1}}{2R_p}$	$Nu_{gs1} = 2 + 0,58 \cdot Re_{gs1}^{0,5} Pr^{0,33}$	$Re_{gs1} = \frac{\rho_g v_g 2R_p}{\mu_g}$	$Pr = \frac{\mu_g C_{p,g}}{k_{th,g}}$
$h_{gs2} = \frac{k_{th,g}Nu_{gs2}}{L_{lit}}$	$Nu_{gs2} = 0,664 \cdot Re_{gs2}^{0,5} Pr^{0,33}$	$Re_{gs2} = \frac{\rho_g v_g L_{lit}}{\mu_g}$	

Dans ces relations, la viscosité (μ_g), la conductivité ($k_{th,g}$) et la chaleur massique du gaz ($C_{p,g}$), sont prises égales à celles de l'air.

IV.2.2.5. Séchage

Les particules de biomasse à traiter contiennent entre 10 et 20 % d'humidité, le premier phénomène ayant lieu dans le four est le séchage. Celui-ci est décrit de manière simplifiée, essentiellement pour tenir compte de son effet thermique. Une modélisation plus précise du séchage a été retenue dans le cas du réacteur amont (le sécheur, cf. § IV.2.3 plus loin). L'humidité du solide est ainsi modélisée comme un film d'eau libre sur les particules. Deux cas se présentent alors : si la température du solide est inférieure à la température de bulbe humide (T_{bh}), la vitesse de séchage est régie par le transfert externe défini par la relation 12, si la température est supérieure ou égale à la température de bulbe humide, l'intégralité de l'énergie reçue par les particules est utilisée pour évaporer l'humidité, relation 13. La température de bulbe humide est calculée à partir de la relation 10, où H_{Lv} est l'enthalpie de vaporisation de l'eau, $x_{m,H_2O,g}$ la fraction massique d'eau dans le gaz et $x_{m,H_2O,sat,h}$ la fraction massique de vapeur saturante à la température humide. Puisque cette dernière est fonction de la température de bulbe humide, un calcul itératif (méthode de Newton, relation 11) est utilisé pour déterminer la température humide.

$$T_{bh} = T_g + \frac{H_{Lv}}{C_{p,eau}}(x_{m,H_2O,g} - x_{m,H_2O,sat,h}) \quad \text{avec} \quad x_{m,H_2O,sat,h} = f(T_{bh}) \quad 10$$

$$T_{bh,n+1} = T_{bh,n} - \frac{g(T_{bh,n})}{g'(T_{bh,n})} \quad \text{avec} \quad g(T_{bh,n}) = T_{bh} - T_g - \frac{H_{Lv}}{C_{p,eau}}(x_{m,H_2O,g} - x_{m,H_2O,sat,h}) \quad 11$$

Les coefficients k_{gs1} et k_{gs2} sont les coefficients de transfert de masse entre le gaz et les particules. Ils sont calculés à partir des relations du Tableau 46, faisant intervenir le coefficient de diffusion D_{H_2O,N_2} , des nombres de Sherwood distincts, le rayon des particules pour k_{gs1} et la longueur de lit de particules pour k_{gs2} . Les nombres de Sherwood sont issus de Le Guen et coll. (2011).

$$\dot{m}_{evap} = (k_{gs1}S_{gs1} + k_{gs2}S_{gs2})(C_{H_2O,sat} - C_{H_2O,g}) \cdot M_{H_2O} \quad T_s \leq T_{bh} \quad 12$$

$$\dot{m}_{evap} = \frac{E_{conv}}{L_v} \quad T_s > T_{bh} \quad 13$$

Tableau 46 – Calcul des coefficients de transfert de masse entre le gaz et les particules de biomasses

Coefficient de transfert	Nombre de Sherwood	Nombre de Reynolds	Nombre de Schmidt
$k_{gs1} = \frac{D_{H_2O,N_2} Sh_{gs1}}{2R_p}$	$Sh_{gs1} = 2 + 0,58 \cdot Re_{gs1}^{0,5} Sc^{0,33}$	$Re_{gs1} = \frac{\rho_g v_g 2R_p}{\mu_g}$	$Sc = \frac{\mu_g}{\rho_g D_{H_2O,N_2}}$
$k_{gs2} = \frac{D_{H_2O,N_2} Sh_{gs2}}{L_{lit}}$	$Sh_{gs2} = 0,664 \cdot Re_{gs2}^{0,5} Sc^{0,33}$	$Re_{gs2} = \frac{\rho_g v_g L_{lit}}{\mu_g}$	

IV.2.2.6. Réactions de pyrolyse

Le processus physico-chimique de pyrolyse implique de nombreux mécanismes tels que la dégradation chimique des composants primaires de la biomasse, le transport des gaz au sein du solide et l'échange de chaleur. Le processus thermique de pyrolyse a fait l'objet de quantité d'études, aussi bien expérimentales que théoriques (Demirbas 2000; Babu B.V. et coll. 2003; Di Blasi C. 2008; Sadhukhan A.K. et coll. 2008; Park W.C. et coll. 2010). Différents aspects ont été étudiés par cette littérature, et trois nous intéressent particulièrement : la conception de modèles cinétiques, la détermination de la distribution des produits de pyrolyse et les besoins énergétiques de la réaction globale.

IV.2.2.7. Modèles cinétiques

Di Blasi (2008) dans sa revue sur le sujet distingue : les modèles globaux à une étape, les modèles multi-composants et les modèles à étapes multiples. Le premier type est le plus fréquemment utilisé, et également le plus simple. Il consiste à décomposer la biomasse en matières volatiles (condensables et non condensables) et en char. Ce type de modèle est basé sur des réactions irréversibles du premier ordre décrites par une loi d'Arrhenius et peut être divisé en deux catégories :

- les modèles globaux qui ne font intervenir qu'une seule réaction, c'est le cas par exemple d'un des modèles de Reina et coll. (1998), schématisé Figure 31-a,
- les modèles multi-réactionnels qui font appel à plusieurs réactions simultanées, par exemple les modèles de Shafizadeh et coll. (1977) (Figure 31-c) ou de Koufopoulos et coll. (Koufopoulos C.A. et coll. 1991) (Figure 31-b)

Les modèles cinétiques à une étape proposés dans la littérature peuvent être classés en trois groupes distincts, selon les domaines de température considérés et l'énergie d'activation associée : à haute température (530 à 1130 °C) avec des énergies d'activation comprises entre 69 et 91 kJ mol⁻¹ ; à basse température (inférieures à 530 °C) et faibles énergies d'activation comprises entre 56 et 106 kJ mol⁻¹ ; et à basse température et hautes énergies d'activation (125 à 174 kJ mol⁻¹).

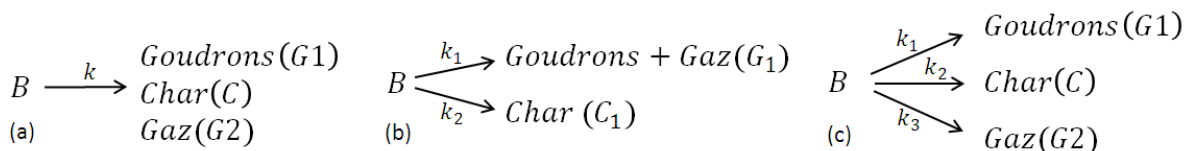


Figure 31 – Trois exemples de mécanismes cinétiques de décomposition de la biomasse en une étape avec 1, 2 ou 3 réactions en parallèle

Le second type de modèles est basé sur la décomposition de composants ou pseudo-composants élémentaires de la biomasse (généralement cellulose, hémicellulose et lignine).

Chaque composant (C_i) est considéré comme indépendant des autres et se dégrade alors avec une cinétique et des produits (MV_i) qui lui sont propres (équation 14). Les réactions se produisent en parallèle et sans interagir entre elles (Manyà J.J. et coll. 2003; Rousset P. et coll. 2006; Di Blasi C. 2008; Prakash N. et coll. 2008). Dans ce cas encore, la décomposition des composants est généralement représentée par une réaction irréversible du premier ordre avec une loi de type Arrhenius. Il arrive cependant que le premier ordre ne convienne pas et que des réactions d'ordre supérieur soient utilisées (Manyà J.J. et coll. 2003).

$$C_i \xrightarrow{k_i} MV_i \quad \text{avec} \quad k_i = A e^{\frac{-E_i}{RT}} \quad 14$$

Enfin certains auteurs estiment que la pyrolyse doit être décomposée en plusieurs étapes, par des mécanismes plus complexes faisant intervenir des réactions consécutives. Avec trois étapes consécutives, les produits des deux premières étapes deviennent des réactifs qui peuvent être dégradés davantage lors des étapes suivantes. La Figure 32 décrit ce type de modèle, où B est la biomasse initiale et C et D sont des produits intermédiaires qui peuvent également être dégradés pour former de nouveaux produits solides ou volatils. Dans ce même ordre d'idée, Figure 33, d'autres auteurs considèrent qu'une partie des volatils lourds produits, les goudrons, subit une dégradation supplémentaire menant à la production de char et de volatils plus légers (Koufopoulos C.A. et coll. 1991; Gomez C. et coll. 2009).

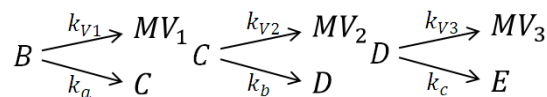


Figure 32 – Mécanisme cinétique de décomposition de la biomasse en trois étapes proposé par (Branca C. et coll. 2003)

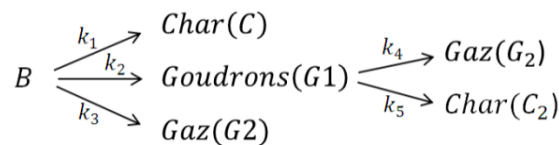


Figure 33 – Mécanisme cinétique de décomposition de la biomasse en deux étapes proposé par (Branca C. et coll. 2003)

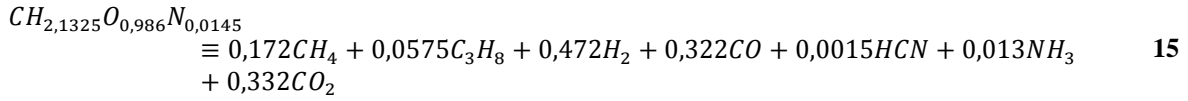
IV.2.2.8. Composition des produits de pyrolyse

La pyrolyse produit trois phases, solide, liquide et gazeuse, et, si les modèles cinétiques présentés précédemment permettent de déterminer la fraction respective de chaque phase, la composition du gaz ou de la phase liquide ne peut généralement pas être directement déduite du modèle. Pour cette raison, différents auteurs ont étudié expérimentalement les gaz ou liquides produits lors de la pyrolyse de biomasse (Maschio G. 1992).

Aux modèles cinétiques décrits précédemment peut être associée une répartition massique des différentes matières volatiles produites. Cette répartition est la plus souvent déduite de l'expérience. Horne et coll. (1996) par exemple ont étudié l'influence de la température d'une pyrolyse rapide sur la composition des produits, pour une plage de températures de 400 à 550 °C. De même, Di Blasi et coll. (1999) ont déterminé l'évolution de la fraction de gaz produit en fonction de la température de pyrolyse.

Certains auteurs ont utilisé une approche numérique. Yin et coll. (2010) considèrent les matières volatiles comme un mélange limité de composés (CH_4 , CO , CO_2 , C_3H_8 , H_2 , HCN et NH_3) et utilisent un système mathématique basé sur un bilan de masse et d'énergie pour déterminer les fractions molaires de répartition (relation 15). Pour ce type d'estimation à partir d'un système sous-déterminé, il est nécessaire de se fixer des relations supplémentaires en

reliant entre elles les fractions massiques des produits (par exemple entre CO et CO₂, ou entre NH₃ et HCN). Dans cette approche, généralement utilisée avec les modèles d'une cinétique globale à une étape, la répartition massique des produits est calculée en amont des calculs et ne varie pas avec la température.



Quelques études sont allées plus loin en proposant des modèles cinétiques multi-composants pour chaque gaz produit. Par exemple, Radmanesh et coll. (2006), qui ont simulé la gazéification de particules de bois dans un lit fluidisé, ont modélisé l'étape de pyrolyse à l'aide d'une cinétique de premier ordre à une étape à produits multiples (16), chaque produit correspondant à une espèce volatile (H₂, CH₄/C₂H₄, CO, CO₂, H₂O et goudrons). Les paramètres V_i et V_i^* correspondent aux quantités instantanées et totales de chaque espèce. Les paramètres utilisés sont listés dans le Tableau 47.

$$r_{i,pyro} = \frac{dV_i}{dt} = k_{0,i} e^{-\frac{E_{a,i}}{R.T_s}} (V_i' - V_i)^n \quad \text{avec} \quad V_i' = V_i^* \exp\left(\frac{k_v}{dT}\right) \quad 16$$

Tableau 47 – Paramètres cinétiques pour le calcul de l'évolution des gaz lors de la pyrolyse (Radmanesh R. et coll. 2006)

Eléments	k_{0i} [s ⁻¹]	E_{ai} [kJ mol ⁻¹]	V_i^* [kg kg ⁻¹ biomasse]	N	k_v
H ₂	10 ^{1,7}	85	0,016	1	14,5
CH ₄	10 ^{1,1}	45	0,011	1	8,2
CO	10 ^{4,8}	50	0,075	3	11,0
CO ₂	10 ^{3,0}	34	0,15	3	6,2
H ₂ O	10 ^{13,56}	149	0,048	1	0
Goudron	10 ^{12,0}	113	0,638	1	0

Tableau 48 – Paramètres des corrélations utilisées pour évaluer les rendements massiques des différentes espèces gazeuses et liquide par Abdelouahed et coll. (2012)

Produit	a	b	c
CH ₄	-4,341.10 ⁻⁵	10,12.10 ⁻²	-51,08
H ₂	1,362.10 ⁻⁵	-2,517.10 ⁻²	12,19
CO	-3,524.10 ⁻⁵	9,77.10 ⁻²	-24,93
CO ₂	3,958.10 ⁻⁵	-9,126.10 ⁻²	64,02
C ₂ H ₄	-6,873.10 ⁻⁵	14,94.10 ⁻²	-76,89
C ₂ H ₆	8,265.10 ⁻⁶	-2,105.10 ⁻²	13,38
C ₂ H ₆	-3,134.10 ⁻⁵	7,544.10 ⁻²	-42,72
C ₇ H ₈	-4,539.10 ⁻⁶	0,687.10 ⁻²	1,462
C ₆ H ₆ O	1,508.10 ⁻⁵	-3,662.10 ⁻²	22,19
C ₁₀ H ₈	-8,548.10 ⁻⁶	1,882.10 ⁻²	-9,851
H ₂ O	5,157.10 ⁻⁵	11,86.10 ⁻²	84,91

Enfin, il est également possible de prévoir la composition d'un gaz de pyrolyse sans passer par des lois cinétiques. Abdelouahed et coll. (2012) ont par exemple modélisé une unité de gazéification sous Aspen Plus. Leur calcul de l'étape de pyrolyse est effectué à partir de formules empiriques pour les rendements massiques (relation 17), les rendements de chaque élément étant dépendants de la température de pyrolyse. Les paramètres a , b et c intervenant dans ces formules empiriques sont listés dans le Tableau 48.

$$Y_i = aT^2 + bT + c \quad i = \text{produit, avec } T \text{ en } K \quad 17$$

IV.2.2.9. Besoin énergétique

Comme nous l'avons expliqué dans le chapitre III, un effet thermique est associé à la pyrolyse. Selon les études, l'énergie à fournir pour une pyrolyse « complète » varie entre $-1,5$ et $+1,5$ MJ kg⁻¹ de biomasse (Park W.C. et coll. 2010). Ces auteurs ont étudié la pyrolyse de plaquettes forestières et ont montré la présence d'un gradient de température entre la surface et le centre des particules et d'un palier de température entre 310 et 370 °C. Ils expliquent que ce palier est synonyme d'un effet endothermique de la réaction de pyrolyse à ces températures. D'autres auteurs ont étudié ce phénomène à partir d'études thermogravimétriques (couplées à des analyses calorimétriques différentielles à balayage) et ont montré que la pyrolyse de biomasse consiste généralement en une succession de réactions, d'abord globalement endothermiques puis exothermiques. Yang H. et coll. (2007) par exemple, ont mis en évidence à faible température (inférieure à 200 °C) une première réaction de décomposition endothermique de la cellulose, de l'hémicellulose et de la lignine (Figure 34). Pour des températures supérieures (mais inférieures à 500 °C), la décomposition de la cellulose reste endothermique, tandis que celles de l'hémicellulose et de la lignine, deviennent exothermiques. Enfin à plus de 500 °C, la décomposition de la cellulose et de l'hémicellulose sont endothermiques, et celle de la lignine exothermique.

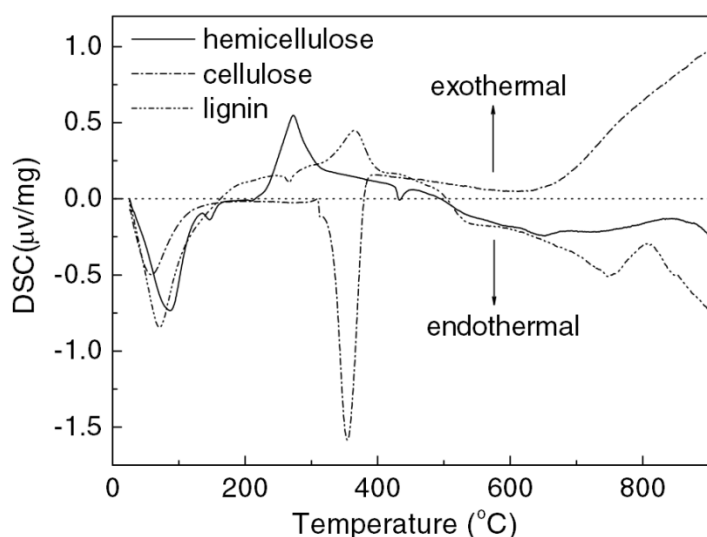


Figure 34 –Analyse thermique différentielle de la décomposition des trois principaux composants de la biomasse (Cellulose, Hémicellulose et Lignine) (Yang H. et coll. 2007)

IV.2.2.10. Modèle de pyrolyse utilisé

Le procédé modélisé ici, une torréfaction ou une carbonisation, est une pyrolyse lente de la biomasse, ce qui ne correspond pas forcément aux cas étudiés dans la littérature et que nous avons mentionnés précédemment. Il est possible cependant de s'appuyer sur les modèles existants pour simuler la perte de masse lors de la torréfaction. Repelin et coll. (2010b) par exemple ont comparé des essais expérimentaux de torréfaction en four à tambour rotatif avec des simulations basées sur trois modèles de la littérature, et ont montré que l'application de ce type de modèles était possible. Ils ajoutent que pour le dimensionnement ou la conception de fours industriels, il est préférable d'utiliser des modèles globaux simples, que les modèles à composants ou étapes multiples. Ce type de modèle ne permet cependant pas d'évaluer la composition des gaz et goudrons produits. Or, nous désirions obtenir une caractérisation précise de la composition des gaz afin d'évaluer l'énergie chimique libérée et de comparer le

fonctionnement du procédé en mode torréfaction du mode carbonisation. Un modèle de cinétique multi-composants était donc plus adapté.

Nous avons opté pour un modèle similaire à celui de Radmanesh et coll. (2006) décrit par l'équation 16. Afin de se rapprocher des compositions de plaquettes forestières classiques (C, H, O et N) et d'obtenir des pics de pyrolyse correspondant à des cas issus de la littérature, les paramètres cinétiques ont été modifiés, en s'appuyant notamment sur des énergies d'activation issues de la littérature (Park W.C. et coll. 2010). Les nouveaux paramètres sont présentés dans le Tableau 49.

Tableau 49 – Paramètres cinétiques ajustés

Éléments	k_{0i} [s ⁻¹]	E_{ai} [kJ mol ⁻¹]	V_i^* [kg kg ⁻¹ biomasse]
H ₂	2,19.10 ⁸	152,5	0,016
CH ₄	1,1.10 ⁸	152,5	0,006
CO	4,38.10 ⁹	152,5	0,05
CO ₂	4,38.10 ⁹	152,5	0,02
HCN	2,0.10 ⁸	152,5	0,001
NH ₃	2,0.10 ⁸	152,5	0,001
H ₂ O	3,68.10 ¹³	149,5	0,1
Goudron	2,0.10 ¹⁰	149,5	0,624

Les cinétiques utilisées produisant une quantité de goudrons très importante, il est nécessaire de tenir compte du craquage de ces goudrons. Comme Radmanesh et coll. (2006) et Wurzenberger et coll. (2002) nous avons retenu un craquage des goudrons primaires (considérés comme ayant la formule CH_{0,1173}O_{0,778}) qui se décomposent en CO, CO₂, H₂, CH₄ et en goudrons secondaires inertes, de formule CH_{1,522}O_{0,0228}. La cinétique de décomposition est donnée par la relation 18.

$$r_{i,crack} = \alpha_i 10^{4,98} \exp\left(\frac{-93,37}{RT_s}\right) (\rho_g y_{tar}) \quad 18$$

Dans laquelle, les α_i représentent les rendements massiques en chaque produit, dont les valeurs sont listées dans le Tableau 50. Enfin $\rho_g y_{tar}$ représente la quantité de goudrons primaires présents dans la phase gazeuse.

Le besoin énergétique étant variable selon les paramètres de la pyrolyse (type de biomasse, taille de biomasse, vitesse de chauffe), il sera calculé théoriquement à partir des enthalpies de la biomasse considérée et des gaz produits. En effet, l'enthalpie de pyrolyse ($\Delta h_{r,pyro}$) à chaque instant peut être calculée à partir de la relation 19, où α_i et h_i représentent les rendements et l'enthalpie de formation de chaque produits et $dh_{biomasse}$ la variation de l'enthalpie de la biomasse au cours de la pyrolyse. Les expressions des enthalpies totales des gaz ($h_i(T)$, exprimés en J mol⁻¹) sont issues de la base de données thermodynamique du logiciel COACH (données en Annexe J). Pour la biomasse, l'enthalpie est calculée à partir de l'enthalpie de formation ($h_{f,biomasse}^0$) et de la chaleur massique ($C_{p,biomasse}$) (expression 20). L'enthalpie de formation est quant à elle déterminée par la relation 21 à partir de l'enthalpie des produits de combustion ($h_{prod,comb}$) et du PCS (Pouvoir Calorifique Supérieur). Enfin le PCS est calculé à partir de la composition élémentaire des solides, la relation utilisée (23) étant issue de (Channiwala S.A. et coll. 2002). Les chaleurs massiques de la biomasse et du char sont celles retenues par Babu et coll. (2003)(équations 24 et 25, avec T en °C).

Tableau 50 – Rendements en produits du craquage des goudrons primaires

Eléments	Rendement [%]
CO	10,0
CO ₂	57,5
H ₂	0,05
H ₂ O	10,0
CH ₄	0,5
Goudrons secondaires	22,0

$$\Delta H_{r,pyro} = dh_{biomasse}(T) - \sum_{i=prod} \alpha_i \frac{h_i(T)}{M_i} \quad 19$$

$$h_{biomasse} = h_{f,biomasse}^0 + Cp_{biomasse}(T_{biomasse} - 298,15) \quad 20$$

$$h_{f,biomasse}^0 = PCS + h_{prod,comb} \quad 21$$

$$h_{prod,comb} = h_{f,CO_2}^0 \frac{y_{C,b}}{M_{CO_2}} + \frac{h_{f,H_2O}^0}{2} \frac{y_{H,b}}{M_{H_2O}} + h_{f,SO_2}^0 \frac{y_{S,b}}{M_{SO_2}} + h_{f,NO_2}^0 \frac{y_{N,b}}{M_{NO_2}} \quad 22$$

(où $y_{i,b}$ = titre molaire en i de la biomasse)

$$PCS = 0,3491\%C + 1,1783\%H + 0,1005\%S - 0,1034\%O - 0,0151\%N - 0,0211\%Cendres \quad 23$$

$$Cp_{biomasse} = 1112,0 + 4,85.T \quad [J \text{ kg}^{-1} \text{ K}^{-1}] \quad 24$$

$$Cp_{char} = 1003,2 + 2,09.T \quad [J \text{ kg}^{-1} \text{ K}^{-1}] \quad 25$$

IV.2.2.11. Equations des bilans

Le Tableau 52 récapitule les équations des bilans correspondant à cette zone. Des données complémentaires, à savoir les valeurs de la granulométrie de la biomasse, de la fraction de vide dans le lit de biomasse et les densités des solides (et de l'eau liquide contenue dans le solide) sont données dans le Tableau 51.

Tableau 51 – Bilans massiques et énergétique effectués dans le réacteur

	Unités	Valeur
d_b	[m]	0,02
$\rho_{b,sec}$	[kg m ³]	500
ε	[-]	0,5

Tableau 52 – Bilans massiques et énergétiques dans le réacteur de pyrolyse

Bilans massiques	
Gaz	
$v_g \frac{\partial m_g}{\partial x} = \sum_i r_i + \dot{m}_{evap}$	$r_{i,pyro} = k_{0,i} e^{\frac{-E_{a,i}}{R.T_s}} (V_i^* - V_i)^n$
Solides	
$v_s \frac{\partial m_s}{\partial x} = -\sum_i r_i - \dot{m}_{evap}$	
Bilans énergétiques	
Gaz	
$v_g V_{reac} \frac{\partial \rho_g h_g}{\partial x} = -Q_{conv,s1} - Q_{conv,s2} + \sum_{i=gaz} \dot{m}_i c p_i (T_g - T_s)$	$Q_{conv,s1} = S_{gs1} h_{gs1} (T_g - T_s)$ $Q_{conv,s2} = S_{gs2} h_{gs2} (T_g - T_s)$
Solides	
$v_s \frac{\partial m_s h_s}{\partial x} = Q_{conv,s1} + Q_{conv,s2} - \dot{m}_{evap} L_v - \Delta H_{r,pyro}$	

Les conditions aux limites associées sont des conditions de Dirichlet à l'entrée du réacteur (flux, compositions et températures connues). La résolution numérique de ces équations a été programmée en Fortran à l'intérieur de modules Aspen Plus. La modélisation est du type différences finies avec un pas d'espace (dx) pris égal à 5 mm. L'accord n'est pas parfait pour toutes les valeurs mais nous avons estimé, compte-tenu de l'usage auquel était destiné ce modèle, que les ordres de grandeurs obtenus étaient satisfaisants.

IV.2.2.12. Validation du modèle

Pour valider partiellement ce modèle du procédé torréfaction/carbonisation, nous avons effectué deux simulations de torréfaction de bois que nous avons confrontées avec les résultats expérimentaux disponibles dans l'article de Pach M. et coll. (2002). La répartition des produits (solide, liquide et gaz) ainsi que leur composition en sortie du four sont indiquées dans le Tableau 53.

Tableau 53 – Comparaison des produits obtenus lors de la torréfaction de biomasse pour deux cas expérimentaux (Pach M. et coll. 2002) et simulés avec le modèle. (valeurs exprimées en % massique)

	Torréfaction (250 °C)		Carbonisation (280 °C)	
	littérature	calcul	littérature	calcul
Gaz	1,7	0,6	4,8	15,4
Goudrons (dont eau)	12,8	10,2	26,3	17,5
Solide	85,5	89,2	68,9	67,1
Composition gaz				
CO ₂	81,2	75,6	75,0	75,5
CO	18,6	20,7	24,5	20,6
H ₂	0	1,8	0	1,9
CH ₄	0,1	1,9	0,3	1,9
Composition solide				
C	51,5	50,3	56,6	54,5
H	5,8	5,5	5,6	5,6
N	0,15	0,14	0,17	0,15
O	42,5	43,15	37,6	39,3

IV.2.2.13. Emissions de poussières

La quantité de poussières produite dans un sécheur de type tambour tournant est estimée à $2,85 \text{ g kg}^{-1}$ de biomasse séchée (Beauchemin P. et coll. 2008). En considérant que la quantité de poussières produite est identique dans le cas où le tambour est utilisé comme unité de torréfaction/carbonisation, cette valeur est retenue ici. D'après Hasler et coll. (Hasler P. et coll. 1999), l'utilisation d'un système de filtration (filtre à manche, cyclone) permet de récupérer 90 % des particules d'un gaz. On considérera donc seulement 10 % des poussières produites comme émises dans les fumées.

IV.2.3. Modélisation du sécheur

Une grande partie du besoin énergétique nécessaire à la torréfaction provient du séchage de la biomasse. Pour assurer un fonctionnement optimal de l'unité de torréfaction, il est préférable d'avoir une humidité faible et constante en entrée de torréfaction. Par exemple, Verheff et coll. (2011) imposent une étape de pré-séchage pour les biomasses brutes dont l'humidité dépasse 10 à 20 %.

Le séchage est un procédé utilisé et maîtrisé depuis longtemps, dont diverses technologies existent, présentées dans le chapitre III. La technologie de séchage que nous avons choisie de modéliser est de type convoyeur à bande à courants croisés. Un lit de biomasse circule sur une bande grillagée, le gaz séchant, de l'air chaud (de 100 à 200 °C), étant soufflé par le dessous comme présenté sur la Figure 35. Les constructeurs de sécheurs à bande proposent des installations dont les dimensions peuvent atteindre jusqu'à 400 m^2 de surface de séchage (50 m de longueur sur 8 m de large) pour une productivité maximale de 45 t de biomasse humide par heure (Andritz 2012a).

Les principales hypothèses pour la modélisation du sécheur sont les suivantes :

- le régime est permanent et établi ;
- la température au sein des particules est homogène (pas de gradient interne), et la conduction interparticulaire est négligée ;
- le rétrécissement des particules de biomasse est considéré comme négligeable (le diamètre de particules et la hauteur du lit restent constants);
- les pertes externes au four sont négligées ;
- il n'y a pas d'effets de bords latéraux (géométrie 2D) ;
- les vitesses de la biomasse et du gaz sont supposées constantes.

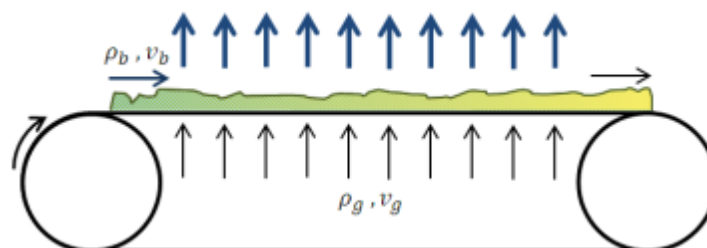


Figure 35 – Principe technologique du sécheur à bande

Dans notre cas, nous souhaitons dimensionner l'installation pour traiter jusqu'à $1 \text{ kg}_{\text{biomasse}} \text{ s}^{-1}$. D'après les données techniques de sécheurs existants, une surface de 32 m^2 est nécessaire (16 m sur 2 m). La hauteur du lit est calculée automatiquement à partir du débit

d'entrée, en prenant une vitesse de bande égale à $0,0025 \text{ m s}^{-1}$ pour assurer un temps de séjour suffisant.

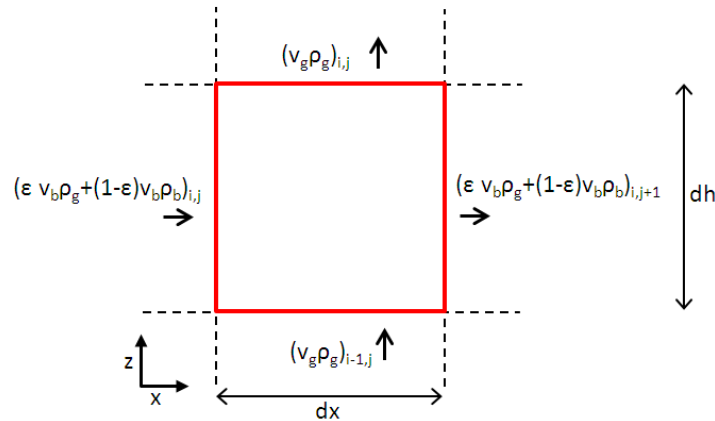


Figure 36 – Flux et volume de contrôle considérés dans le lit de biomasse.

Afin de modéliser le réacteur à courants croisés, le lit de biomasse a été discrétisé en 10×320 volumes de contrôle unitaires (indiqués i et j Figure 36), de dimensions dx , dh et de profondeur L_{lit} , cette dernière correspondant à la largeur du lit.

Le Tableau 54 liste quelques propriétés physiques et thermiques de la biomasse et des gaz. Compte tenu des variations limitées des températures, les chaleurs massiques ont été prises constantes.

Tableau 54 - Propriétés des différents éléments solides et gaz considérés

	Unités	Valeur
Cp biomasse	$[\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}]$	2000
Cp eau liquide	$[\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}]$	4185
Cp O ₂	$[\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}]$	30,5
Cp N ₂	$[\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}]$	29,3
Cp H ₂ O	$[\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}]$	37,5
Cp CO ₂	$[\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}]$	40,0
Cp CO	$[\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}]$	29,5
D_b	[m]	0,02
$\rho_{b,sec}$	$[\text{kg m}^3]$	500
ϵ	[-]	0,5

IV.2.3.1. Transfert thermiques

Le gaz chauffe la biomasse par convection, le coefficient de transfert étant calculé à partir du nombre de Nusselt (relations 26). La surface d'échange entre le gaz et la biomasse est calculée à partir de la formule 27, donnant la surface d'échange par unité de volume de lit en fonction du diamètre moyen de la biomasse, les particules étant considérées comme sphériques (Nadeau J.P. et coll. 1995).

$$Nu = 2,0 + 1,8 Re^{0,5} Pr^{0,33} \quad h_{conv,th} = \frac{Nu \cdot k_{th,g}}{D_p} \quad 26$$

$$\alpha_{conv} = \frac{6(1 - \epsilon)}{D_p} \quad 27$$

IV.2.3.2. Modèle de séchage

Le séchage étant ici le processus central, nous avons cherché à modéliser sa cinétique suffisamment finement. Tout d'abord, la force motrice de séchage ($r_{eau,r}$, exprimée en $\text{kg d'eau m}^{-3} \text{s}^{-1}$) est calculée afin de vérifier que les conditions sont favorables au séchage (relation 28). Deux cas sont alors possibles : évaporation de l'humidité de la biomasse ou condensation d'une partie de la vapeur d'eau du gaz. Ce calcul permet, dans le cas d'un lit de biomasse d'une épaisseur importante, de prendre en compte les effets de recondensation.

$$r_{eau,r} = \alpha_{conv} h_{conv,mat} (C_{eau,sat} - C_{eau,g}) M_{H2O} \quad 28$$

Dans le cas où il y a séchage, il est d'abord nécessaire de calculer la température de bulbe humide. Celle-ci est calculée de manière itérative par la formule 11 vue précédemment. La vitesse d'évaporation maximale ($r_{eau,m}$) est ensuite calculée à partir de la chaleur reçue par la biomasse, en considérant la température du solide égale à la température de bulbe humide (relation 30). Enfin la vitesse réelle d'évaporation est calculée à partir d'une courbe caractéristique de séchage de la biomasse (équation 31). La courbe utilisée, représentée Figure 37, correspond au séchage de bois de hêtre, et provient de l'étude de Khouya et coll. (2009). La courbe diffère de la courbe caractéristique de séchage « modèle » que nous avons vue au chapitre III (Figure 12), puisqu'elle ne comporte que la seconde phase de séchage. Cela signifie que dans le cas du séchage de bois, l'hypothèse de séchage d'un film d'eau en surface des particules n'est pas vérifiée, le séchage est alors à tout moment limité par la diffusion d'eau du cœur des particules vers leur surface. Toute l'énergie transférée au solide par convection n'est alors pas entièrement utilisée pour la vaporisation de l'eau : la température de la biomasse s'élève. Cela revient à considérer indirectement que le cœur humide de la particule reste à température constante (température de bulbe humide) tandis que la température du pourtour s'élève.

Les équations suivantes sont utilisées pour calculer la vitesse de séchage :

$$T_{bh} = f(T_g, P_{v,sat}, P_v) \quad 29$$

$$r_{eau,m} = h_{conv,th} \alpha_{conv} \frac{(T_g - T_{bh})}{H_{lv}} \quad 30$$

$$r_{eau}(i) = r_{eau,m} (1,18 \cdot x_{ap} - 0,39 \cdot x_{ap}^2 + 0,21 \cdot x_{ap}^3) \quad 31$$

$$x_{ap} = \frac{w_{eau} - w_{eq}}{w_{init} - w_{eq}} \quad 32$$

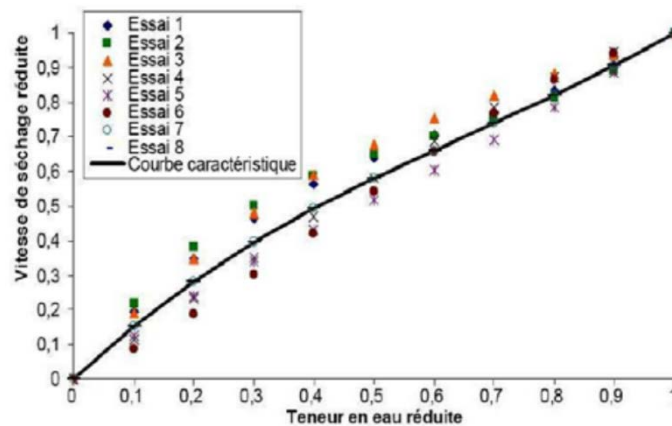


Figure 37 – Vitesse de séchage réduite en fonction de la teneur en eau réduite pour du bois de hêtre (Khouya A. et coll. 2009).

où x_{ap} est la teneur en eau réduite, w_{eau} , w_{eq} et w_{init} sont les humidités sur sec respectivement dans le volume de contrôle, à l'équilibre, et initiale. D'après l'étude de Khouya et coll. (2009), w_{eq} est prise égale à 5 %.

Enfin, dans le cas où la pression de vapeur saturante est inférieure à la pression de vapeur d'eau dans les fumées ($r_{eau,r} < 0$), la quantité définie par $r_{eau,r}$ se condense sur la biomasse ($r_{eau}(i) = r_{eau,r}$).

IV.2.3.3. Bilans de masse et d'énergie

Le Tableau 55 récapitule les équations des bilans massiques et énergétiques pour le modèle du sécheur.

Tableau 55 – Bilans massiques et énergétiques sur un volume de contrôle

Bilans massiques	
Gaz	
$\left(v_g \frac{\rho_g}{\partial h} \right)_{i,j} + \left(\varepsilon \cdot v_b \frac{\rho_g}{\partial x} \right)_{i,j} = \left(v_g \frac{\rho_g}{\partial h} \right)_{i-1,j} + \left(\varepsilon \cdot v_b \frac{\rho_g}{\partial x} \right)_{i,j-1} + r_{eau}(i)$	
Solides	
$\left((1 - \varepsilon) \cdot v_b \frac{\rho_{b,tot}}{\partial x} \right)_{i,j} = \left((1 - \varepsilon) \cdot v_b \frac{\rho_{b,tot}}{\partial x} \right)_{i-1,j} - r_{eau}(i)$	
Bilans énergétiques	
Gaz	
$\left(v_g \sum_k \frac{\rho_{g,k} C_{p,k} (T_g - T_{ref})}{\partial h} \right)_{i,j} + \left(\varepsilon \cdot v_b \sum_k \frac{\rho_{g,k} C_{p,k} (T_g - T_{ref})}{\partial x} \right)_{i,j}$ $= \left(v_g \sum_k \frac{\rho_{g,k} C_{p,k} (T_g - T_{ref})}{\partial h} \right)_{i-1,j} + \left(\varepsilon \cdot v_b \sum_k \frac{\rho_{g,k} C_{p,k} (T_g - T_{ref})}{\partial x} \right)_{i,j-1}$ $- \alpha_{conv} h_{conv,th} (T_{g,i-1,j} - T_{b,i,j-1}) - Cp_{eau} r_{eau}(i) (T_{g,i-1,j} - T_{b,i,j-1})$	
Solides	
$\left(\varepsilon \cdot v_b \frac{\rho_{b,tot} C_{p,b,tot} (T_b - T_{ref})}{\partial x} \right)_{i,j}$ $= + \left(\varepsilon \cdot v_b \frac{\rho_{b,tot} C_{p,b,tot} (T_b - T_{ref})}{\partial x} \right)_{i,j-1} + \alpha_{conv} h_{conv,th} (T_{g,i-1,j} - T_{b,i,j-1}) - r_{eau}(i) H_{Lv} M_{H2O}$	

Les conditions aux limites associées sont également des conditions de Dirichlet aux entrées du réacteur (flux, compositions et températures connues en $z=0$ pour les gaz et en $x=0$ pour le solide).

IV.2.3.4. Emissions de COV

Le séchage de bois peut être source d'émissions indirectes (liées à la combustion d'un gaz combustible afin de fournir l'énergie nécessaire au séchage) et d'émissions directes issues d'un début de dégradation de la biomasse. Les émissions indirectes seront discutées plus loin dans la section dédiée à la combustion des gaz de pyrolyse. Pour le second type d'émissions, émissions directes, Granström (2003) a étudié les émissions de COV et de monoterpènes lors du séchage de sciure de bois. Son étude a montré que les principaux facteurs de production de COV sont la température de la fumée utilisée pour le séchage et le taux d'humidité finale de la biomasse. Il conseille par exemple d'éviter le séchage à moins de 10 % d'humidité et avec une température de fumée supérieure à 170 °C. Mansson et coll. (Månsson 2008) ont étudié expérimentalement le séchage de sciure de bois dur (bois de bouleau) et en ont tiré une loi permettant d'évaluer la quantité de COV produits lors du séchage (33). Cette loi dépend de trois paramètres, la

température entrante de l'air utilisé pour le séchage, le taux d'humidité finale du bois et la saison de coupe du bois. La tendance donnée par la formule 33 ainsi que les ordres de grandeurs sont en accord avec les résultats de Granström (2003) et des données citées par Beauchemin et coll. (2008).

$$\log(COV) = 3,052 - 0,0113.T - 0,0661.H - 0,000285.T.H + 0,0000603.T^2 + 0,00242.H^2 \quad 33$$

où, H , humidité base humide, est exprimée en pourcentage, et T , la température, en °C. Enfin la quantité calculée de COV est en $\text{mg}_C \text{ kg}^{-1}_{\text{biomasse}}$.

Bien que dans notre cas la taille des particules soit supérieure et que la biomasse envisagée soit plutôt un mélange de bois dur et tendre, cette formule est implémentée dans le modèle. L'influence de la saison de coupe du bois n'est pas prise en compte dans la formule utilisée, ce qui équivaut à avoir une valeur moyenne sur toute l'année.

L'évaluation de la composition des COV est basée sur les données rapportées par Beauchemin et coll. (2008), qui liste les principaux composés émis lors du séchage de pâte destinée à la fabrication de panneaux de particules. Nous n'avons considéré que les principaux COV, constituant 95 % de l'ensemble des COV émis. Ils sont listés dans le Tableau 56 avec les fractions massiques correspondant, dont les ordres de grandeurs sont en accord avec les résultats de Granström (2003). Beauchemin et coll. (2008) expliquent également que les fumées d'une unité de traitement de biomasse peuvent être lavées afin de réduire d'environ 60 % la quantité de COV émise, seuls 40 % des COV calculés sont donc considérés comme libérés dans les gaz d'échappement.

Tableau 56 – Composition et quantités équivalentes de COV émis lors du séchage de bois (Beauchemin P. et coll. 2008)

	Fraction volumique	Quantité	
	[%]	[g kg ⁻¹]	[g _C eq. kg ⁻¹]
Alpha-pinene (C ₁₀ H ₁₆)	36,07	0,2	0,164
Methane (CH ₄)	24,04	0,13	0,093
Beta-pinene (C ₁₀ H ₁₆)	11,1	0,06	0,051
Acetone (C ₃ H ₆ O)	7,77	0,042	0,025
3-carene (C ₁₀ H ₁₆)	7,03	0,038	0,032
Limonene (C ₁₀ H ₁₆)	3,14	0,017	0,014
Formaldehyde (CH ₂ O)	2,31	0,013	0,005
Hexaldehyde (C ₆ H ₁₂ O)	1,48	0,008	0,005
Ethane (C ₂ H ₆)	1,39	0,008	0,006

IV.2.3.5. Emissions de poussières

Beauchemin et coll. (2008) chiffrent la quantité de poussières produite dans un sécheur à bande à 0,391 g kg⁻¹ de biomasse séchée. Comme pour l'unité de traitement, on considère que 90 % des particules sont récupérées par un système de filtration.

IV.2.4. Résultats du modèle global de traitement de la biomasse

Les deux modèles présentés ont ensuite été mis bout à bout pour simuler une unité de traitement intégrée hypothétique, illustrée par la Figure 38. Notre idée était d'optimiser sommairement l'ensemble pour éviter tout apport de chaleur externe venant de ressources fossiles. Ainsi, les fumées issues de l'unité de pyrolyse/torréfaction, contenant une petite

fraction de gaz de pyrolyse, sont brûlées dans une chambre de combustion et les fumées ainsi produites sont utilisées, d'une part, dans le four de torréfaction/carbonisation pour le traitement et, d'autre part, pour l'opération de séchage. La chambre de combustion a été modélisée par un réacteur Aspen Plus RIGIBBS. Ce dernier calcule la composition des gaz de combustion des gaz de pyrolyse avec un ajout d'air et, au besoin, un supplément de gaz naturel. Les produits de combustion, correspondent aux émissions dites « indirectes » de la phase de séchage. Deux soufflantes (élément « pompe » d'Aspen Plus) ont été ajoutées afin d'assurer une surpression (0,3 kPa) nécessaire face aux pertes de charges dans les procédés et dans les filtres. Plusieurs flux et paramètres opératoires doivent être fixés afin d'optimiser le procédé, à savoir :

- la température, le temps de séchage et l'humidité de la biomasse séchée,
- la température du gaz de pyrolyse (gaz de combustion sur la figure) et le temps de séjour de la biomasse dans le tambour,
- le débit d'air en entrée de chambre de combustion,
- le débit de gaz naturel nécessaire en entrée de chambre de combustion (en fait nul),
- le débit d'air nécessaire à la dilution des gaz de combustion.

Les caractéristiques des procédés de séchage et de pyrolyse sont fixées afin d'obtenir la qualité de produit souhaité ; les débits d'air et de gaz naturel sont calculés par la simulation pour satisfaire les caractéristiques du séchage et de la pyrolyse.

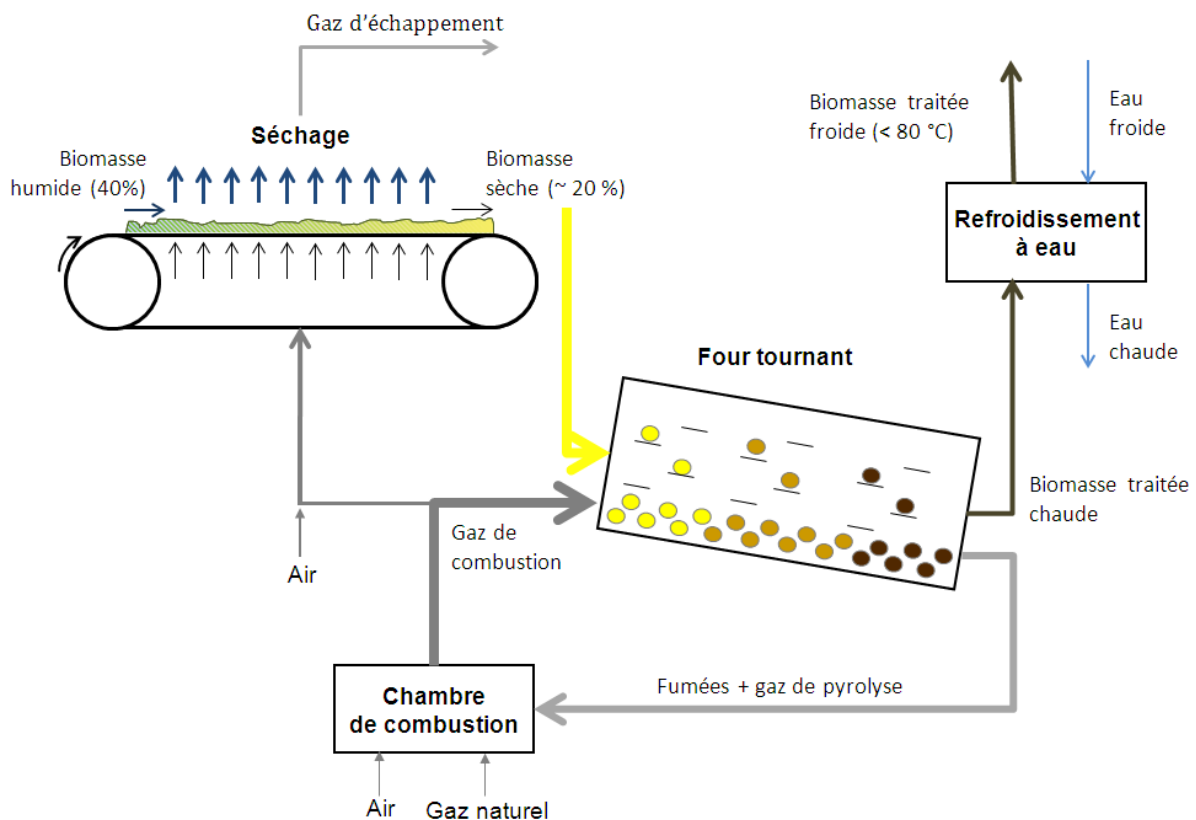


Figure 38 – Présentation de l'unité de traitement globale

Le modèle a permis de simuler deux cas de traitement de biomasse pour produire une biomasse torréfiée¹⁴ et une biomasse carbonisée. Les paramètres opératoires ont été fixés afin que les compositions de ces biomasses traitées s'approchent de celles de produits obtenus lors d'essais réalisés sur un pilote. En effet, dans le cadre de notre étude, nous avons fait produire à

¹⁴ Il ne s'agit en réalité pas d'une torréfaction puisqu'elle se déroule autour de 400 °C, mais dans le reste du document, nous qualifierons ce premier traitement de « torréfaction », afin de le distinguer de la carbonisation (cas suivant). De même, par la suite on appellera biomasse torréfiée le produit de cette pyrolyse.

un industriel (entreprise ETIA) de petites quantités de plaquette forestière pyrolysée à différentes températures. L'unité pilote utilisée était un réacteur de type convoyeur à vis, la vis jouant un double rôle de convoyeur et d'apport de chaleur par effet Joule. Les analyses correspondant aux produits fabriqués par le pilote et la composition des produits du modèle sont données dans le Tableau 57. Enfin, le Tableau 58 liste les paramètres opératoires et des flux entrants utilisés pour le calcul de ces deux cas. On note qu'aucun apport de gaz naturel n'est nécessaire.

Tableau 57 – Caractéristiques des biomasses après traitement

		Biomasse torréfiée		Biomasse carbonisée	
		Réelle	Calculée	Réelle	Calculée
Carbone	[%sec]	56,6	56,4	79,1	78,7
Hydrogène	[%sec]	5,6	5,4	3,9	4,15
Azote	[%sec]	0,14	0,15	0,16	0,38
Oxygène	[%sec]	36,1	36,9	13,2	14,8
Cendres	[%sec]	1,5	1,3	3,6	1,9
Carbone fixe	[%sec]	32,4	24	73,4	72,8
Matières volatiles	[%sec]	66,1	74,7	23,0	25,3

Tableau 58 – Paramètres opératoires utilisés pour la torréfaction et la carbonisation de biomasse (les valeurs sont données pour le traitement d'1 kg de biomasse brute à 40 % d'humidité)

	Unités	Torréfaction	Carbonisation
Température gaz de pyrolyse	[°C]	400	450
Débit gaz de pyrolyse	[Nm ³ s ⁻¹]	11,8	11,8
Durée pyrolyse	[min]	90	120
Température séchage	[°C]	115	115
Débit gaz de séchage	[kg s ⁻¹]	20	20
Durée séchage	[min]	55	55
Humidité biomasse sèche (base humide)	[%]	20	20
Débit air combustion	[Nm ³ s ⁻¹]	3,6	3,45
Débit gaz naturel combustion	[Nm ³ s ⁻¹]	0	0
Débit air dilution	[Nm ³ s ⁻¹]	13,5	22,5
Rendement solide	[%]	34,8	15,4
Rendement solide, sur sec	[kg kg ⁻¹ _{sec}]	0,58	0,26
Besoin électricité (soufflantes)	[MW]	0,95	1,01

Tableau 59 – Bilan énergétique de l'unité de torréfaction (valeurs exprimées en MW)

		Séchage		Pyrolyse	
		Entrée	Sortie	Entrée	Sortie
Solide	chimique	8,2	8,9	8,9	7
	sensible	0	0,07	0,07	0,15
Gaz	chimique	0	0	0	1,7
	sensible	1,8	1	6	6
Total		10	10	15	14,9

Tableau 60 – Bilan énergétique de l'unité de carbonisation (valeurs exprimées en MW)

		Séchage		Pyrolyse	
		Entrée	Sortie	Entrée	Sortie
Solide	chimique	8,2	8,9	8,9	4,6
	sensible	0	0,07	0,07	0,13
Gaz	chimique	0	0	0	3,6
	sensible	1,8	1	7,0	7,5
Total		10,0	10,0	16,0	15,8

A l'issue de chaque simulation, un inventaire des émissions et des besoins (en bois, électricité, gaz naturel, eau et air) a été établi. Les résultats sont répertoriés en annexe M. Dans les deux cas envisagés, la plaquette forestière est fortement dégradée produisant de nombreuses matières volatiles à fort pouvoir calorifique. En effet, le gaz issu du four, mélange de gaz chauffant et de gaz de pyrolyse a un PCI de 5,3 (torréfaction) à 10,9 (carbonisation) MJ kg⁻¹. Son pouvoir calorifique, associé à sa chaleur sensible permet à ce gaz de brûler à haute température dans la chambre de combustion (450 et 600 °C). Les fumées de la chambre doivent ensuite être refroidies pour atteindre les températures souhaitées (400 et 450 °C), ce qui entraîne la perte de 0,8 et 2,7 MW de chaleur. Dans ce procédé simulé, la chaleur perdue n'est pas valorisée. On pourrait cependant imaginer plusieurs méthodes de valorisation : l'utilisation de cette chaleur dans un réseau de chaleur ou la production d'électricité. Le premier cas aurait théoriquement un rendement plus important. Le second cas serait cependant plus intéressant ici puisque notre procédé nécessite un apport d'énergie électrique (environ 1 MW_{el}) pour faire fonctionner les soufflantes. D'après Siemens (2013), le rendement de ce type d'installation est de 15 %, soit une production de 0,12 et 0,4 MW_{el}. Dans la suite du document nous ne prendrons cependant pas en compte cette valorisation.

Plus généralement, on pourrait chercher à optimiser ce procédé de production de biomasse torréfiée. Par exemple, en recherchant une température de sortie de la chambre de combustion voisine de la température de pyrolyse, on éviterait la perte d'énergie que nous avons évoquée.

IV.3. Modélisation du haut fourneau sous Aspen Plus

IV.3.1. Intérêts de la modélisation du haut fourneau

Modéliser le haut fourneau sous Aspen Plus permet de remplir plusieurs objectifs en vue de la réalisation de l'inventaire de cycle de vie. Dans un premier temps, et comme nous l'avons vu dans le chapitre II, il est nécessaire d'évaluer précisément les taux de remplacement de chaque type de biomasse par rapport aux combustibles fossiles classiques. La modélisation doit également permettre de juger des impacts liés à l'utilisation de biomasse sur le procédé. En effet, le modèle peut prédire les effets sur les températures de zone de réserve thermique et de sortie de la fonte liquide, ainsi que la quantité et la composition du gaz de gueulard. En particulier, il est intéressant de connaître la composition en CO et CO₂, image de l'efficacité de l'utilisation du carbone injecté dans le haut fourneau. Ces données sont importantes d'une part pour la gestion du haut fourneau (par exemple pour le dimensionnement des unités de traitement et de valorisation du gaz) et pour vérifier les calculs effectués via un autre logiciel de simulation du haut fourneau, comme le Modèle Mathématique du Haut Fourneau¹⁵ (MMHF). Les détails et les résultats des calculs préliminaires réalisés avec MMHF sont présentés en annexe F.

¹⁵ Développé à l'IRSID (maintenant ArcelorMittal Research)

IV.3.2. Modèles existants du haut fourneau

De nombreux articles ont traité à la modélisation du haut fourneau, qu'il s'agisse de modéliser l'ensemble du procédé ou bien de s'intéresser à une partie spécifique (combustion aux tuyères, écoulements et échanges dans le cœur du fourneau etc.). Les intérêts de ces modélisations sont divers : volonté d'optimisation du procédé, par exemple la réduction de sa consommation énergétique (Danloy G. et coll. 2001; Rasul M.G. et coll. 2007), prévision du vieillissement ou de l'usure du matériel, compréhension des phénomènes internes (Takahashi K. et coll. 1996; Austin P.R. et coll. 1997; Schultmann F. et coll. 2004; Danloy G. 2008; Dong X. F. et coll. 2009) ou enfin évaluation des impacts dans le cas de solutions innovantes telles que l'utilisation de combustibles non classiques (Helle H. et coll. 2009; Söderman J. et coll. 2009) ou encore de la modification structurelle du procédé (Danloy G. 2008).

Plusieurs techniques de modélisations sont utilisées : les bilans globaux de masse et d'énergie basés sur la thermodynamique (comme le modèle MMHF), les calculs numériques détaillés en employant des logiciels de MFN (Mécanique des Fluides Numérique, ou CFD en anglais), ou des réseaux de neurones.

Les modèles mathématiques de bilans globaux peuvent jouer un rôle important dans la gestion d'une installation et pour la prédiction des points de fonctionnement lors de modification des mises au mille ou en cas d'injections annexes. Ce type de modèle, programmé pour des combustibles classiques (coke et charbon pulvérisé), est généralement utilisé par comparaison à un cas de référence réel.

La modélisation numérique détaillée repose sur des représentations complexes multidimensionnelles (2 et 3D) et multiphasiques (jusqu'à quatre phases : gaz, solide, liquide et poudre) ; elle est généralement utilisée afin de visualiser les phénomènes locaux d'écoulement de fluides et les interactions entre les différentes phases. Par exemple, Austin et coll. (1997) ont mis au point un modèle en 2D incluant quatre phases, qui permet par exemple de visualiser les agglomérats de fines au sein du fourneau. Une sophistication supplémentaire consiste à calculer l'écoulement granulaire par une méthode numérique spécifique (Zaïmi S.A. et coll. 2000). La MFN est également couramment utilisée pour la modélisation d'injections de charbon pulvérisé spéciales afin de prévoir les performances d'une modification physique (par exemple double lance d'injection) ou de taux d'injections élevés. La littérature regorge de modèles simulant le comportement des injections aux tuyères du haut fourneau. Leurs objectifs sont divers :

- évaluer l'impact du type et de la taille du combustible injecté (Guo Y.C. et coll. 2003) évaluer les performances en fonction des paramètres opératoires (taux d'injection, température de vent, taux de suroxygénation, avec ou sans PCI...) (Aoki H. et coll. 1993; Guo B. et coll. 2005; Du S.W. et coll. 2006; Gu M. et coll. 2010)
- améliorer la compréhension des processus mis en jeu lors de la combustion aux tuyères (Shen Y.S. et coll. 2011) ;
- créer un outil de simulation pour l'optimisation générale du haut fourneau (Shen Y.S. et coll. 2011) ;
- étudier les phénomènes d'érosion afin d'optimiser le design des équipements (Guo Y.C. et coll. 2003; Chen C.W. 2005).

IV.3.3. Buts recherchés et exigences à respecter par le présent modèle

En premier lieu, le modèle doit permettre de réaliser un inventaire des entrées et sorties du haut fourneau dans les cas standard et pour l'utilisation de substituts biomasses, à savoir du

charbon de bois chargé au gueulard et des fines de biomasse torréfiée ou carbonisée injectées aux tuyères. Il est également nécessaire d'évaluer les taux de remplacement de chaque type de biomasse par rapport à un cas 100 % coke. Nous souhaitons aussi que le modèle puisse fournir un aperçu de l'influence des différents combustibles de substitution sur la thermique du haut fourneau, en nous permettant de visualiser les courbes de températures des gaz et des solides en son sein. En effet, si l'injection aux tuyères est la piste la plus intéressante et la plus adaptée dans le cas de SG PAM à Pont-à-Mousson, avoir une idée de l'impact de l'utilisation d'un combustible plus réactif au sein du fourneau peut nous permettre de confirmer ou d'infirmer les conséquences sur sa marche dont nous avons commencé la discussion au chapitre II. Pour y parvenir, il est nécessaire de prendre en compte les aspects cinétiques et énergétiques associés aux processus de volatilisation, combustion et gazéification des combustibles, mais aussi à la réduction des différents oxydes de fer.

Le modèle est implémenté dans Aspen Plus, un logiciel de diagramme de flux qui ne permet théoriquement pas de traiter des modèles chimiques complexes. En effet, en fonctionnement standard, il n'est possible d'inclure les aspects cinétiques que pour des réactions chimiques entre éléments simples. La prise en compte de cinétiques impliquant des solides non conventionnels tels que le charbon ou la biomasse est compliquée et ne peut être réalisée à l'aide des outils classiques d'Aspen. De même, le logiciel n'est pas adapté à la modélisation de réactions de pyrolyse, ni à une grande gamme de réactions cinétiques multiphasiques et simultanées. Pour pallier ces manques, la majeure partie du modèle sera implémentée dans des sous-routines écrites en Fortran, introduites par le biais de calculateurs dans le modèle Aspen.

IV.3.4. Décomposition du haut fourneau

Les modèles mathématiques classiques (MMHF, par exemple) décomposent généralement le haut fourneau en deux zones physiques principales, à savoir la partie supérieure correspondant à la zone de préparation (la zone sèche sur la Figure 39) et la partie inférieure correspondant à la zone d'élaboration (zone de fusion, zone active, zones de tuyères et homme mort sur la Figure 39). Dans notre cas, nous nous sommes approchés de ce découpage physique en divisant la modélisation sous Aspen Plus en deux parties distinctes : la partie supérieure, où ne se produisent que les réactions de réduction des oxydes de fer et de gazéification du coke, et la partie inférieure, où se terminent ces mêmes réactions et où la fusion des charges ainsi que des réactions de dissolution interviennent.

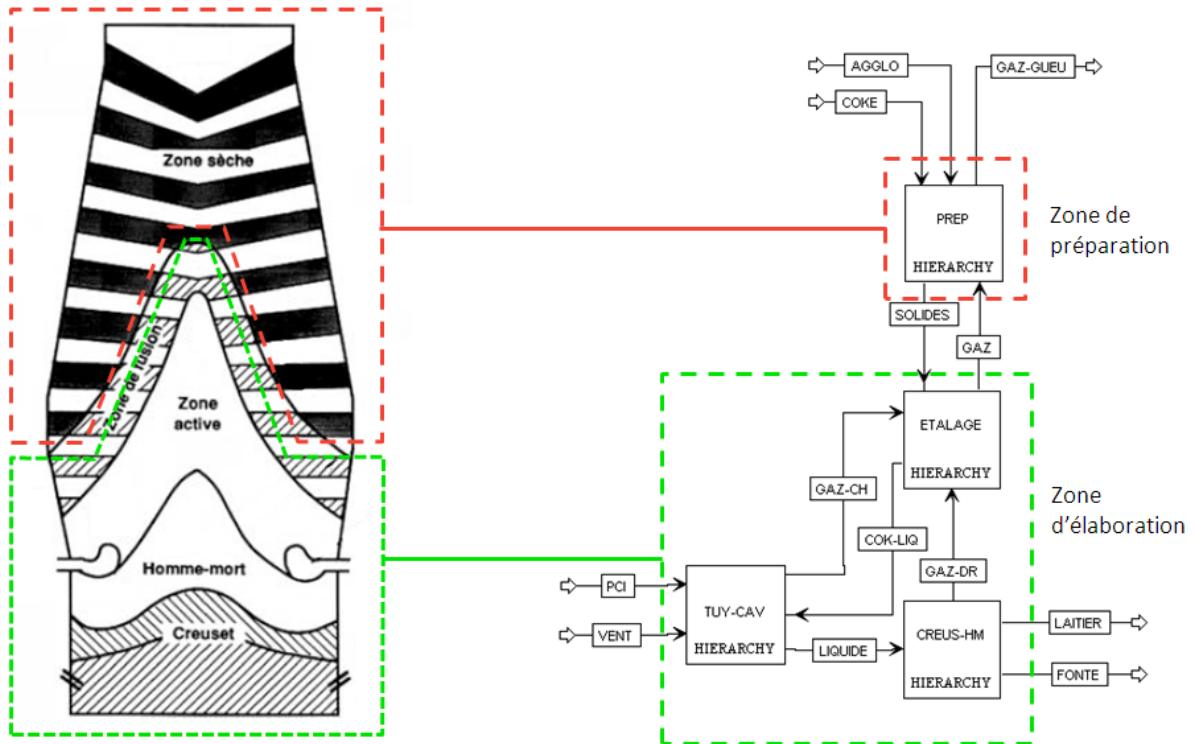


Figure 39 – Principales zones physiques du haut fourneau

IV.3.4.1. Zone de préparation

La zone de préparation s'étend généralement sur les 10 à 15 premiers mètres du fourneau. Elle consiste en un lit de couches alternées de coke et d'aggloméré et de fondants, descendant lentement, au travers duquel circule à contre-courant le gaz réducteur. Ce lit est le siège de plusieurs types de phénomènes, physiques – principalement le chauffage et le séchage des charges – et chimiques – réactions hétérogènes comme la pré-réduction des oxydes de fer et la gazéification du coke, et réactions homogènes en phase gazeuse.

Afin de modéliser le réacteur à contre-courant de manière simple, cette zone est discrétisée en 15 sous-réacteurs pistons sous forme de blocs au contenu identique (Figure 40) et dans lesquels les phénomènes physiques et chimiques sont modélisés à partir de différents outils classiques d'Aspen Plus. La Figure 41 montre le contenu d'un de ces blocs, un échangeur de chaleur (EXGS), un réacteur de type RSTOIC modélisant le séchage des charges (SEPH2O), un réacteur RSTOIC modélisant la réduction des oxydes (KINFE) et un réacteur RSTOIC pour la modélisation des réactions liées associées au coke (KINCOKE).

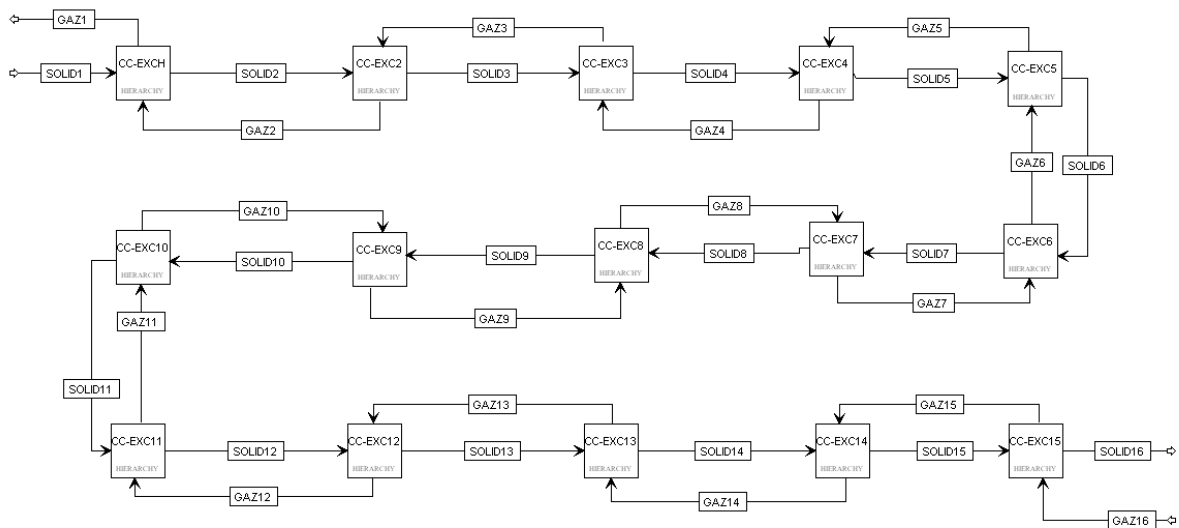


Figure 40 – Décomposition de la zone de préparation, 15 blocs hiérarchiques dont les flux entrants et sortants de charges solides et gazeuses sont reliés pour modéliser un réacteur global à écoulement piston à contre-courant.

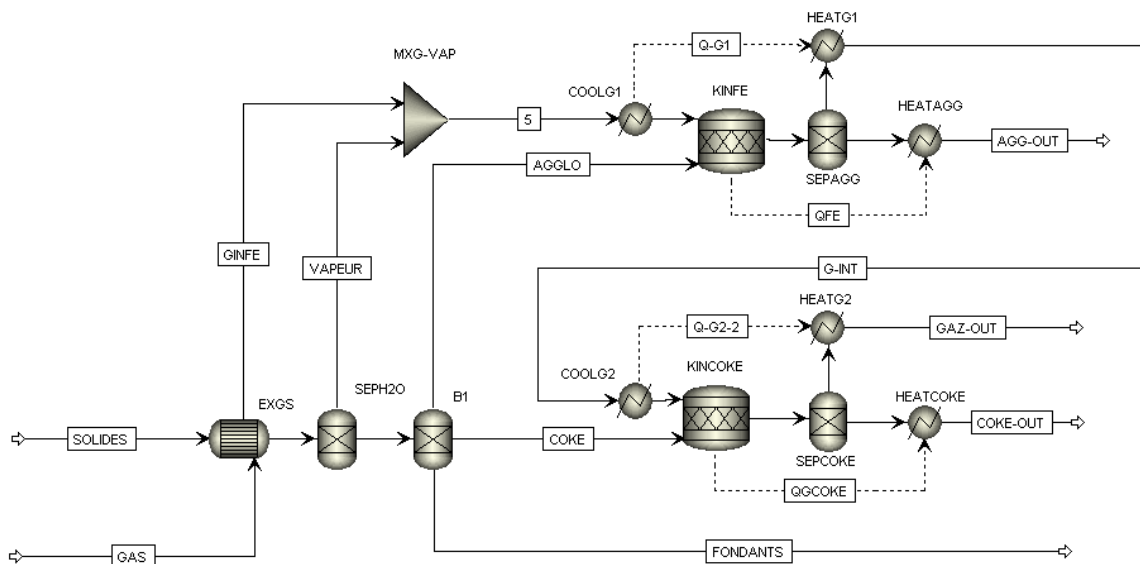


Figure 41 – Contenu d'un bloc unitaire de la zone de préparation.

Chaque bloc unitaire représente une section du haut fourneau de hauteur $H_{\text{reac},i}$. En début de simulation, un calculateur fortran fixe ce paramètre $H_{\text{reac},i}$ pour chaque bloc, des blocs plus fins étant utilisés pour les zones où les réactions ou les échanges sont les plus importants (principalement proche du gueulard). Ainsi à chaque bloc est associé un réacteur virtuel de hauteur $H_{\text{reac},i}$ et de rayon $R_{\text{reac},i}$ (Tableau 61). Ce rayon est calculé à partir du profil d'un haut fourneau standard de SG PAM (Figure 42) et de la hauteur du réacteur considéré pour respecter les volumes.

Pour simplifier la description des solides, l'ensemble du lit formé par les charges est considéré comme un mélange homogène de coke, d'aggloméré et de fondants. La dissociation des réactions liées aux oxydes de celles liées au coke en deux réacteurs permet de visualiser plus facilement l'avancement et les effets thermiques de ces deux types de réactions.

Une caractéristique importante du lit pour les calculs de transferts thermiques est sa fraction de vide. Elle peut être déterminée dans le cas d'empilement de sphères de même diamètres, voire pour un mélange de sphère de tailles différentes à partir de formules empiriques. Dans le cas présent de blocs non sphériques de taille non uniforme, il est difficile de la calculer, aussi une valeur issue de la littérature est utilisée : généralement proche de 0,5 dans la partie supérieure du haut fourneau (Joint Society on Iron and Steel Basic Research 1987). Cette valeur est utilisée ici.

Tableau 61 – Hauteurs et rayons des 15 blocs constituant la zone de préparation

Bloc	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
$H_{\text{reac},i}$ [m]	0,3	0,4	0,5	1	1,1	1,1	1,3	1,5	1,5	1,5	1,5	1,5	1,4	0,6	0,3
$R_{\text{reac},i}$ [m]	2,65	2,65	2,65	2,65	2,65	2,65	2,65	2,7	2,81	2,91	3,0	3,12	3,23	3,29	3,25

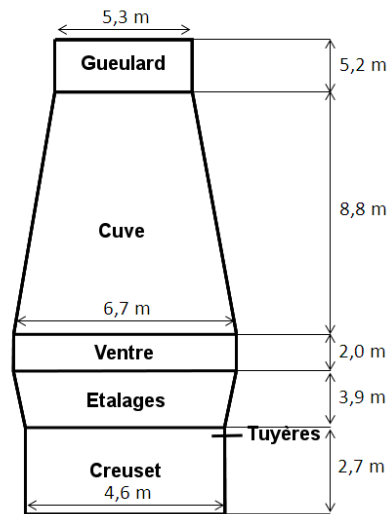


Figure 42 – Cotes d'un haut fourneau de SG PAM à Pont-à-Mousson (NB : échelle non respectée)

Chauffage des charges

Dès les premiers mètres, les charges solides froides (25 °C) chargées au gueulard sont chauffées par convection par le gaz chaud ascendant. Le flux de chaleur échangé est donné par l'équation 34, où $h_{\text{conv},th}$ est le coefficient de transfert thermique, calculé à partir du nombre de Nusselt (équation 35). Ce dernier est lui-même déterminé à l'aide de la formule 36 (Akiyama T. et coll. 1993) pour le transfert de chaleur dans un lit fixe de sphères.

$$Q_{\text{conv}} = h_{\text{conv},th} \cdot S \cdot (T_g - T_s) \quad 34$$

$$h_{\text{conv},th} = \frac{Nu \cdot k_{th,g}}{d_{pm}} \quad 35$$

$$Nu = 2,0 + 0,39 Re_p^{1/2} Pr^{1/3} \quad 36$$

T_g est la température du gaz et T_s celle des solides. Autre simplification, toutes les charges solides (coke, aggloméré et fondants) sont ici considérées comme étant à la même température. Enfin, S est la surface totale extérieure des charges solides, considérées comme des sphères de diamètres respectifs d_{coke} , d_{agg} et d_{fon} pour le coke, l'aggloméré et les fondants. Ces rayons restent constants le long de la descente dans la zone de préparation.

La surface de transfert thermique est calculée à partir de la formule 37 en fonction du volume du réacteur V_{reac} , de la fraction de vide du lit ε et du rayon moyen des charges d_{pm} (pondéré par leur fraction volumique respective, équation 38).

$$S = 6 \cdot \frac{(1 - \varepsilon)}{d_{pm}} \cdot V_{\text{reac}} \quad 37$$

$$d_{pm} = x_{\text{coke}} d_{\text{coke}} + x_{\text{agg}} d_{\text{agg}} + x_{\text{fon}} d_{\text{fon}} \quad \text{avec} \quad x_i = \frac{m_i}{\rho_i V_{p,i}} \cdot \frac{1}{\sum_i \frac{m_i}{\rho_i V_{p,i}}} \quad \text{et} \quad V_{p,i} = \frac{4}{3} \pi r_i^3 \quad 38$$

Séchage des charges

Les différentes charges du haut fourneau, du fait de leur stockage en plein air, contiennent généralement une petite fraction d'humidité (Tableau 62). Cette eau est rapidement vaporisée dans les premiers mètres du haut fourneau lors du chauffage des charges.

Tableau 62 - Humidité moyenne contenu dans les charges chez SG PAM (SG PAM 2009-2011)

Charge	Humidité (base humide) [%]
Coke	5-6
Fondants	0,94-5,4
Aggloméré	0,61-1,5

La vaporisation de l'eau est modélisée par un calculateur programmé en Fortran et intégré aux 3 premiers blocs Aspen Plus de la zone de préparation. Ce calculateur détermine la quantité d'eau vaporisée dans le bloc en fonction de l'énergie reçue par les charges lors du transfert convectif décrit précédemment (équation 39). Cela revient à considérer qu'un film de d'eau se trouve en surface des charges. Tant que l'intégralité de l'humidité n'est pas évaporée, on considère qu'aucune réaction n'a lieu entre les charges et le gaz.

$$\dot{m}_{\text{H}_2\text{O},\text{evap}} = \frac{Q_{\text{conv}}}{H_{L_v}} \quad \text{avec} \quad H_{L_v} = 2257 \text{ kJ kg}^{-1} \quad 39$$

Réactions hétérogènes – réduction des oxydes de fer

Le réacteur du type RSTOIC CIN-FE sur la Figure 43 modélise la réduction des oxydes de fer et est paramétré par un calculateur programmé en Fortran. On considère que les réactions de réduction ont lieu à température constante sur toute la hauteur du bloc considéré, cette température étant celle des solides (les réactions ayant lieu au cœur des charges).

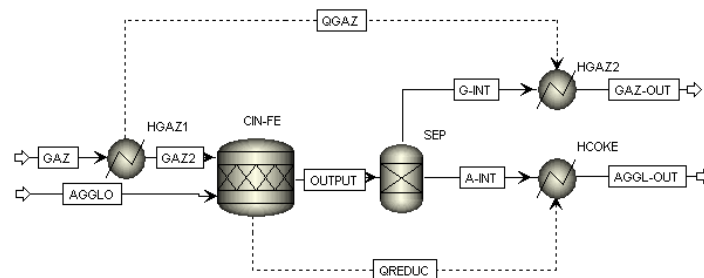


Figure 43 – Structure Aspen Plus de l'opération de réduction réalisé dans un sous-bloc

Les oxydes de fer sont apportés par l'aggloméré et sont au départ principalement composés d'hématite (Fe_2O_3 , degré d'oxydation III), avec cependant des traces de magnétite (Fe_3O_4 , degré d'oxydation II,III) et de wüstite ($\text{Fe}_{0,947}\text{O}$ ¹⁶, degré d'oxydation II). La réduction des oxydes s'effectue par étapes successives, depuis l'hématite jusqu'au fer pur, en passant par les deux oxydes intermédiaires, magnétite puis wüstite. Ces différentes réactions de réduction successives n'ont cependant pas lieu dans les mêmes conditions thermodynamiques (température, concentration en monoxyde de carbone ou en hydrogène). Les diagrammes de Chaudron (Figure 44) représentent les équilibres thermodynamiques des différents oxydes de fer en fonction de la température et de la composition du gaz ambiant. Ces diagrammes permettent d'identifier les conditions des zones sièges des différentes réactions de réductions.

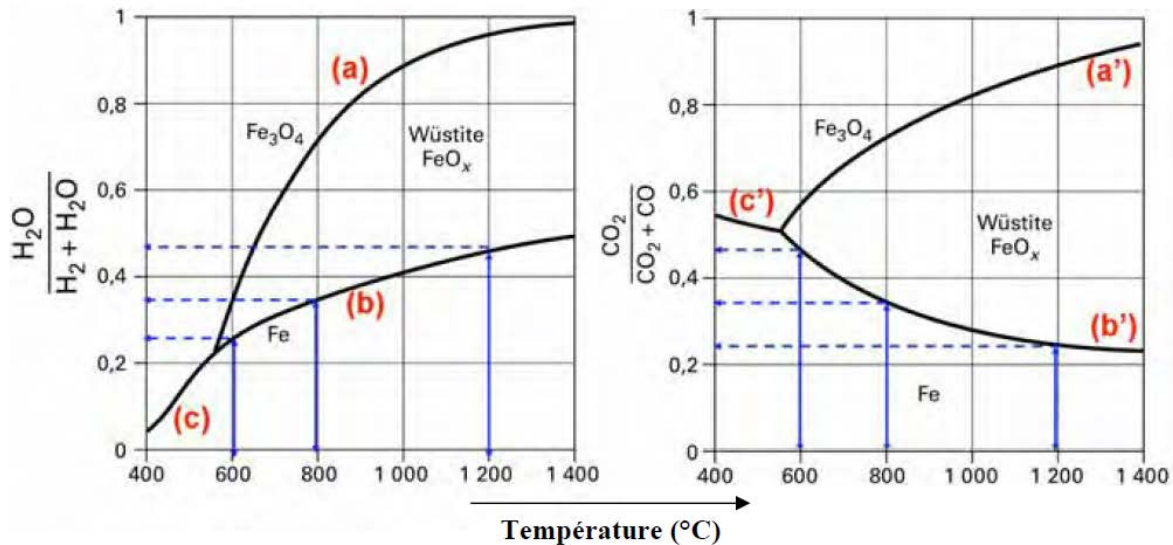
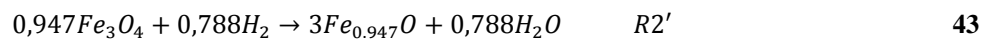
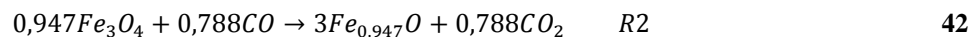
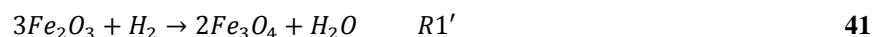
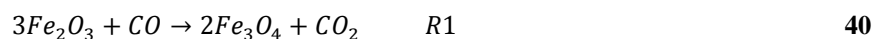


Figure 44 – Diagramme de Chaudron

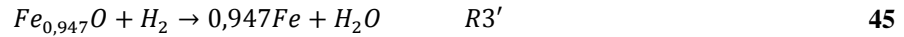
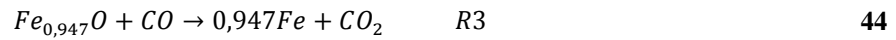
Ainsi, d'après de Lassat de Pressigny et coll. (1995), la réduction de l'hématite par CO et H_2 commence à partir de 450 °C pour former de la magnétite selon les réactions 40 et 41. Puis, comme nous pouvons le voir sur les diagrammes de Chaudron la réduction de la magnétite intervient à partir d'environ 550 °C pour former la wüstite (réactions 42 et 43).



Puisque la température des charges s'élève et que la concentration en CO et H_2 croît au cours de la descente dans le fourneau, la cinétique et la thermodynamique de ces quatre réactions entraînent des vitesses de réactions croissantes. La fin de la réduction de la magnétite coïncide généralement avec le début d'un palier de température à 950 °C, correspondant au début de la zone de réserve thermique. Comme nous l'avons expliqué dans le chapitre II, cette température est fixée par la réaction de gazéification du coke, qui sera traitée plus en détails

¹⁶ La wüstite est souvent désignée par la formule simplifiée FeO , mais elle représente en réalité un oxyde non stœchiométrique Fe_{1-y}O d'un système cristallin cubique formé d'ions Fe^{2+} et O^{2-} . y est le rapport entre les lacunes en Fe^{2+} et le nombre de sites disponibles pour les ions Fe^{2+} dans la structure cristalline, il est généralement compris entre 0,11 et 0,05. En sidérurgie, il est fréquent de prendre y proche de 0,05, dans notre cas, nous considérerons la formule de la wüstite comme étant $\text{Fe}_{0,947}\text{O}$ (Ranzani Da Costa, 2011)

dans le paragraphe suivant (*Réactions hétérogènes - gazéification du coke et du charbon de bois*). Une fois ce palier de température atteint, les charges poursuivent leur descente sans subir de réduction jusqu'à ce que les concentrations du gaz en CO ou H₂ dépassent leurs valeurs à l'équilibre thermodynamique. La réduction de la wüstite a alors lieu selon :



Du fait de leurs enthalpies de réaction, les différentes réactions de réduction jouent également un rôle sur la vitesse de chauffe des charges, et permettent d'expliquer l'allure de la courbe de température dans les premiers mètres du haut fourneau. Les enthalpies sont représentées en fonction de la température sur la Figure 45. Dans le cas de la réduction par CO, nous pouvons constater que, sur le domaine de température du haut fourneau (300 à 1500 °C), les réactions de réduction de l'hématite et de la wüstite sont exothermiques respectivement entre -50 et -20 kJ mol⁻¹ et entre -20 et -17 kJ mol⁻¹, tandis que la réaction de réduction de la magnétite est légèrement endothermique entre 12,5 et 36,5 kJ mol⁻¹. Concernant la réduction par H₂, les réactions sont endothermiques (entre 43,5 et 67 kJ mol⁻¹ pour la réduction de la magnétite et entre 12,5 et 20,6 kJ mol⁻¹ pour la réduction de la wüstite), tandis que l'enthalpie de la réduction de l'hématite reste proche de zéro dans l'intervalle de température considéré. De ce fait, on peut s'attendre à ce que les charges subissent d'abord une élévation rapide de leur température jusque sous le gueulard, puisqu'associé au chauffage des charges par convection par les gaz chauds ascendants, l'hématite est le premier oxyde réduit et sa réduction par CO aussi bien que par H₂ est source de chaleur. Par la suite, les réactions de réduction de la magnétite étant endothermiques, le chauffage des charges se voit ralentie.

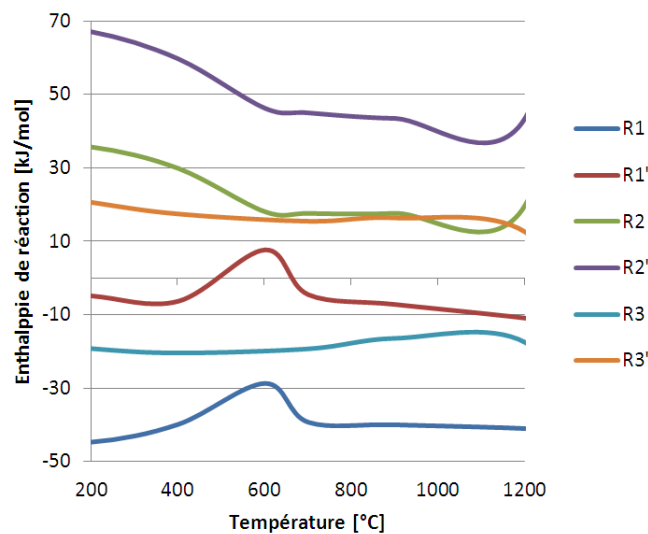


Figure 45 – Enthalpies des réactions de réduction des différents oxydes par CO (R1, R2 et R3) et par H₂ (R1', R2' et R3')

La réduction des oxydes de fer a été étudiée à de nombreuses reprises, les travaux portant essentiellement sur des modèles cinétiques (Turkdogan E.T. et coll. 1971; Srinivasan N.S. et coll. 1977; Feilmayr C. et coll. 2004; Bonalde A. et coll. 2005). Plus récemment à l'IJL, un modèle cinétique multi-échelles a été mis au point par Ranzani da Costa (2011). Celui-ci prend en compte les différents processus physico-chimiques intervenants dans le processus global de réduction ainsi que la contribution des équilibres thermodynamiques. Ce modèle a été construit sur la base d'un travail expérimental de réduction de boulettes d'hématite industrielles par l'hydrogène. Il décrit la cinétique globale par une association de régimes mixtes contrôlés par la cinétique chimique et les différents phénomènes de transports internes et externes. Les

boulettes sont représentées comme des sphères constituées de grains d'hématite sphériques et denses, séparés par des pores intergranulaires (Figure 46). La réduction de l'hématite en magnétite s'effectue selon un modèle de cœur rétrécissant qui ne modifie pas la morphologie des grains denses. Lors de la réduction de la magnétite en wüstite, les grains se divisent pour former des cristallites de wüstite, séparées par des pores intercristallites. Enfin la réduction finale de la wüstite en fer est considérée comme s'effectuant de nouveau selon le modèle du cœur rétrécissant formant une couche de fer dense en surface des cristallites de porosité nulle. De ce fait, cette dernière réduction est contrôlée par la diffusion en phase solide des ions O^{2-} .

Dans notre étude, il ne s'agit pas de boulettes d'hématite mais de blocs d'agglomérés dont la structure peut sensiblement différer. Parce qu'une étude expérimentale complète du cas de l'aggloméré utilisé par SG PAM aurait été trop chronophage pour notre étude, le modèle de Ranzani a tout de même été utilisé pour la modélisation de la réduction dans le haut fourneau. Il serait bien entendu intéressant de vérifier la validité du modèle avec l'aggloméré à l'occasion d'une étude ultérieure.

Les processus cinétiques considérés sont donc les suivants :

- la cinétique chimique des trois réactions de réduction,
- le transport externe au travers de la couche limite, par diffusion de H_2 et de CO dans le gaz entourant la particule,
- la diffusion en phase gazeuse dans les pores intergranulaires et intragranulaires (diffusion ordinaire et diffusion de Knudsen),
- la diffusion intercristallite en phase gazeuse,
- la diffusion intracristallite en phase solide.

Afin d'exprimer une cinétique globale à partir de chacune des cinétiques précédentes, Wagner et Ranzani da Costa (2011) ont utilisé le modèle de Sohn (Sohn H.Y. 1978) dit « des temps caractéristiques additifs ». Il s'agit d'une expression approchée de la combinaison des différentes résistances cinétiques (chimiques et de transport). Dans cette approche, on considère que les processus cinétiques interviennent en série, leurs temps caractéristiques respectifs sont alors additionnés pour exprimer le temps caractéristique de la réaction globale et obtenir la vitesse de réaction. Plus de détails sur le contenu du modèle, de ses hypothèses et sa validation sont fournis dans la thèse de Ranzani da Costa (2011). Par ailleurs, la transposition de ce modèle à notre cas est détaillée dans l'annexe G.

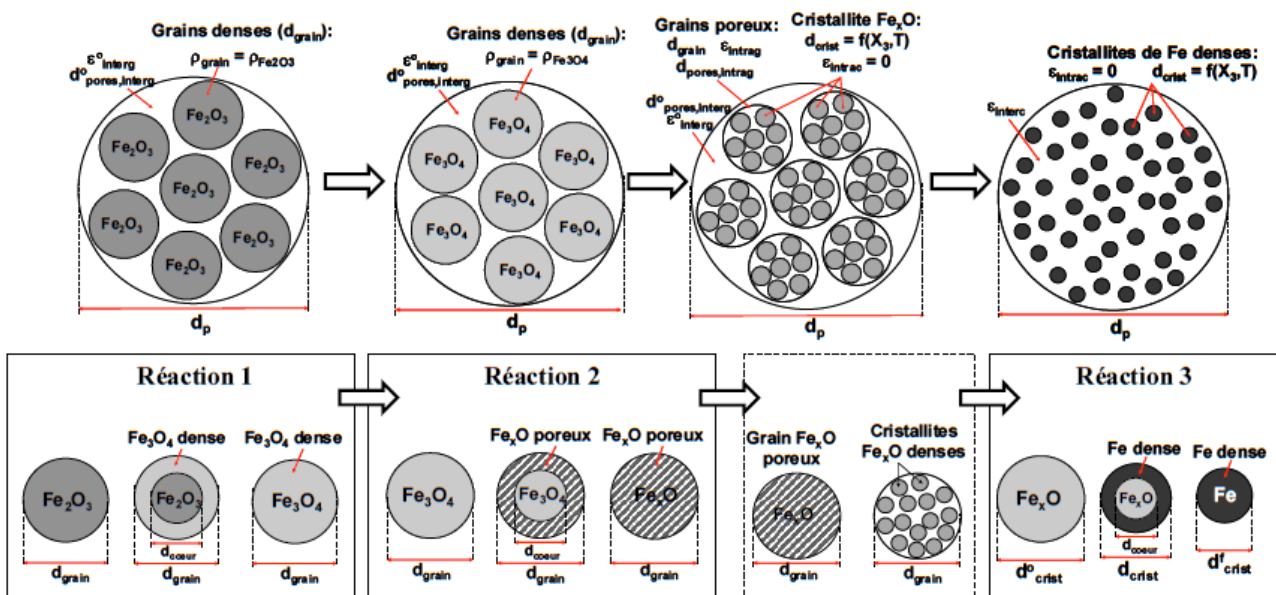


Figure 46 – Schéma du modèle cinétique de réduction de boulettes d'hématite élaboré par Ranzani Da Costa (2011) : a – évolution de la morphologie au cours de la transformation à l'échelle de la boulette, b – Mécanismes des réactions à l'échelle des grains et à l'échelle des cristallites.

Paramètres de cinétiques chimiques

Les cinétiques chimiques de réduction des oxydes fer par unité de surface réactionnelle sont généralement exprimées par des lois de types Arrhenius. Il est alors nécessaire de connaître l'énergie d'activation (E_a) et le facteur de fréquence (k_0) de chacune des réactions. Ceux que nous avons utilisés sont listés dans le Tableau 63 et proviennent du travail de Ranzani (2011) pour les réactions avec H_2 et de données de la littérature pour les réactions avec CO (Yu K.O. et coll. 1981).

Tableau 63 – Paramètres pour les lois d'Arrhenius utilisées dans le modèle

Réaction	k_0 [m s ⁻¹]	E_a [kJ mol ⁻¹]
R1	1,56 10 ⁻⁴	27,0
R2	1,71 10 ⁻²	73,3
R3	2,229	113,0
R1'	7,79 10 ⁻⁴	27,0
R2'	1,11 10 ⁻²	55,0
R3'	16	136,0

Réactions hétérogènes – gazéification du coke et du charbon de bois

De la même manière que pour les réactions de réduction, un réacteur RSTOIC (Réacteur Stœchiométrique) permet de réaliser la gazéification et est paramétré par un calculateur programmé en Fortran. La température de réaction est également constante sur toute la hauteur du bloc considéré, cette température étant celle des solides.

Le coke ou le charbon de bois, par leur forte teneur en carbone, apportent le principal agent réducteur du haut fourneau. Ils permettent de régénérer le gaz réducteur en produisant du monoxyde de carbone par gazéification de leur carbone par le dioxyde de carbone issu des réactions de réductions des oxydes de fer (équation 46). Cette réaction endothermique couramment appelée réaction de Boudouard, peut aussi être appelée réaction de régénération ou réaction de dissolution du carbone dans le cas du haut fourneau. D'après Grigore (2007), cette réaction consomme entre 20 à 30 % du coke chargé le haut fourneau, le reste étant consommé lors de la combustion aux tuyères (détaillé dans la partie consacrée aux tuyères). Une seconde réaction participe également à la gazéification du carbone (47), qui fait intervenir de la vapeur d'eau. Celle-ci permet également de régénérer des agents réducteurs puisqu'elle produit H_2 et CO.



La réaction de régénération est la principale cause de l'apparition de la zone de réserve thermique autour de 950-1000 °C. Trois aspects liés à cette réaction permettent de l'expliquer : sa thermodynamique, sa cinétique de réaction et son endothermicité. Premièrement, d'un point de vue thermodynamique, comme le montre le diagramme de la Figure 47, la réaction de Boudouard est un équilibre, elle ne devient totale qu'à partir de 1000 °C. Deuxièmement, comme l'expliquent Hutny et coll. (1991), bien qu'elle soit thermodynamiquement possible à plus basse température, la réaction de régénération en haut fourneau ne démarre qu'autour de 900 °C, du fait d'une cinétique chimique lente en dessous de 900 °C pour le coke. Comme nous l'avons vu dans le chapitre II, la réactivité du coke est un facteur important, l'augmenter permet

de démarrer la réaction de régénération à des températures plus faibles, réduisant ainsi la température de zone de réserve. Enfin, la forte endothermicité des réactions de gazéification ($163,45 \text{ kJ mol}^{-1}$ de C à 950 °C pour la réaction avec CO_2 (Burteaux M. 1991)) tend à refroidir le gaz ascendant jusqu'à atteindre sa température d'équilibre, soit 950 à 1000 °C .

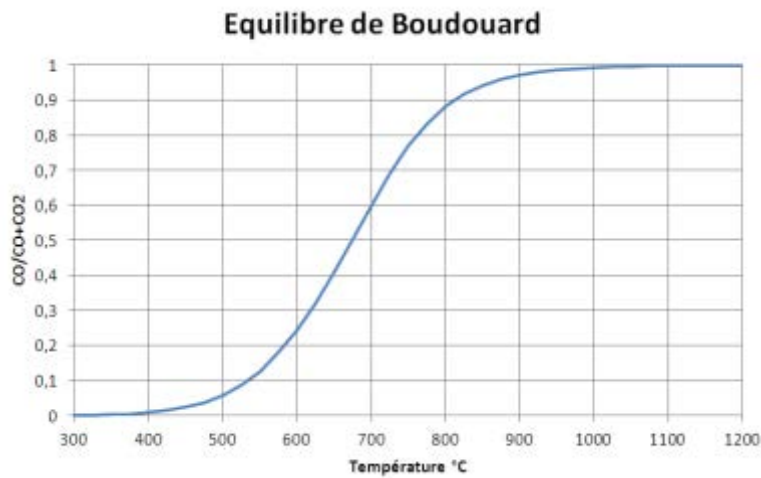


Figure 47 – Diagramme d'équilibre de Boudouard

Une réaction entre un gaz et un solide poreux comme le coke ou le charbon se déroule généralement en trois principales étapes, à savoir, une étape de diffusion externe (le transport du gaz à travers la couche limite entourant le solide), une diffusion interne (le transport au sein des pores) et la réaction chimique proprement dite ; et de même pour l'élimination des produits de la réaction (Ergun S. 1962; Story S.R. et coll. 2000; Grigore M. 2007; Jess A. et coll. 2010). Chacune de ces étapes peut être l'étape limitante, contrôlant la vitesse de la réaction. De ce fait, il est fréquent de diviser la gazéification du coke en trois régimes, contrôlés par trois des étapes précédentes.

A « basse » température, c'est la cinétique chimique qui contrôle la réaction globale. Aux températures supérieures, c'est la diffusion dans la structure poreuse du solide qui devient limitante. Enfin, aux plus hautes températures, la cinétique est contrôlée par la diffusion dans la couche limite externe. Différents modèles cinétiques correspondant à ces différents régimes ont été proposés par la littérature et les principaux sont rappelés dans l'annexe H.

Pour évaluer de manière simple la cinétique dans une large gamme de température (jusqu'à 1200 °C), nous avons retenu un modèle en régime mixte dont la forme a été tirée de l'étude de Jess et coll. (2010). (Les notations utilisées sont explicitées dans l'annexe H.)

$$\frac{dX_C}{dt} = \frac{1}{\left(\frac{1}{\eta_{pore} k_m} + \frac{1}{k_{ext}}\right)} (1 - X_C) \cdot M_C (C_{CO_2}^\alpha - C_{CO_2,eq}^\alpha) \quad 48$$

Plusieurs auteurs (Story S.R. et coll. 2000; Grigore M. et coll. 2006; Grigore M. 2007) ont abordé l'influence de la fraction minérale du coke sur sa réactivité. Story et coll. (2000) expliquent par exemple que les métaux de transition et les oxydes alcalins peuvent jouer le rôle de catalyseur de cette réaction de gazéification, tandis que le soufre pourrait être un inhibiteur. Cependant, par souci de simplification, cet aspect n'a pas été considéré dans notre travail. Pour déterminer les paramètres cinétiques de la relation 48 adaptés au coke (Pont-à-Mousson) et au charbon de bois (Barra Mansa, Brésil) de SG PAM, nous nous sommes basés sur des essais expérimentaux spécialement réalisés à cet effet à l'IJL. L'annexe H décrit des essais et leur

dépouillement. Les paramètres des lois d'Arrhenius utilisés dans notre modèle, déterminés à partir des résultats expérimentaux, sont donnés dans le Tableau 64.

Tableau 64 – Paramètres cinétiques déterminés expérimentalement pour le coke et le charbon de bois utilisés respectivement à Pont-à-Mousson et à Barra Mansa

	k_0 [$\text{m}^3 \text{kg}^{-1} \text{s}^{-1}$]	E_a [kJ mol^{-1}]
Coke	$1,42 \cdot 10^5$	208,2
Charbon de bois	$4,6 \cdot 10^6$	216,9

Pour la réaction de gazéification du carbone par la vapeur d'eau, la même formule (48) sera utilisée. Seule la cinétique chimique est modifiée, ses paramètres et la loi utilisée ont été tirés de la littérature (Tableau 65).

Tableau 65 – Paramètres de la cinétique chimique de gazéification de différents types de carbone par de la vapeur d'eau.

Réf.	Expression	k_0	E_a [kJ mol^{-1}]	Combustible
(Dupont K. et coll. 2011)	$k_0 \exp\left(\frac{-E_a}{RT_c}\right) P_{H_2O}^{0,6} (1 - X_c)^{2/3}$	$8,77 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-0,6}$	167,0	Charbon de bois
(Aoki H. et coll. 1993)	$k_0 \frac{\rho_{c,ap}}{A_c} T_c \exp\left(\frac{-E_a}{RT_c}\right)$	$13,4 \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ kg}^{-0,6}$	143,8	Coke

Note : le coke et le charbon de bois sont soumis à l'abrasion lors du chargement au gueulard (chute) ainsi qu'à des contraintes mécaniques lors de leur descente dans le haut fourneau (contrainte de compression croissante), ce qui est susceptible de réduire leur granulométrie. Cet aspect n'est cependant pas inclus dans notre étude.

Réaction de libération des matières volatiles

Dans les premiers mètres du haut fourneau, le coke et le charbon de bois, dont la température s'élève dans une atmosphère privée d'oxygène, subissent une pyrolyse. Dans le cas du coke, la teneur en matières volatiles est faible (inférieure à 2 %) et ces matières volatiles sont directement libérées dans la phase gazeuse à l'entrée du haut fourneau. Par contre, pour le charbon de bois, dont la teneur en matières volatiles est plus élevée (environ 20 à 25 %), la réaction de libération des volatils est prise en compte d'un point de vue cinétique, sous la forme d'une loi d'Arrhenius. Des résultats annexes de l'étude expérimentale mentionnée précédemment ont permis de déterminer les paramètres cinétiques de la pyrolyse : $19,2 \text{ kJ mol}^{-1}$ pour l'énergie d'activation et $0,017 \text{ s}^{-1}$ pour le facteur de fréquence. Plus de détails sur les données expérimentales d'où sont issues ces valeurs sont données en annexe I.

Réaction homogène en phase gazeuse - Réaction de gaz à l'eau

La principale réaction en phase gazeuse ayant lieu dans la zone de préparation du haut fourneau est la réaction dite de gaz à l'eau :



De manière générale, cette réaction est intéressante car elle peut être utilisée pour enrichir les gaz de synthèse en hydrogène (Byron Smith R.J. et coll. 2010). Dans notre étude, elle joue également un rôle important pour la réduction des oxydes de fer dans la partie haute du haut fourneau, de ce fait, plusieurs auteurs s'y sont intéressés (Li J. et coll. 2007; Bahgat M. et coll. 2012).

La réaction de gaz à l'eau est une réaction réversible et exothermique dans le sens direct. Comme le montre la Figure 48, la constante d'équilibre de la réaction directe tend à réduire avec la température jusqu'à $800 \text{ }^\circ\text{C}$. Pour les températures supérieures à $800 \text{ }^\circ\text{C}$, l'équilibre thermodynamique tend à favoriser la réaction inverse.

La cinétique de cette réaction dépend de divers paramètres, tels que la température et la composition du gaz ainsi que de la présence d'un catalyseur, de sa nature et de ses caractéristiques (Byron Smith R.J. et coll. 2010). Ces auteurs ont passé en revue les différents travaux réalisés sur ce sujet, listant plusieurs modèles cinétiques et un grand nombre de catalyseurs possibles et les cinétiques associées. Pour notre cas, sans catalyseur et pour des températures inférieures à 800 °C, nous utiliserons une loi cinétique utilisée dans les modèles de gazéification de biomasse, formule 50, (Wurzenberger J.C. et coll. 2002).

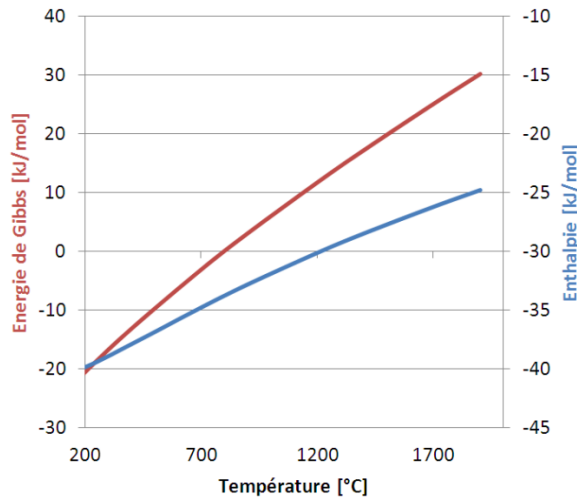


Figure 48 – Enthalpie (en bleu) et énergie de Gibbs (en rouge) de la réaction de gaz à l'eau en fonction de la température (base de données thermodynamique du logiciel COACH)

$$r_{wgs} = 2,78 \cdot 10^{-3} \exp\left(\frac{12\,554}{RT_g}\right) \left(y_{CO}y_{H_2O} - \frac{y_{CO_2}y_{H_2}}{K_{wgs}}\right) M_{H_2O} C_T^2 \quad \text{avec} \quad K_{wgs} = 0,0265 \exp\left(\frac{3968}{T_g}\right) \quad 50$$

Pertes thermiques

Les pertes thermiques d'un haut fourneau sont majoritairement liées au refroidissement de la structure du fourneau. Afin d'évaluer ces pertes, il est nécessaire de s'intéresser à la structure réelle des fourneaux de SG PAM et à son système de refroidissement. On dénombre deux principaux éléments de construction (Burteaux M. 1992) :

- un blindage en acier qui assure le maintien du haut fourneau et subit les différentes contraintes (poussée des charges, pression des gaz et de la fonte liquide en fond de creuset, dilatation thermique).
- Un garnissage en matériau réfractaire à l'intérieur du blindage. Des réfractaires de différentes natures sont utilisés le long du haut fourneau. Le réfractaire utilisé dépend en effet des températures et des contraintes physiques que le matériau doit subir ainsi que des substances avec lesquelles il est susceptible d'être en contact. Dans le haut de la cuve par exemple, il faut un matériau dur, résistant aux chocs et à l'abrasion des charges solides, on peut utiliser un mélange à base de SiC et d'argile. A mi-cuve la température peut être fluctuante et les gaz très réducteurs et contenir des alcalins, ce qui implique l'utilisation de réfractaires résistants à la corrosion, par exemple des matériaux alumineux. De même pour les réfractaires aux étalages, et du fait des grandes sollicitations mécaniques et thermiques, une épaisseur plus importante est employée. Enfin dans le creuset on utilise un matériau à base de carbone facilement refroidi.

Afin d'assurer la durée de vie des équipements du haut fourneau, il est nécessaire de protéger le garnissage et le blindage des sollicitations mécaniques et thermiques en les refroidissant. Deux types de refroidissements sont utilisés au niveau de la cuve et des étalages

des hauts fourneaux de SG PAM, d'une part le ruissellement d'eau sur le blindage, et d'autre part l'emploi de boîtes de refroidissements.

Le ruissellement consiste à faire s'écouler une couche d'eau sur le blindage du fourneau afin d'éviter un échauffement trop élevé de celui-ci. Dans le cas de SG PAM, la température et les débits d'eau ne sont pas connus en tous points. En supposant les débits suffisamment élevés et la vaporisation faible, nous avons fixé la température de l'eau à 50 °C, tout au long du blindage.

Les boîtes de refroidissement sont des circuits en cuivre placées entre les briques de réfractaires. De l'eau circule en leur sein à grande vitesse, assurant le refroidissement des briques. De même, nous avons considéré que l'eau des boîtes de refroidissement restait à la température constante de 50 °C. Chez SG PAM, les boîtes sont de forme circulaire et sont placées par rangs horizontaux de 20 boîtes, espacés régulièrement le long du haut fourneau.

Pour la modélisation des pertes, il faut donc prendre en compte le transfert de chaleur à travers ces différents éléments, à savoir le réfractaire et les divers outils de refroidissement. Les flux de chaleurs perdus s'ajoutent (équation 51)

Pour le transfert dans le réfractaire, nous utilisons une formule de transfert de chaleur dans la paroi d'un tube cylindrique (52). On considère que la température interne de la paroi est égale à la température moyenne des gaz sur chaque bloc considéré, et que la température de la paroi externe est égale à celle de l'eau ruisselant (50 °C).

$$Q_{pertes,1} = Q_{refrac} + Q_{boites} \quad 51$$

$$Q_{refrac} = f_{ref} \frac{2\lambda H_{i,react}(T_g - T_{eau})}{\ln\left(\frac{R_{react,ext}}{R_{react}}\right)} \quad 52$$

avec :

$$T_{eau} = 50 \text{ °C}$$

$$\lambda = 1,4 + 0,0002 \frac{(T_g + T_{eau})}{2}$$

$$R_{react,ext} \text{ est le rayon externe du fourneau } (R_{react,ext} = R_{react} + e)$$

$$e = 0,75 \text{ m correspond à l'épaisseur de réfractaire,}$$

$$f_{ref} = \frac{S_{ref,tot} - f_b \cdot H_{react} \cdot \pi \cdot R_b^2}{S_{ref,tot}} : \text{facteur de correction, pour ne prendre en compte que la}$$

surface dépourvue de boîtes,

$$R_b = 0,24 \text{ m, rayon des boîtes,}$$

$$f_b = 19,67 \text{ m}^{-1}, \text{ facteur correspondant au nombre de boîtes par mètre.}$$

Dans la partie haute du fourneau, des boîtes de refroidissement sont disposées en rangs espacés de 90 cm environ selon la hauteur et sont au nombre de 20 par rang. Pour calculer le flux évacué par les boîtes, on considère toutes leurs faces, d'où :

$$Q_{boites} = f_b \lambda H_{i,react} \left(\frac{\pi \cdot R_b^2 (T_g - T_{eau})}{R_{react,int} \ln\left(\frac{R_{react,int}}{R_{react}}\right)} + \frac{\pi \cdot R_b \cdot e (T_g - T_{eau})}{R_{react,int} \cdot 2} \right) \quad 53$$

avec

$$R_{react,int}, \text{ rayon moyen interne du réfractaire } (R_{react,int} = R_{react} + \frac{e}{2})$$

IV.3.4.2. Zone d'élaboration

La zone d'élaboration est la partie basse du haut fourneau. Elle est le siège d'un grand nombre de phénomènes différents, puisque c'est là que vont avoir lieu la fin de la réduction des

oxydes de fer, la fusion des minéraux, l'injection de l'air chaud, la combustion du coke et des combustibles pulvérisés. Afin de prendre en compte de manière simplifiée mais réaliste un maximum de ces phénomènes, cette zone a elle-même été décomposée en « sous zones » correspondant à des lieux physiques particuliers schématisés sur la Figure 49 : la zone de fusion (ou étalages), la zone des tuyères et des cavités et enfin la zone de l'homme mort et du creuset. La Figure 49 montre la structure du diagramme de flux modélisant la zone d'élaboration avec les différentes sous-zones physiques citées ci-dessus.

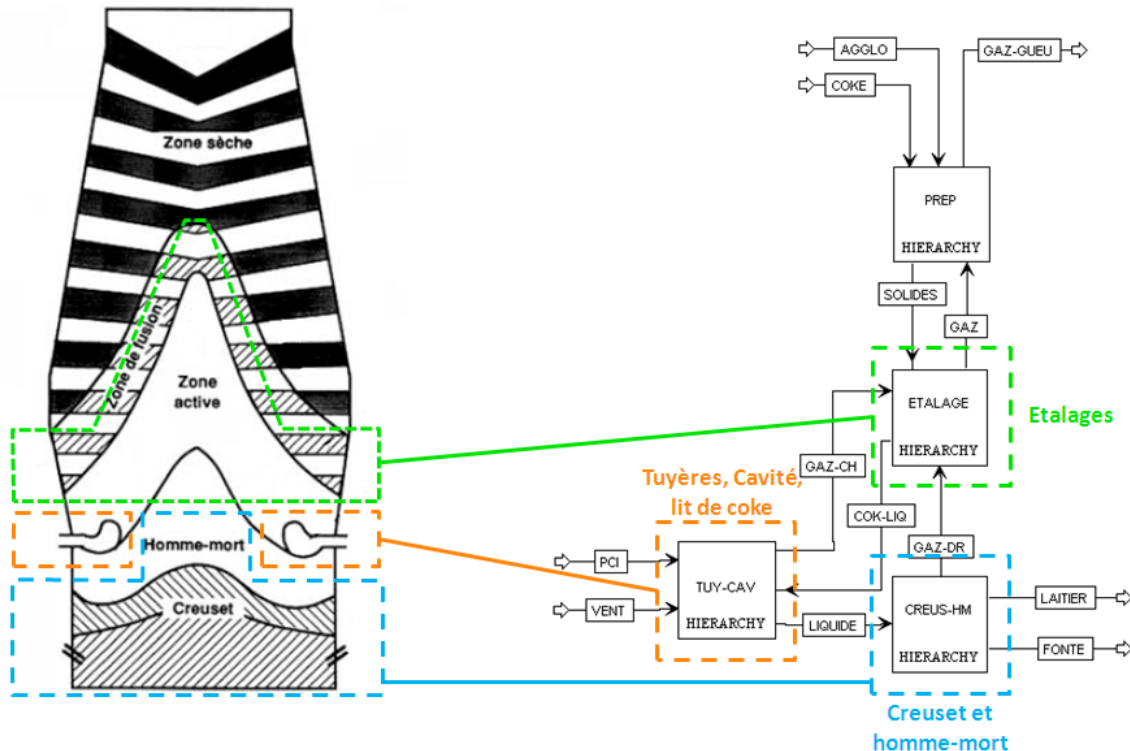


Figure 49 – Schéma des principaux éléments de construction d'un haut fourneau sur Aspen Plus

Les étalages – zone de fusion

Réactions hétérogènes

Juste en dessous de la zone de préparation se trouvent les étalages, ou encore ce que nous appelons ici la zone de fusion. Comme dans la zone de préparation, il s'y déroule la fin des réactions de réduction ainsi que les réactions de gazéification du coke. Ces phénomènes sont modélisés par les mêmes équations que celles explicitées dans la zone de préparation. Comme dans la zone précédente, la zone des étalages est discrétisée en plusieurs sous-blocs identiques (trois). Dans chaque sous-bloc, les calculs concernant la réduction et la gazéification sont également réalisés à partir d'un calculateur programmé en Fortran et les résultats transférés au diagramme de flux par l'intermédiaire d'un réacteur de type stœchiométrique. Les transferts de chaleur sont également traités de manière identique à la zone de préparation, à l'aide d'échangeurs à contre-courant, dont les paramètres (surface d'échange et coefficient de transfert) sont calculés à partir des équations citées dans le paragraphe précédent.

Fusion des charges

En plus des réactions hétérogènes précédemment abordées, cette zone est le siège de la fusion des charges métalliques et minérales. Ce phénomène est lui aussi modélisé à partir d'un couple d'un réacteur RSTOIC et d'un calculateur programmé en Fortran. Dans chaque sous-bloc le calculateur détermine la fraction de charges fondues à partir de l'énergie nécessaire pour fondre la totalité des charges et de l'énergie disponible. Pour cela, on détermine les

températures de début et de fin de fusion, respectivement température de solidus et température de liquidus. Ces températures sont ici uniquement fonction de la charge minérale et donc de sa composition. Le fer et la wüstite présents à cette étape sont considérés fondre avec le laitier, aux mêmes températures et à la même vitesse. Les températures sont calculées (en fonction des teneurs du mélange solide en SiO₂, Al₂O₃, CaO, MnO, Fe₂O₃, MgO, TiO₂, K₂O, Na₂O et F) par les relations 54 et 55, issues de Mills (2011). A des températures intermédiaires, on se trouve en présence d'un mélange binaire solide/liquide.

$$T_{sol} = 1393 - 8,4 \%_{Al_2O_3} - 3,3\%_{SiO_2} + 8,65\%_{CaO} - 13,86\%_{MgO} - 18,4\%_{Fe_2O_3} - 3,2\%_{MnO} - 9,2\%_{TiO_2} - 2,2\%_{K_2O} - 3,2\%_{Na_2O} - 6,47\%_F \quad 54$$

$$T_{liq} = 1464 + 4,2 \%_{Al_2O_3} + 11,4\%_{SiO_2} - 11\%_{CaO} + 5,7\%_{MgO} + 8,3\%_{Fe_2O_3} + 11,6\%_{MnO} - 15,8\%_{K_2O} - 10,1\%_{Na_2O} + 1,9\%_F \quad 55$$

Pertes thermiques

Les pertes thermiques dans les étalages sont calculées à partir de formules similaires au calcul des pertes dans la partie haute. Dans cette section du fourneau, les températures sont plus élevées ce qui implique une augmentation de l'épaisseur du réfractaire ($e = 0,81$ m). Les boîtes sont plus étroites que dans la partie supérieure ($H_b = 0,16$ m). Enfin, les boîtes étant plus petites, les rangs de boîtes sont plus resserrés ($f_b = 32,05$ m⁻¹).

Tuyères et cavités

Les calculs concernant la zone des tuyères et des cavités sont effectués dans le bloc hiérarchique « tuyères ». Les phénomènes physico-chimiques liés à l'injection d'air chaud et de charbon pulvérisé par les tuyères sont modélisés par l'intermédiaire de deux réacteurs de type RSTOIC correspondant respectivement aux processus ayant lieu dans les tuyères et dans les cavités. Enfin, un troisième réacteur de même type permet de modéliser les phénomènes ayant lieu dans le lit de coke entre et directement au-dessus des cavités. Les paramètres de calcul de chaque réacteur (stœchiométries et avancement des réactions) sont déterminés par trois calculateurs distincts, programmés en Fortran.

Une modélisation fidèle de cette section nécessite de connaître la structure physique réelle du lit de coke résultant des différents phénomènes présents aux tuyères. Du fait de la nature du haut fourneau (réacteur fermé et opaque) une telle connaissance n'est pas triviale. Quelques descriptions peuvent cependant être trouvées dans la littérature (Takeda K. et coll. 1997; Mathieson J.G. et coll. 2005) et des modèles simplifiés ont été créés. On peut ainsi décomposer la zone proche des tuyères en trois principales zones abstraites (Mathieson J.G. et coll. 2005) :

- la tuyère (où les combustibles d'appoint sont mélangés à l'air chaud),
- la cavité (où se déroule la volatilisation et combustion des combustibles pulvérisés et du coke)
- la zone d'influence de l'injection (gazéification par CO₂ des combustibles résiduels et du coke) dans le lit de coke.

Modélisation des tuyères

Les tuyères sont des bouches d'entrée d'air chaud, le vent, nécessaire à la combustion du coke et permettant l'élévation de température au cœur du haut fourneau. Dans le cas des hauts fourneaux de SG PAM elles sont au nombre de 10 à 11 (et jusqu'à 40 pour les plus grands hauts fourneaux (Burteaux M. 1992)). Elles sont symétriquement réparties autour de la base du

haut fourneau, à environ 2 m au-dessus du trou de coulée. Une tuyère se présente sous la forme d'un tube cylindro-conique, dont le nez pénètre d'environ 20 cm au sein du fourneau.

Chaque tuyère est constituée de plusieurs éléments : la tuyère elle-même imbriquée dans la tympe et enfin la lance d'injection (un tuyau fin de 26 mm de diamètre) permettant l'alimentation en combustible annexe, généralement du charbon pulvérisé (Figure 50). Dans la section de la tuyère qui précède l'injection de charbon pulvérisé, on n'observe que des pertes thermiques. Seule la partie à partir de laquelle le combustible pulvérisé est injecté n'a d'intérêt pour la modélisation.

Les tuyères sont alors modélisées comme des tuyaux droits de 0,09 m de diamètre et de 0,245 m de longueur, conformément aux dimensions des tuyères de SG PAM. Seule la progression axiale est considérée, les particules étant supposées réparties de manière homogène sur la section de la tuyère. A cause du très faible temps de séjour des particules de combustible dans les tuyères (inférieur à 5 ms), seuls trois phénomènes sont pris en compte : l'accélération, le chauffage et le séchage des particules.

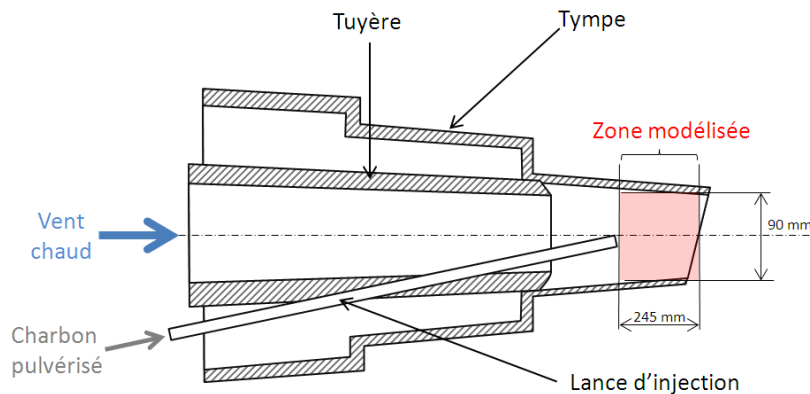


Figure 50 – Vue en coupe des différents éléments constituant la zone d'une tuyère. La zone décrite dans le modèle est représentée en rouge.

Bilan de quantité de mouvement

On considère que les particules entrent dans la tuyère par l'extrémité de la lance avec une vitesse initiale axiale et radiale nulle, et sont accélérées par le gaz chaud. L'accélération est calculée à partir d'un bilan de quantité de mouvement pour une particule : une force de trainée F_d est exercée par le gaz sur chaque particule considérée comme sphérique. Cette force s'exprime en fonction de la masse volumique du gaz ρ_g , de la vitesse relative du gaz par rapport aux particules v_{gp} , de la surface projetée d'une particule S_{pp} et du coefficient de trainée C_d . Les équations sont données dans le Tableau 67 plus loin. De la même manière, un bilan de quantité de mouvement global du gaz permet de calculer son ralentissement.

Transfert thermiques au sein de la tuyère

Les particules solides sont chauffées à la fois par convection à partir du gaz et par rayonnement à partir de la paroi de la tuyère. Le coefficient de convection est calculé à partir de la formule 35, explicitée précédemment, et du nombre de Nusselt (corrélation 56) (Ranz W.E. et coll. 1952). Pour le transfert par rayonnement, les particules de charbon et les bords de la tuyère sont considérés comme des corps noirs (émissivité égale à 1) et le rayonnement provenant de toutes les directions ($S_{ray} = S_{particule}$).

$$Nu = 2,0 + 0,6Re_p^{1/2}Pr^{1/3}$$

56

Séchage des particules

D'après nos hypothèses, le seul échange de matière ayant lieu entre les solides et le gaz résulte du séchage. Les particules de combustible étant de très petite taille, le séchage est alors modélisé comme le séchage d'un film d'eau à la surface des particules, les phénomènes de diffusion de l'eau au sein de la particule étant négligés. En fonction de la température de la particule, deux régimes sont envisagés :

- pour une température inférieure à la température humide, l'évaporation est contrôlée par la diffusion de l'eau dans la couche limite à la surface de la particule ;
- à température supérieure à la température humide, l'intégralité de l'énergie reçue par la particule par convection et rayonnement permet de vaporiser l'eau.

Le détail de ces calculs est donné plus loin dans le Tableau 67, l'expression de la pression de vapeur saturante étant tirée de (Nadeau J.P. et coll. 1995).

Bilans de masse et d'énergie

Les propriétés physiques des particules de combustible pulvérisé sont listées dans le tableau suivant. Enfin, le Tableau 67 récapitule l'ensemble des équations des bilans énergétiques et massiques pour la zone des tuyères.

Tableau 66 – Propriétés des combustibles pulvérisés utilisés

	Unités	Charbon fossile	Biomasse torréfiée	Biomasse carbonisée
ρ_p	[kg m ⁻³]	800	300	200
d_p	[μ m]	100	100	100
Carbone	[%sec]	84,8	56,6	79,1
Hydrogène	[%sec]	4,26	5,6	3,9
Azote	[%sec]	2,2	0,14	0,16
Oxygène	[%sec]	4,9	36,1	13,2
Cendres	[%sec]	5,6	1,5	3,6
Carbone fixe	[%sec]	80	32,4	73,4
Matières volatiles	[%sec]	14,4	66,1	23,0
Humidité (base humide)	[%]	1,15	5,5	7,5
PCI	[MJ kg ⁻¹]	32,4	21,9	28,2
Chaleur massique	[J kg ⁻¹ K ⁻¹]	1300	1500	1000

Tableau 67 – Principales équations du modèle des tuyères : bilan de quantité de mouvement, bilan de masse et bilan énergétique (T en K)

Bilan quantité mouvement	
Pour une particule de combustible [N]	
$m_p v_p \frac{\partial v_p}{\partial x} = F_d$	$F_d = \frac{1}{2} \rho_g C_d v_{gp}^2 S_{pp}$ Si $Re < 10^3$ $C_d = \frac{24}{Re} (1 + 0,15 Re^{0,687})$ Si $10^3 < Re < 5 \cdot 10^5$ $C_d = 0,44$
Pour le gaz [N m ⁻³]	
$\rho_g v_g \frac{\partial v_g}{\partial x} = -F_d \cdot N_p$	$N_p = \frac{\dot{m}_p}{V_g}$
Bilans énergétiques	
Solides [W]	
$m_s v_s \frac{\partial h_s}{\partial x} = Q_{Conv} + Q_{ray} - r_{evap} \cdot dx \cdot S_{p,tot} \cdot H_{Lv}$	$H_{Lv} = 2260 \text{ kJ kg}^{-1}$
Gaz [W]	
$\sum_i m_i v_g \frac{\partial h_i}{\partial x} = -Q_{Conv} - Q_{ray}$	
Bilans massiques	
Solides [kg m ⁻³ s ⁻¹]	
$\frac{\partial(\rho_p v_p)}{\partial x} = -r_{evap}$	Si $T_s < T_{bh}$ $P_{vsat} = \exp\left(23,1964 - \frac{3816,44}{T_s - 46,1}\right)$ $r_{evap} = h_c \alpha_p \rho_g \frac{(P_{v,g} - P_{vsat})}{P_g}$ avec $h_c = \frac{Sh \cdot D_{H2O,Air}}{d_p}$ Si $T_s \geq T_{bh}$ $r_{evap} = \frac{\alpha_p}{S_{p,tot}} \frac{(Q_{Conv} + Q_{ray})}{H_{Lv}}$
Gaz [kg m ⁻³ s ⁻¹]	
$\frac{\partial(\rho_g v_g)}{\partial x} = r_{evap}$	

Afin d'assurer le bouclage du bilan énergétique, les bilans sont réalisés à partir des enthalpies complètes, dans le cas du modèle des tuyères, mais également dans les modèles suivants pour les cavités et le lit de coke. Comme expliqué dans le paragraphe consacré à la modélisation de la torréfaction, les expressions des enthalpies des gaz et du carbone (pour le coke) sont issues de la base de données thermodynamiques du logiciel COACH (données en Annexe J). Pour le charbon fossile et la biomasse pulvérisée, l'enthalpie est calculée à partir de l'enthalpie de formation (expressions 20 à 23) et de la chaleur massique des solides, définies dans le Tableau 66.

Pertes thermiques

La zone des tuyères est une des zones du haut fourneau où les températures sont les plus élevées, de ce fait un important système de refroidissement est mis en place.

Les tuyères sont placées dans une pièce métallique appelée tympe, tronconique et creuse, qui est refroidie par de l'eau. Cette pièce est pourvue d'un circuit d'eau interne dans lequel circule de l'eau à grande vitesse, afin d'empêcher sa vaporisation. De ce fait, et compte tenu des températures des gaz circulant aux tuyères, les pertes thermiques sont considérables. La

géométrie de la tynpe et des tuyères étant complexes, un calcul rigoureux de ces pertes le serait aussi et donc ces pertes ont été estimées à partir de la littérature. Rasul et coll. (2007) considèrent par exemple que les pertes thermiques sont de 236 kW par tuyère, valeur que nous avons retenues pour nos calculs.

Modélisation des cavités

L'injection de vent chaud aux tuyères crée à leur nez une zone de faible densité appelée cavité ou zone tourbillonnaire (Burteaux M. 1991). Le courant du vent entraîne des particules de coke (et des fines de charbon en cas d'injection de charbon fossile pulvérisé) dans un mouvement de tourbillon. Les chocs des particules de coke sur les parois de la cavité ainsi que l'abrasion du vent produit alors des fines de coke brassées et brûlées en continu (Figure 51).

La cavité est une zone importante du haut fourneau, de nombreux auteurs se sont intéressés à la compréhension des phénomènes qui s'y déroulent et qui lui confèrent sa forme et sa taille. Selon Burteaux (1991), les cavités sont produites dans un premier temps par la combustion du coke, et sont ensuite entretenues par l'injection continue de vent. Certains auteurs estiment que la forme des cavités est due à des effets mécaniques et ont étudié l'influence de ces effets à partir de simulations et d'expériences d'injection de vent froid (Flint P.J. et coll. 1992; Rajneesh S. et coll. 2004). Flint et coll. (1992) par exemple, suggèrent que la taille des cavités n'est liée qu'aux phénomènes mécaniques et peut être calculée à partir de paramètres physiques : le débit de vent, la granulométrie du coke et la forme du lit de coke (hauteur du fourneau). D'autres auteurs suggèrent qu'il faut également prendre en compte les aspects thermiques de combustion et donc d'expansion des gaz (Nogami H. et coll. 2004; Gupta G.S. et coll. 2006). Nogami et coll. (2004) expliquent que la température des gaz et la composition du vent injecté ont également une influence notable sur la taille et la forme des cavités. Enfin Rajneesh et coll. (2004) mentionnent un phénomène d'hystérésis, montrant que différentes tailles de cavité peuvent être mesurées expérimentalement pour des conditions d'injections instantanées identiques, selon que les mesures aient eu lieu lors d'une augmentation ou une réduction de la vitesse d'injection du vent.

Afin de simplifier les calculs dans le modèle Aspen du haut fourneau, une forme et une taille unique ont été utilisées dans la modélisation des cavités, considérées alors comme des sphères de 1 m de diamètre (en accord avec les données expérimentales exposées dans l'étude de Gupta et coll. (2006) faisant état de diamètres de cavité compris entre 0,6 et 1,1 m).

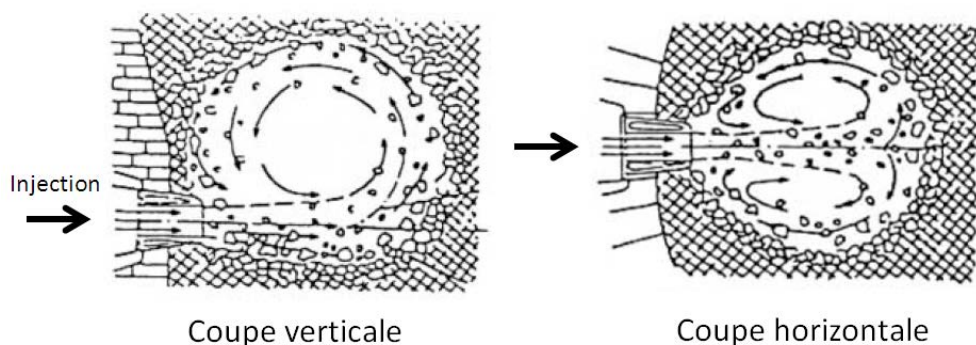
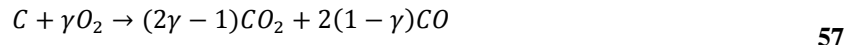


Figure 51 – Schéma de la zone tourbillonnaire (Burteaux M. 1991)

Combustion dans les cavités

Deux combustibles solides sont consommés dans les cavités d'un haut fourneau classique : le coke et le charbon pulvérisé. Le coke, majoritairement composé de carbone est consommé à la fois par une réaction de combustion, rapide (57), et par les réactions de gazéification vues précédemment (46 et 47). Du fait des températures élevées des cavités, le mécanisme de combustion du carbone est susceptible de former à la fois CO et CO₂. On peut obtenir le coefficient γ de la relation 57 à partir du rapport stœchiométrique en CO sur CO₂ issu d'une relation empirique comme la loi d'Arthur (58).



$$\gamma = \frac{n_{CO}}{n_{CO_2}} = 2500 \exp\left(-\frac{6250}{T_S}\right) \quad 58$$

La loi d'Arthur n'est généralement valable que dans une gamme de températures restreinte et ses coefficients dépendant du type de carbone. Ménard (2003) en a par exemple recensé plusieurs jeux de coefficients. Nous utiliserons cependant la loi d'Arthur initiale, celle-ci étant utilisée dans d'autres modélisations du haut fourneau (Guo B. et coll. 2005). La cinétique de combustion s'appuie sur le même modèle que celui de la gazéification, seuls les coefficients de la cinétique chimique et les coefficients de diffusion sont modifiés. Le Tableau 68 donne les valeurs des paramètres de la cinétique chimique.

Tableau 68 – Paramètres cinétiques utilisés pour la combustion du coke (Jess A. et coll. 2010)

Coefficients	Unités	Valeur
E_a	kJ mol ⁻¹	200
k_0	m ³ kg ⁻¹ s ⁻¹	3,26 10 ¹¹

La combustion de charbon ou de biomasse pulvérisée se décompose en deux étapes successives :

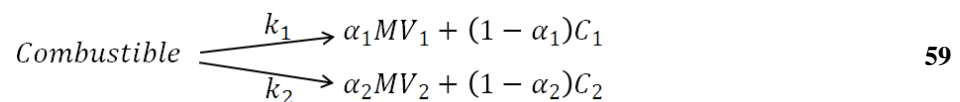
- la pyrolyse, produisant des matières volatiles et un résidu carboné (char),
- la combustion des produits de la pyrolyse, d'une part des réactions de combustion homogènes en phase gazeuse pour les matières volatiles, et des réactions de combustion hétérogènes gaz-solide pour les chars d'autre part.

Pyrolyse des combustibles

Lors de leur combustion aux tuyères, le charbon et la biomasse pulvérisés subissent dans un premier temps un chauffage rapide de l'ordre de 10⁴ à 10⁵ K s⁻¹ (Lu L. et coll. 2001). Cette augmentation rapide de température entraîne la libération de matières volatiles.

Cas du charbon fossile

Le modèle cinétique de pyrolyse le plus utilisé pour le charbon pulvérisé dans le haut fourneau est le modèle à deux réactions de pyrolyse compétitives, dont les cinétiques sont basées sur une loi type loi d'Arrhenius de pseudo-premier ordre par rapport au solide. Ces deux réactions produisent à la fois des matières volatiles et des chars (équation 59, où MV1 et MV2 désignent les matières volatiles et C1 et C2 les chars produits).



Les paramètres cinétiques (énergie d'activation et facteur de fréquence) utilisés pour le calcul des vitesses k_i et les coefficients α_i sont issus de la littérature et sont listés dans le Tableau 69. La vitesse de décomposition du charbon fossile, $\frac{\partial X_{charbon}}{\partial t}$, est alors donnée par la loi 60.

$$\frac{\partial X_{charbon}}{\partial t} = \left(k_{0,1} \exp\left(\frac{-E_{a,1}}{RT_s}\right) + k_{0,2} \exp\left(\frac{-E_{a,2}}{RT_s}\right) \right) (1 - X_{charbon})$$

$$\text{avec } X_{charbon} = \frac{(m_{char,0} - m_{char,s})}{(m_{char,0} - m_{char,\infty})}$$

$$r_{vm,1} = \alpha_1 k_{0,1} \exp\left(\frac{-E_{a1}}{RT_{char}}\right) (1 - X_{charbon})$$

$$r_{vm,2} = \alpha_2 k_{0,2} \exp\left(\frac{-E_{a2}}{RT_{char}}\right) (1 - X_{charbon})$$

$$r_{char,1} = (1 - \alpha_1) k_{0,1} \exp\left(\frac{-E_{a1}}{RT_{char}}\right) (1 - X_{charbon})$$

$$r_{char,2} = (1 - \alpha_2) k_{0,2} \exp\left(\frac{-E_{a2}}{RT_{char}}\right) (1 - X_{charbon})$$

Tableau 69 – Paramètres cinétiques de libération des matières volatiles du charbon fossile utilisés (Guo B. et coll. 2005)

i	k_{0i}		E_{ai} [kJ mol ⁻¹]	α_i
	Valeur	Unités		
1	3,7 10 ⁵	[s ⁻¹]	73,6	MV*
2	1,46 10 ¹³	[s ⁻¹]	250,1	0.8
1	3,7 10 ⁵	[s ⁻¹]	73,6	0,39
2	1,46 10 ¹³	[s ⁻¹]	250,1	2.MV
1	1,34 10 ⁵	[s ⁻¹]	73,6	MV
2	1,46 10 ¹³	[s ⁻¹]	250,1	2.MV
1	3,7 10 ⁵	[s ⁻¹]	149,65	MV
2	1,46 10 ¹³	[s ⁻¹]	250,1	0,14+1,6.MV

*MV = taux de matières volatiles du combustible

Cas de la biomasse

La modélisation de la pyrolyse de la biomasse injectée dans le haut fourneau n'est pas aussi évidente qu'avec le charbon fossile, puisqu'il s'agit ici de biomasse torréfiée ou carbonisée, et relativement peu d'études s'y sont intéressées. En effet, la biomasse torréfiée ou carbonisée contient encore une grande fraction de matières volatiles (entre 20 et 50 %) et est donc elle aussi sujette au phénomène de pyrolyse dans la première partie de sa combustion.

Comme nous l'avons vu précédemment, la température de la biomasse atteint rapidement des valeurs (plus de 900 °C) supérieures aux températures classiques de pyrolyse de la biomasse et comme le suggèrent plusieurs auteurs, l'étape de pyrolyse est alors très courte par rapport à l'étape suivante de combustion hétérogène des chars. Aussi, plutôt que le modèle à étapes multiples proposé par Branca et coll. (2003), nous avons privilégié ici l'utilisation d'un modèle simple, d'une réaction de pyrolyse globale à une étape. La vitesse d'avancement de cette réaction est donnée par la relation 61. Les paramètres d'Arrhenius utilisés sont $E_a=178,75$ kJ mol⁻¹ et $k_0 = 2,2 \cdot 10^{13}$ s⁻¹, issus de Saddawi et coll. (2009), et qui correspondent à une pyrolyse rapide de biomasse dont la vitesse de chauffe est comparable à celles rencontrés dans les cavités (10⁴ à 10⁵ K s⁻¹). Cette cinétique est utilisée pour les deux types de biomasse injectés (torréfiée ou carbonisée).

$$\frac{\partial X_{biomasse}}{\partial t} = k_{0,b} \exp\left(\frac{-E_{a,b}}{RT_s}\right) (1 - X_{biomasse}) \quad \text{avec} \quad X_{biomasse} = \frac{(m_{biom,0} - m_{biom,s})}{(m_{biom,0} - m_{biom,\infty})} \quad 61$$

Dans la relation précédente, $X_{biomasse}$ représente l'avancement de la réaction, il est calculé à partir de la masse initiale m_0 , de la masse m_s de solide et la masse résiduelle en fin de pyrolyse m_∞ . La masse de fin de pyrolyse est ici évaluée en fonction de la teneur en carbone fixe et en cendres de la biomasse initiale (formule 62), en considérant que le char produit ne contient que du carbone et des inorganiques.

$$m_\infty = m_0(x_{c-fixe} + x_{cendres}) \quad 62$$

De la même manière, il est difficile d'évaluer avec fiabilité la distribution des produits de cette pyrolyse. Nous nous sommes alors basés sur un bilan de masse des principaux éléments de la biomasse (C, H, O et N), en s'appuyant sur des compositions classiques de gaz de pyrolyse de biomasse brutes. Les produits de pyrolyse considérés dans notre étude se limitent au char, CO_2 , CO , CH_4 , H_2 , HCN et NH_3 . Il pourrait également être intéressant de prendre en compte la formation de goudrons, ce qui impliquerait la nécessité d'ajouter une étape supplémentaire de craquage des goudrons (du fait des températures élevées en présence). Cependant, nous considérerons ici que ces goudrons sont immédiatement craqués sous forme des gaz légers cités précédemment.

Afin de déterminer la distribution des gaz produits lors de la pyrolyse, nous avons pris des hypothèses de simplification de calcul, présentées par les équations 63 à 67, reliant les distributions massiques de chaque gaz. Ces hypothèses sont basées sur une simplification des compositions typiquement trouvées dans la littérature (Di Blasi C. et coll. 1999) pour la pyrolyse rapide de bois brut à haute température ($T > 700$ °C). L'intégralité de l'azote contenu dans le combustible pyrolysé est considérée comme étant volatilisée sous forme de HCN et de NH_3 , de manière équimassique. Enfin toutes les distributions massiques sont considérées comme constantes tout au long de la pyrolyse et indépendants de la température.

$$x_{CO} = x_{CO_2} \quad 63$$

$$x_{CH_4} = \frac{x_{CO_2}}{5} \quad 64$$

$$x_{H_2} = \frac{x_{CH_4}}{7} \quad 65$$

$$x_{C_2} = \frac{x_{CH_4}}{4} \quad 66$$

$$x_{HCN} = x_{NH_3} = \frac{x_N}{\left(1 + \frac{M_{NH_3}}{M_{HCN}}\right)} \quad 67$$

Réactions homogènes de combustion des matières volatiles en phase gazeuse

Au sein du gaz en mouvement turbulent dans les cavités se produisent des réactions de combustions dites homogènes, en phase gazeuse. Ces réactions, correspondant aux équations 68, 69 et 70, concernent les matières volatiles produites lors de la pyrolyse (CO , CH_4 , H_2) ainsi que les produits de combustion partielle et de gazéification (CO et H_2).



Deux mécanismes contrôlent ce type de combustion dans le cas d'injection de combustible pulvérisé (Gu M. et coll. 2010):

- la cinétique chimique de combustion,
- la cinétique de mélange des éléments au sein du gaz.

Les cinétiques de combustion des produits de pyrolyse de charbon ou de biomasse ($r_{comb,chim,i}$) sont exprimés sous la forme de loi d'Arrhenius, dont les paramètres sont listés dans le Tableau 70. Pour la cinétique de mélange, les différents auteurs ayant étudié la combustion de charbon aux tuyères du haut fourneau utilisent généralement le modèle Eddy Break-up (Gu M. et coll. 2010). Celui-ci repose sur une loi faisant intervenir le couple (k,ε) , l'énergie cinétique turbulente de l'écoulement du gaz et son taux de dissipation. Ces deux paramètres sont normalement calculés à partir d'un modèle de mécanique des fluides numérique complet. Dans le cadre de ce travail, nous nous sommes appuyés sur des calculs annexes conduits en utilisant le logiciel Fluent. Cette modélisation est détaillée en annexe L. De celle-ci ont été tirés d'une part le couple (k,ε) mais aussi le temps moyen de séjour de particules de combustibles. Les valeurs calculées et utilisées pour le rapport taux de dissipation sur énergie de cinétique turbulente et temps de séjour sont respectivement 410 s^{-1} et 45 ms. L'expression de la cinétique de mélange ($r_{comb,EBU,i}$) est donnée par la formule 71, où y_i est la concentration molaire en matière volatiles i , et v_i son coefficient stœchiométrique de combustion avec O_2 . La cinétique globale utilisée ($r_{comb,i}$) est alors la cinétique la plus faible entre la cinétique chimique et la cinétique de mélange (relation 72).

$$r_{comb,EBU,i} = 4 \frac{\varepsilon}{k} \min\left(\frac{y_i}{v_i}, y_{O_2}\right) M_i \quad 71$$

$$r_{comb,i} = \min(r_{comb,EBU,i}, r_{comb,chim,i}) \quad 72$$

Certains auteurs, par exemple Yin et coll. (2010), considèrent la réaction de combustion de CO par O_2 (68) comme réversible. Dans notre étude, au vu de l'énergie de Gibbs correspondant à cette réaction et donc à sa constante d'équilibre aux températures considérées (entre 1000 et 2500 °C), la réaction inverse n'a pas été considérée.

Tableau 70 – Expressions des cinétiques chimiques de combustions des différentes matières volatiles rencontrées dans les cavités.

Réactions	E_a [kJ mol ⁻¹]	Valeur	k_0 Unités	Référence
68	125,54	$1,3 \cdot 10^{11}$	mol ⁻¹ s ⁻¹	(Aoki H. et coll. 1993)
69	109,14	$2,19 \cdot 10^{15}$	m ³ mol ⁻¹ s ⁻¹	(Wurzenberger J.C. et coll. 2002)
70	108,1	$1,6 \cdot 10^{10}$	m ³ kg ⁻¹ s ⁻¹	(Guo Y.C. et coll. 2003)

A partir des expressions suivantes :

$$68 \quad k_0 y_{CO} y_{O_2}^{0,5} y_{H_2O}^{0,5} \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (\text{Aoki H. et coll. 1993})$$

$$69 \quad k_0 y_{H_2} y_{O_2} \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (\text{Wurzenberger J.C. et coll. 2002})$$

$$70 \quad k_0 \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (\text{Guo Y.C. et coll. 2003})$$

Combustion des chars de charbon fossile et de biomasse

Il est généralement considéré que les cinétiques de combustion et de gazéification des résidus carbonés sont contrôlées par le régime de transfert externe. En effet, du fait des

températures élevées et de la faible taille des particules (environ 0,1 mm), les cinétiques chimiques et de transfert interne peuvent être négligées. Cependant, afin de s'assurer de la fiabilité des calculs en début de cavité, où les températures sont moindres, la contribution de la cinétique chimique a tout de même été considérée. Le modèle cinétique utilisé est construit sur celui du coke présenté précédemment (zone de préparation) et est donné par la relation 73. Les paramètres de la cinétique chimique utilisés sont issus de la littérature (Guo Y.C. et coll. 2003) et valent $108,9 \text{ kJ mol}^{-1}$ pour l'énergie d'activation et $1,813 \cdot 10^3 \text{ m s}^{-1}$ pour le facteur de fréquence.

La contribution des équilibres thermodynamiques est prise en compte dans les concentrations à l'équilibre $C_{\text{CO}_2,\text{eq}}$, $C_{\text{O}_2,\text{eq}}$ et $C_{\text{H}_2\text{O},\text{eq}}$. Les expressions de calcul de ces dernières sont données dans l'annexe K.

$$\frac{dX_{\text{char}}}{dt} = \frac{1}{\left(\frac{1}{k_m} + \frac{1}{k_{\text{ext}}}\right)} (1 - X_c) \cdot M_c (C_{\text{CO}_2}^\alpha - C_{\text{CO}_2,\text{eq}}^\alpha) \quad 73$$

$$r_{\text{comb},\text{ch}} = k_{0,\text{comb}} \exp\left(\frac{-E_{a,\text{comb}}}{RT_{\text{char}}}\right) (1 - X_{\text{char},\text{ch}})$$

Combustion du coke

Afin d'être cohérent avec le reste des modèles utilisés dans le haut fourneau, nous avons modélisé la combustion et la gazéification du coke dans les cavités de la même manière que dans la partie haute du fourneau. Nous utilisons donc le modèle en régime mixte défini plus tôt par la relation 48.

Une modification est cependant ajoutée dans cette section. En effet, le coke est consommé sous deux formes : de gros blocs sur les bords des cavités, et des fines au sein de l'écoulement turbulents. Les quantités consommées par la combustion et la gazéification sont donc chacune considérées comme la somme de deux termes :

- le premier provient de la consommation des blocs de coke, dont le rayon (et l'avancement) provient des calculs des strates supérieures du haut fourneau, le nombre de Reynolds utilisé pour le calcul du coefficient de transfert de masse étant calculé à partir de la vitesse du gaz,
- l'autre pour la consommation des fines, dont la granulométrie, inconnue a priori, est fixée arbitrairement à 5 mm, le nombre de Reynolds étant calculé à partir de la vitesse relative du gaz par rapport aux particules.

Les paramètres de cinétique chimique pour la gazéification correspondent à ceux qui ont été déterminés expérimentalement (Annexe H). Pour la combustion, des valeurs issues de la littérature ont été utilisés ($E_{a,\text{comb}} = 108,9 \text{ kJ mol}^{-1}$ et $k_{0,\text{comb}} = 1,813 \cdot 10^3 \text{ m s}^{-1}$).

Transfert thermiques dans les cavités

Deux types de transferts thermiques ont lieu dans les cavités :

- des transferts par convection entre le gaz et les particules de combustible pulvérisé, et entre le gaz et le coke. Les expressions utilisées pour ces calculs sont similaires à celles utilisées dans les tuyères.
- des transferts par rayonnement entre les particules de combustibles et les bords des cavités (le coke). La formule 74 est utilisée pour calculer le flux échangé. On considère

ici que les particules de combustible et le coke sont des corps noirs (l'émissivité vaut 1). La surface de rayonnement est égale à la surface de toutes les particules $S_{char,tot}$ (on suppose un facteur de forme égale à 1).

$$Q_{ray,char} = \sigma S_{char,tot} (T_{coke}^4 - T_{char}^4) \quad \text{avec} \quad \sigma = 5,6703 \cdot 10^{-8} W m^{-2} K^{-1} \quad 74$$

$$S_{char,tot} = 4\pi \left(\frac{d_p}{2}\right)^2 \cdot N_p \quad 75$$

Bilan d'énergie et de masse dans les cavités

Le Tableau 71 récapitule les équations des bilans correspondant à cette zone.

Tableau 71 – Principales équations du modèle des cavités : bilans de quantité de mouvement, bilans de masse et bilans énergétiques.

Bilans de quantité mouvement	
Pour une particule de combustible [N]	
$m_p v_p \frac{\partial v_p}{\partial x} = F_d$	$F_d = \frac{1}{2} \rho_g C_d v_{gp}^2 S_{pp}$ <i>Si</i> $Re < 10^3$: $C_d = \frac{24}{Re} (1 + 0.15 Re^{0.687})$ <i>Si</i> $10^3 < Re < 5 \cdot 10^5$: $C_d = 0.44$
Pour le gaz [N m ⁻³]	
$\rho_g v_g \frac{\partial v_g}{\partial x} = -F_d \cdot N_p$	$N_p = \frac{\dot{m}_p}{V_g}$
Bilans énergétiques	
Solides – particules de charbon [W]	
$v_{char} \frac{\partial m_{char} h_{char}}{\partial x} = Q_{Conv,ch} + Q_{ray,ch}$	
Solides – particules de biomasse [W]	
$v_{biom} \frac{\partial m_{biom} h_{biom}}{\partial x} = Q_{Conv,b} + Q_{ray,b}$	
Solides – coke [W]	
$v_{char} \frac{\partial m_{coke} h_{coke}}{\partial x} = Q_{Conv,c} - (Q_{ray,c} + Q_{ray,b})$	
Gaz [W]	
$\sum_i v_g \frac{\partial m_i h_i}{\partial x} = -Q_{Conv,ch} - Q_{Conv,b} - Q_{Conv,c}$	
Bilans massiques	
Solides – particules de charbon [kg m ⁻³ s ⁻¹]	
$v_{char} \frac{\partial (\rho_{char})}{\partial x} = -r_{evap,ch} - (r_{vm,1} + r_{vm,2} + r_{comb,ch})$	
Solides – particules de biomasse [kg m ⁻³ s ⁻¹]	
$v_{pbiom} \frac{\partial (\rho_{biom})}{\partial x} = -r_{evap,biom} - (r_{pyro,b} + r_{comb,b})$	
Solides – coke [kg m ⁻³ s ⁻¹]	
$v_{coke} \frac{\partial (\rho_{coke})}{\partial x} = -(r_{comb,coke})$	
Gaz [kg m ⁻³ s ⁻¹]	
$v_g \frac{\partial (\rho_g)}{\partial x} = r_{evap,ch} + r_{evap,biom} + (r_{pyro,b} + r_{comb,b} + r_{comb,coke} + r_{vm,1} + r_{vm,2} + r_{comb,ch})$	

Lit de coke

Comme les tuyères et les cavités, le lit de coke situé directement autour des cavités est modélisé à l'aide d'un ordinateur programmé en Fortran dont les résultats sont intégrés au diagramme de flux par l'intermédiaire d'un réacteur prédéfini d'Apsen Plus, du type RYIELD. Le lit de coke est le siège d'un ensemble de mécanismes simultanés que nous avons déjà abordés : transferts thermiques entre les gaz et les différents solides (blocs de coke et fines de char, de charbon fossile ou de biomasse pulvérisée), gazéification et combustion du coke et des chars et combustion des matières volatiles.

Afin d'affiner les résultats et de simuler plus fidèlement les échanges de chaleur dans cette zone, le réacteur est cette fois-ci modélisé à écoulement à contre-courant, le gaz et les particules pulvérisées remontant et les blocs de coke descendant. Du point de vue de la résolution numérique, le réacteur a été divisé en 100 tranches, et un calcul itératif (maximum 2000 itérations) a permis de traiter l'aspect contre-courant.

Transfert thermiques dans le lit de coke

Les fines de char (biomasse ou fossile) subissent des échanges de chaleur par convection avec le gaz et par rayonnement avec le coke. Le coke et le mélange de laitier et de fonte liquide ruisselant sont considérés comme ayant la même température et sont chauffés par convection. La modélisation de ces différents mécanismes de transfert de chaleur a déjà été abordée dans les sections relatives aux tuyères et aux cavités. Cependant, le calcul du coefficient de transfert convectif utilisé pour le coke dans cette zone diffère de celui utilisé précédemment, puisqu'il s'agit ici d'un lit de blocs de coke. La corrélation 36 d'Akiyama et coll. (1993), est utilisée pour déterminer le nombre de Nusselt et ainsi le coefficient de transfert $h_{conv,th}$ (relation 76).

$$h_{conv,th} = \frac{Nu \cdot k_g}{d_{coke}} \quad 76$$

Réactions homogènes en phase gazeuse

La totalité de l'oxygène n'est généralement pas consommée dans les cavités, une petite fraction se retrouve dans le lit de coke, et peut réagir avec les gaz présents (majoritairement CO et H₂). Comme dans le cas des cavités, du fait de la température du gaz (supérieure à 2000 °C), la cinétique de mélange des gaz contrôle ces combustions homogènes. Frigerio et coll. (2008) se sont intéressés au taux de mélange dans des lits fixes et proposent la relation 77. Dans cette relation, l_c est une longueur caractéristique, prise égale au diamètre des blocs constituant le lit ($l_c = d_{coke}$), ε est la fraction de vide, et U_M la vitesse interstitielle du fluide. La cinétique de mélange est alors exprimée par la relation 78, à partir des fractions molaires des réactifs (y_i) et des coefficients stœchiométriques (α_i).

$$R_{mélange} = 1,2 \frac{(1 - \varepsilon)^{1/3}}{d_{coke}^{1/3} l_c^{2/3} \varepsilon^{4/3}} U_M = 1,2 \frac{(1 - \varepsilon)^{1/3}}{d_{coke} \varepsilon^{4/3}} v_g \quad 77$$

Finalement, la vitesse globale (cinétique chimique et cinétique de mélange) est prise égale à la vitesse minimale entre le mélange et les cinétiques chimiques, dont les expressions ont été données précédemment (Tableau 70).

$$r_{mélange} = R_{mélange} C_t \min \left(\frac{y_{O_2}}{\alpha_{O_2}}, y_i \right) M_i \quad 78$$

Pertes thermiques dans le lit de coke

Les pertes ont lieu sur les surfaces du haut fourneau situées entre les tuyères. La formule 52, est de nouveau utilisée, avec les paramètres donnés dans le Tableau 72. La conductivité est prise pour le réfractaire céramique utilisé dans le cas de SG PAM.

Tableau 72 – Paramètres utilisés pour le calcul des pertes thermiques dans le lit de coke

	Unités	Valeur
e	[m]	0,81
λ	[W m ⁻¹ K ⁻¹]	$-7.10^{-7} T^2 + 0,0044 T + 11,869$
f _{ref}	[-]	0,14

Bilan d'énergie et de masse dans le lit de coke

Dans le lit de coke, pour simplifier les calculs, les particules de charbon et de biomasse sont considérées comme ayant la même vitesse que le gaz. Les phénomènes mécaniques liés à la sortie du gaz des cavités sont négligés, la vitesse interstitielle est calculée à partir du débit volumique, de la porosité et de la surface S_{reac} du lit de coke.

Les équations des bilans massiques et énergétiques sont présentées ci-dessous (Tableau 73).

Tableau 73 – Principales équations du modèle de lit de coke : bilans de masse et bilans énergétiques.

Bilans énergétiques	
Solides - particules de charbon [W]	
$v_g \frac{\partial(m_{ch}h_{ch})}{\partial x} = Q_{Conv,ch} + Q_{ray,ch}$	
Solides - particules de biomasse [W]	
$v_g \frac{\partial(m_{biom}h_{biom})}{\partial x} = Q_{Conv,biom} + Q_{ray,biom}$	
Solides + liquides – coke, fonte et laitier [W]	
$v_g \frac{\partial(m_{coke}h_{coke})}{\partial x} = Q_{Conv,c} - Q_{ray,c} - Q_{ray,b}$	
Gaz (W)	
$v_g \frac{\partial}{\partial x} \left(\sum_j m_j h_j \right) = -(Q_{Conv,ch} + Q_{Conv,b} + Q_{Conv,c})$	
Bilans massiques	
Solides - particules de charbon [kg m ⁻³ s ⁻¹]	
$v_g \frac{\partial \rho_{char}}{\partial x} = -r_{comb,ch}$	
Solides - particules de biomasse [kg m ⁻³ s ⁻¹]	
$v_g \frac{\partial \rho_{biom}}{\partial x} = -r_{comb,b}$	
Solides + liquides– coke, fonte et laitier [kg m ⁻³ s ⁻¹]	
$v_{coke} \frac{\partial \rho_{coke}}{\partial x} = -r_{comb,coke}$	
Gaz [kg m ⁻³ s ⁻¹]	
$v_g \frac{\partial \rho_g}{\partial x} = r_{comb,ch} + r_{comb,b} + r_{comb,coke}$	

Homme mort et creuset

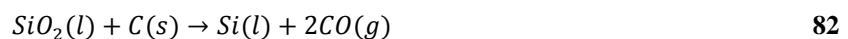
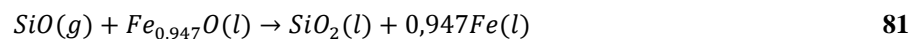
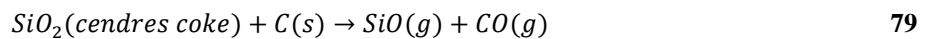
Au centre de la sorte de tore formé par les cavités et sous celui-ci s'étend un massif de coke appelé « homme mort ». Cette zone est généralement considérée comme étant de forme

conique et est chargée de laitier et de fonte liquide ce qui la rend imperméable aux gaz. L'homme mort et le creuset sont modélisés comme une seule et même zone, un réacteur 0-D, dans laquelle seules des réactions solide-liquide interviennent.

Autres réactions hétérogènes

Certains éléments, présents sous une forme oxydée (Fe_3O_4 , SiO_2 , MnO , par exemple) subissent lors de leur descente dans le haut fourneau des réactions que nous n'avons pas décrites jusqu'ici. Ces réactions doivent cependant être considérées afin d'obtenir une évaluation correcte de la composition de la fonte et du laitier, ainsi que du besoin global en carbone.

Tout d'abord, la formation du silicium, élément d'alliage de la fonte, à partir de la silice (SiO_2) est un mécanisme qui se déroule normalement dans la zone des tuyères (cavités et lit de coke autour des cavités). D'après la littérature, le silicium provient essentiellement de la silice contenue dans les cendres du coke et la réaction de réduction nécessite des températures élevées. Le silicium serait formé via SiO par le mécanisme présenté dans les équations 79 et 80. La première réaction ne peut avoir lieu qu'au sein du coke et ne produit que des espèces gazeuses. SiO peut alors réagir de nouveau avec du carbone pour former du silicium, mais il peut également entrer en contact avec des oxydes de fer et se voir de nouveau oxydé en SiO_2 (réaction 81). Il pourrait être intéressant de tenir compte de ce mécanisme afin d'évaluer par le modèle la quantité de silicium présent dans la fonte. Cependant, du fait de la difficulté de trouver les cinétiques associées, nous avons décidé de ne prendre en compte que la réaction globale de réduction directe par le carbone (82), sans cinétique. Le taux de conversion de SiO_2 en Si est alors calculé de manière à obtenir la teneur en Si moyenne de la fonte produite chez SG PAM (Tableau 74).



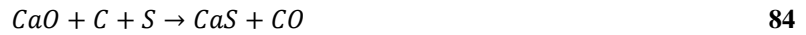
D'autres oxydes présents dans la gangue de l'aggloméré sont également réduits lors de leur descente. C'est le cas du manganèse par exemple, qui est, dans notre modèle, réduit dans le creuset du fourneau à partir du carbone (équation 83) Afin de simplifier les calculs, cette réduction n'est pas non plus basée sur une cinétique mais simplement calculée à partir des teneurs classiques de la fonte produite chez SG PAM (Tableau 74).



Tableau 74 – Analyses moyennes de fonte au trou de coulée d'un haut fourneau (SG PAM 2009-2011)

	C	Si	S	P	Mn	Cr	Pb	Cu
Teneur [%]	4,16	2,31	0,086	0,06	0,263	0,045	0,003	0,053

Le soufre est également un élément qu'on retrouve dans la fonte liquide. Il entre avec les cendres du coke sous forme de soufre solide. Une partie de ce soufre est transféré au laitier pour former CaS , tandis que le soufre restant est dissout dans la fonte (réaction 84). De même, une partie du phosphore contenu dans le coke est réduit par le carbone solide (réaction 86) pour se dissoudre dans la fonte.



Enfin, on suppose que les oxydes de fer résiduels (Fe_2O_3 , Fe_3O_4 et $Fe_{0,947}O$) sont entièrement réduits par réduction dite directe, c'est-à-dire par le carbone, dans le lit de coke et dans le creuset. L'hématite et la magnétite ne sont présentes qu'en très faibles quantités, on peut supposer que le temps de séjour dans le creuset permet leur réduction totale par le carbone (équations 87 et 88). Dans le cas de la wüstite, la réalité montre qu'une faible fraction du fer reste sous forme de wüstite dans le laitier (1,26 % de laitier d'après SG PAM (2009-2011)). Dans notre modèle, cette teneur est considérée comme négligeable et l'intégralité de la wüstite est réduite en fer par réduction directe (équation 89).



Toutes ces réactions ayant normalement lieu au cours de la descente des charges, l'intégralité des besoins énergétiques qui y sont associés est fournie par le gaz dans le lit de coke.

Pertes thermiques dans le creuset

Les pertes thermiques au creuset ont lieu sur la circonférence du fourneau. Comme sur le reste du fourneau, de l'eau ruisselle sur ces parois. Les pertes sont donc calculées ici à partir de la formule de pertes en paroi cylindrique (90), en fonction des rayons interne et externe du creuset, de la conductivité thermique du réfractaire et de la température des liquides. La température de la paroi interne est prise égale à la température de la fonte, et la température externe à celle de l'eau ruisselante (50 °C).

$$Q_{creuset} = \frac{2\pi\lambda_{creuset}H_{creuset}(T_f - T_{eau})}{\ln\left(\frac{R_{creuset,ext}}{R_{creuset}}\right)} \quad 90$$

avec

$$H_{creuset} = 1,5 \text{ m}$$

$$\lambda_{creuset} = -7 \cdot 10^{-7} \cdot T^2 + 0,0044 \cdot T + 11,869 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$$

Pertes matières sous forme de poussières

Une faible partie de la matière chargée dans le fourneau est évacuée sous forme de poussières par les gaz au gueulard. Afin de boucler le bilan massique du fourneau et d'évaluer les émissions de fines, elles doivent être prises en compte dans le modèle. Pour évaluer les quantités et compositions de ces poussières, nous avons utilisé les données mesurées par SG PAM, listées dans le Tableau 75. L'injection de PCI ou de biomasse pulvérisée est considérée n'avoir aucune conséquence sur la quantité ni la composition de ces poussières. Dans le cas où du charbon de bois est chargé au gueulard par contre, la production de poussières se voit significativement augmentée d'après les données SG PAM (63 kg t⁻¹ de fonte pour un fourneau

à 100 % de charbon de bois contre $3 \text{ kg t}^{-1}_{\text{fonte}}$ pour un haut fourneau classique de SG PAM). Faute de données précises quant à la nature des poussières produites lors de l'utilisation de charbon de bois, elles sont considérées comme étant de composition identique au charbon de bois, et leur quantité proportionnelle à la quantité chargée (par rapport au coke).

Tableau 75 – Composition moyenne des poussières des haut fourneaux de SGPAM, données en % massique (SG PAM 2009-2011)

Total	C	Fe₂O₃	SiO₂	Al₂O₃	CaO	MgO	Pb	Zn	MnO	K₂O	Na₂O	TiO₂	P
[kg t⁻¹]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]
2,73	48,5	33,3	8,5	2,8	4,1	0,6	0,0	0,7	0,0	0,3	0,0	1,1	0

IV.3.5. Cowpers

L'air injecté aux tuyères du haut fourneau, le vent, est généralement chauffé à une température comprise entre 1000 et 1200 °C pour les hauts fourneaux à coke. Dans le cas de SG PAM, cette température avoisine 1100 °C. Comme expliqué dans le chapitre II, le système de chauffage utilisé pour le vent est le cowper. Celui-ci consiste à échanger la chaleur en deux temps, par l'intermédiaire d'un ruchage en réfractaire. Dans un premier temps, la combustion d'un gaz combustible au sein du ruchage assure l'apport de chaleur, dans un second temps, le vent froid (air ambiant) circule dans le réfractaire afin d'être chauffé et atteindre la température souhaitée.

Le gaz combustible utilisé dans le cas de SG PAM est un mélange de gaz naturel et de gaz de haut fourneau, à hauteur, respectivement, de 6,3 et de 93,7 % énergétique, soit 0,07 et 1,03 MJ Nm⁻³ de vent (SG PAM 2009-2011).

Pour la modélisation sous Aspen, les cowpers sont modélisés par une chambre de combustion idéale (réacteur RGIBBS) et un échangeur contre-courant. Le réacteur permet de brûler le gaz combustible en considérant un équilibre thermodynamique des produits de combustion. Cet équilibre est calculé pour un mélange de produits possibles à une température donnée, à savoir CO, CO₂, H₂O, H₂, CH₄, NO, N₂O, NO₂, NH₃, HCN et SO₂.

La composition des gaz combustibles utilisés pour ce calcul est issue, d'une part, du calcul Aspen du haut fourneau pour le gaz de gueulard et, d'autre part, de l'analyse moyenne du gaz naturel utilisé chez SG PAM.

IV.3.6. Validation du modèle

Afin de valider le modèle, un fonctionnement standard d'un haut fourneau de SG PAM a été simulé et un certain nombre de paramètres calculés a pu être comparé à des paramètres mesurés. Le Tableau 76 et le Tableau 77 listent ces différents paramètres et indiquent les erreurs relatives. Le cas standard simulé est un cas avec injection de charbon fossile. Pour le calcul, tous les paramètres d'entrée (flux entrants et leur composition) sont renseignés à partir des données mesurées SG PAM, excepté la mise au mille coke qui est calculée par le modèle. Cette valeur est déterminée de manière à ce que l'intégralité du carbone introduite dans le fourneau soit consommée par les réactions de gazéification, de combustion et de réduction (se retrouvant ainsi dans le gaz de gueulard) ou dissous dans la fonte liquide (et sortant ainsi avec la fonte).

Tableau 76 – Liste des entrées industrielles (SG PAM 2009-2011) et de la mise au mille coke (calculée), les unités des mises au mille sont [kg t⁻¹_{fonte}] pour les charges solides et [Nm³ t⁻¹_{fonte}] pour le vent

Entrées*	Mesures	Calculs
Coke	352	363 ±2,5
Charbon pulvérisé		108
Aggloméré		1294
Minerai		99
Refusions		55
Gueusets		77
Fondants		85
Vent		1193
Température vent [°C]		1141
Humidité vent [g Nm ⁻³]		8

*la composition des différentes charges est donnée en annexe N

Tableau 77 – Quantités et composition des produits du haut fourneau

Produits	Mesures	Calculs	Ecart relatifs [%]
Fonte [kg t⁻¹]	1000	1000	0
Température [°C]	1456	1476	1,4
Composition [% massique]			
Fe	92,7	92,9	0,2
C	4,16	4,16	0
Si	2,31	2,3	0,4
S	0,086	0,025	70,9
Mn	0,263	0,26	1,1
Laitier [kg t⁻¹_{fonte}]	287	295	2,8
Composition [% massique]			
CaO	38,31	40,33	5,3
SiO ₂	46,59	46,83	0,5
Al ₂ O ₃	7,88	8,42	6,8
MgO	3,56	3,66	2,8
S	0,67	0	100
MnO	0,45	0,45	0,0
Gaz gueulard			
Température [°C]	213	231	8,4
Composition [% volumique]			
CO	21,7	20,2	6,9
CO ₂	19,0	18,9	0,5
H ₂	2,4	1,7	29,2
Rendement CO ¹⁷ [%]	47,5	48,3	1,7

On remarque un écart concernant la mise au mille coke, la simulation suggérant 3,1 % de coke supplémentaire par rapport aux données mesurées. Afin de vérifier la cohérence des résultats calculés et d'expliquer cet écart, un bilan massique en oxygène et en carbone a été réalisé à partir des entrées du modèle. Ce calcul montre que la quantité de carbone chargée, pour un rendement CO de 0,475 (valeur expérimentale), devrait être de 312 kg t⁻¹_{fonte}, ce qui correspond à 368 kg_{coke} t⁻¹_{fonte}. Ce chiffre est plus proche (et même supérieur) de la valeur calculée que de la valeur expérimentale. Nous avons donc estimé que la mise au mille coke

¹⁷ Le rendement CO s'exprime par le rapport %CO₂/(%CO+%CO₂). Il donne une image de l'utilisation du carbone dans le haut fourneau. Un rendement CO élevé signifie une bonne utilisation du monoxyde carbone.

calculée était valide. La température calculée de la fonte est correcte et les valeurs de composition de la fonte et du laitier sont globalement en accord avec les valeurs mesurées sur site. Seul le soufre pose un problème puisque le calcul indique une teneur dans la fonte inférieure à celle mesurée et une valeur nulle pour le laitier. D'après les données à notre disposition, la composition du coke et des autres charges solides ne permet effectivement pas d'atteindre les valeurs en soufre mesurées. Cette erreur pourrait provenir d'imprécisions dans les données de compositions des charges entrées.

IV.3.7. Résultats

IV.3.7.1. Autres résultats pour le cas standard

Un autre intérêt du modèle déjà évoqué, est de permettre de connaître les variations d'un certain nombre de grandeurs à l'intérieur du haut fourneau. Ainsi, la Figure 52 montre les profils verticaux des températures des gaz et des solides/liquides, fournissant une image des phénomènes thermiques ayant lieu dans le haut fourneau. La tendance générale est conforme aux attentes : on note dans un premier temps une hausse rapide de la température des solides, puis une zone de faible évolution de la température entre 950 et 1150 °C (zone de réserve thermique) et enfin une zone d'élévation de température et de fusion des charges solides jusqu'à environ 1550 °C.

La Figure 53 montre l'évolution de l'oxydation du fer des charges au cours de leur descente. On observe que la réduction des oxydes supérieurs (hématite) se déroule rapidement dans les premiers mètres du fourneau, suivie de la réduction de la magnétite. La wüstite n'est quant à elle réduite que plus tard, lorsque les conditions thermodynamiques sont favorables.

La Figure 54 permet d'observer l'évolution de la concentration en CO, ainsi que des concentrations à l'équilibre (en CO) pour les réactions de réductions de la wüstite (en vert) et pour la réaction de gazéification du coke (en bleu). On remarque par exemple que les conditions thermodynamiques ne deviennent favorables à la réduction de la wüstite qu'à partir d'une profondeur de 7 à 8 m. De même, les conditions thermodynamiques permettent la gazéification du coke à partir d'une profondeur de 2 à 3 m ; elle ne commence cependant pas avant 6 à 7 m, lorsque la température du coke assure des cinétiques suffisamment élevées.

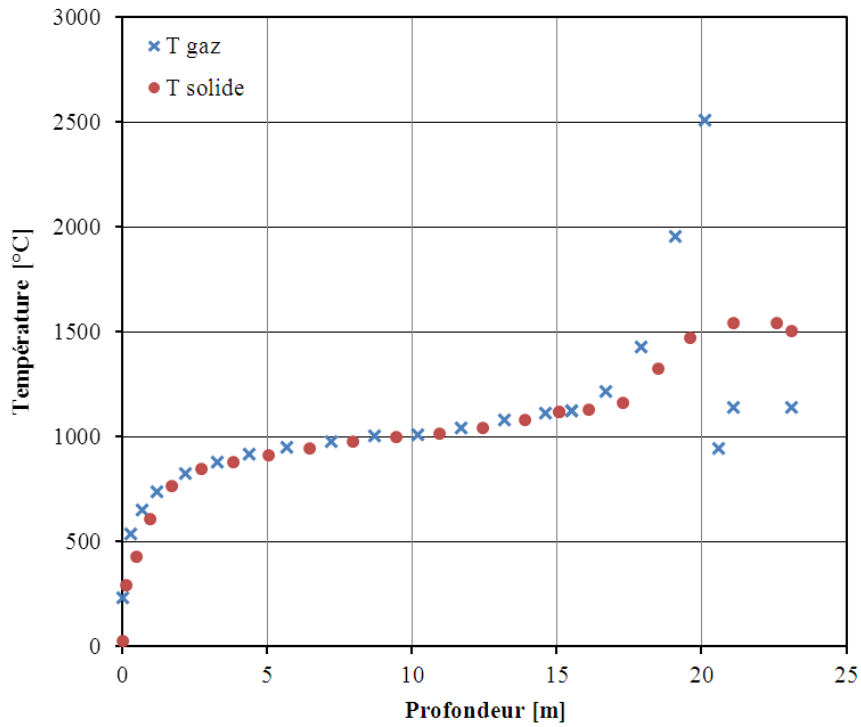


Figure 52 – Courbes de températures des gaz (en bleu) et des solides/liquides (en rouge) calculées par le modèle. Le point 0 m correspond au gueulard, et le point à 20,6 m les tuyères.

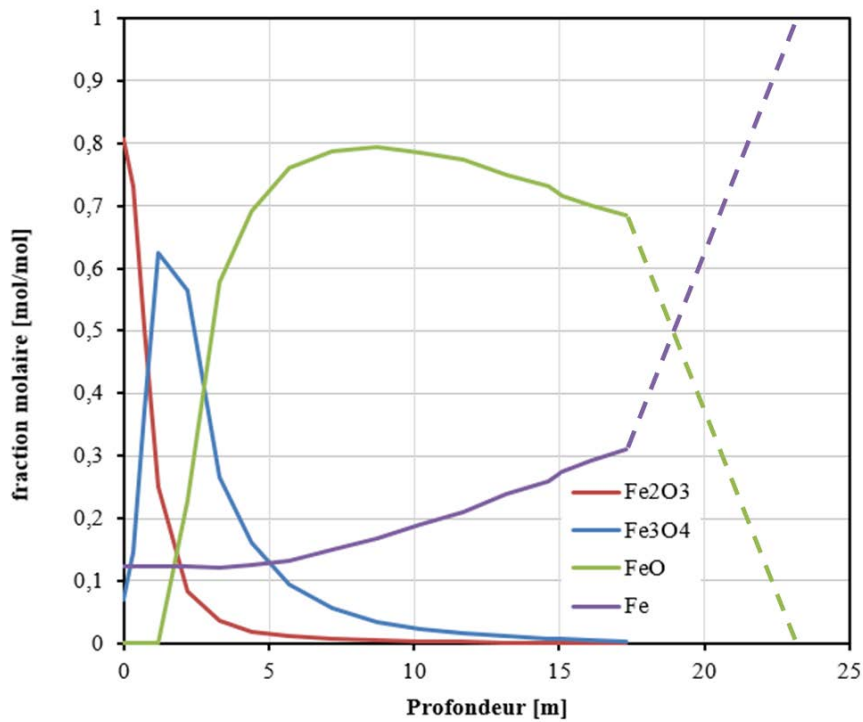


Figure 53 – Evolution des fractions molaires des différents oxydes de fer au cours de la descente des charges dans le haut fourneau.

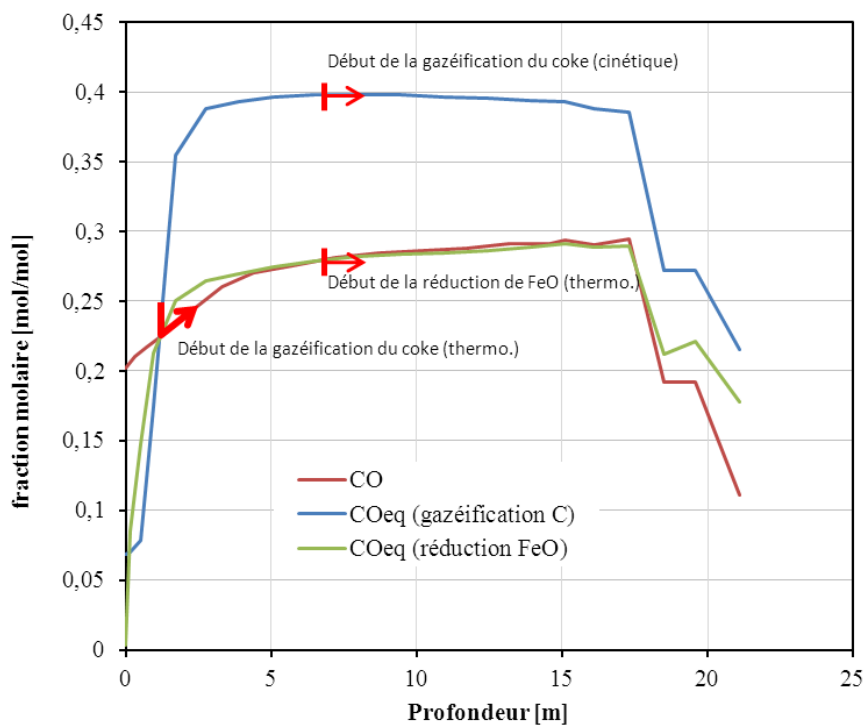


Figure 54 – Evolution de la concentration en CO le long du haut fourneau (en rouge), ainsi que des concentrations à l'équilibre pour les réactions de Boudouard (en bleu) et de réduction de la wüstite (en vert).

IV.3.7.2. Autres cas simulés

Avant de simuler les cas avec la biomasse, un second calcul est nécessaire afin d'établir une base de comparaison qui permettra de calculer les taux de remplacement des différents combustibles biomasses utilisés par rapport au coke. Il s'agit du fonctionnement du haut fourneau avec 100 % de coke (et donc sans charbon fossile pulvérisé). Les entrées utilisées pour ce calcul sont identiques au cas précédent, excepté pour la mise au mille en charbon pulvérisé qui est nulle et la mise au mille coke, calculée à partir de la simulation. Celle-ci, ainsi que la température de la fonte, est indiquée dans le Tableau 78.

Trois autres cas alternatifs ont été retenus pour lesquels des combustibles biomasses sont utilisés : avec du charbon de bois au gueulard, avec du charbon de bois pulvérisé injecté aux tuyères et avec de la biomasse torréfiée injectée aux tuyères. Dans chacun de ces cas, environ 20 % du coke a été remplacé et les mises au mille de chaque combustible alternatif ont été calculées afin que la quantité de carbone résiduel soit nulle. Les résultats concernant les mises au mille et la température de la fonte sont listés dans le Tableau 78. La quantité totale de carbone injectée dans le haut fourneau a également été calculée pour chaque cas. On observe d'ailleurs que cette quantité est liée au taux de remplacement : un taux de remplacement faible impliquera une injection plus élevée de carbone dans le haut fourneau.

Tableau 78 – Mises au mille des différents cas étudiés

	Mise au mille [kg t ⁻¹ fonte]	Température fonte [°C]
Cas 0 - Standard		
Coke	363	
Charbon fossile pulvérisé	108	1476
Charge totale C	400	
Cas 1 - 100 % coke		
Coke	461	
Charge totale C	394	1460
Cas 2 - Charbon de bois au gueulard		
Coke	362	
Charbon de bois	139	1529
Charge totale C	411	
Cas 3 - Charbon de bois pulvérisé		
Coke	366	
Charbon de bois pulvérisé	126	1548
Charge totale C	404	
Cas 4 - Biomasse torréfiée pulvérisée		
Coke	364	
Biomasse torréfiée pulvérisée	209	1414
Charge totale C	423	

Les profils de températures ainsi que les courbes d'évolution des oxydes de fer et de la teneur en CO du gaz pour les cas alternatifs ont été reportées en annexe O.

Dans le cas où seul du coke est utilisé, on observe que le profil de température des solides monte plus lentement et est moins plat que dans le cas de référence avec injection de charbon fossile. On a ici une quantité de gaz plus faible de (3 à 4 % de moins), ce qui implique une vitesse de gaz et des échanges de chaleur gaz/solides légèrement réduits. De plus, la plus grande quantité de CO et de H₂ dans la partie haute du haut fourneau en cas d'injection de charbon fossile assure une réduction plus rapide de l'hématite et la magnétite que le cas 100 % coke. Enfin, en conséquence, on observe que la réduction de la wüstite ne devient possible qu'à partir d'une profondeur de 10 m. Avant cette profondeur, la température n'est pas suffisante pour gazéifier le coke, ce qui implique que la concentration en CO (ou H₂) se maintient égale ou inférieure à la concentration d'équilibre de la réaction de réduction de la wüstite (courbe verte de la Figure 54).

Dans le cas où du charbon de bois est chargé au gueulard, on observe une modification significative du profil de températures au sein du fourneau. On remarque tout d'abord un premier palier atteint rapidement autour de 300 °C dû à la libération des matières volatiles. Ce palier coïncide avec le début de la réaction de réduction de l'hématite. Une fois les matières volatiles libérées, la température s'élève de nouveau pour atteindre un second palier autour de 800 °C, correspondant au commencement de la gazéification du carbone du charbon de bois. On remarque, sur la Figure 85 (Annexe O), que la concentration en CO dans le gaz n'atteint pas la teneur nécessaire à la réduction indirecte de la wüstite, ce qui signifie que l'essentiel de la wüstite doit être réduit plus tard par réduction directe. Ce phénomène s'explique par la lente réduction des oxydes supérieurs dans la partie haute du haut fourneau, la magnétite n'étant entièrement réduite qu'à une profondeur d'environ 15 m. Cependant, on note un rendement CO au gueulard élevé (51,5 %), plus élevé que dans le cas classique. On peut expliquer cela par le fait que CO et CO₂ sont produits lors de la libération des matières volatiles, mais également par

la présence de la réaction de gaz à l'eau dans ce domaine de température, favorisant la conversion de CO en CO₂. On pourrait donc penser que l'utilisation d'un charbon de bois moins riche en matières volatiles (cas non testé) permettrait d'obtenir des rendements (taux de remplacement) plus élevés, un palier moins long à faible température, et ainsi d'entamer la réduction de la wüstite plus en amont dans le haut fourneau et donc d'améliorer le rendement. L'utilisation d'une quantité moins importante de charbon de bois devrait avoir un effet similaire.

L'injection de biomasse torréfiée pulvérisée a plusieurs conséquences sur les profils de température. Tout d'abord, on observe une température très élevée en sortie de cavité aux tuyères (plus de 2500 °C, à une profondeur de 20,1 m sur la Figure 89, annexe O). Ceci est dû au fait que la biomasse est rapidement pyrolysée et brûlée dans les cavités, les matières volatiles et les résidus carbonés ainsi qu'une partie du coke étant rapidement consommés par les réactions de combustion avec l'oxygène. Par contre, l'oxygène étant entièrement consommé dans ces cavités, on assiste à une chute significative de la température dans le lit de coke (moins de 1850 °C, à la profondeur 19,1 m) due d'une part aux réactions de gazéification du carbone par CO₂ et H₂O, et au chauffage du coke et des liquides ruisselant (fonte et laitier). Comme dans le cas avec injection de charbon fossile, la teneur élevée du gaz ascendant en CO et H₂ assure une élévation rapide de la température en partie haute du fourneau, permettant d'atteindre une zone de réserve autour de 5 m de profondeur, impliquant une zone relativement étendue pour la réduction indirecte de la wüstite par CO/H₂. La teneur en carbone et hydrogène de la biomasse torréfiée étant significativement plus faible celle du charbon fossile pulvérisé, il est nécessaire d'en injecter une plus grande quantité.

Le cas d'injection de bois carbonisé aux tuyères est assez similaire au cas précédent, on retrouve une température élevée en sortie de cavité (proche de 2500 °C) suivie une chute rapide de la température dans le lit de coke (jusqu'à environ 1865 °C). La teneur en carbone et hydrogène de la biomasse carbonisée étant plus proche de celle du charbon fossile, la quantité à injecter se rapproche de celle injectée en charbon fossile.

IV.3.7.3. Taux de remplacement

A partir des résultats précédents, nous avons pu déterminer avec précision les taux de remplacement associés à chaque biomasse (Tableau 79). Les valeurs des taux de remplacement calculés par notre modèle du haut fourneau sont du même ordre que les valeurs obtenues à partir du modèle MMHF (listées Tableau 80), mais sont plus élevées. Cette différence s'explique principalement par une meilleure utilisation du carbone injecté dans le fourneau, ce qui est observable par l'analyse de la composition du gaz de gueulard. En effet, le rendement CO calculé par le nouveau modèle est plus élevé que le rendement CO utilisé pour les calculs MMHF (ce paramètre est fixé par l'utilisateur et dans notre cas, était pris égal au rendement en cas standard).

Tableau 79 – Taux de remplacement associé à chaque type de combustible biomasse, exprimés en [kg_{coke} kg⁻¹_{combustible alternatif}]

Charbon pulvérisé	0,907
Coke	1,0
Charbon de bois chargé au gueulard	0,712
Charbon de bois pulvérisé	0,754
Biomasse torréfiée pulvérisée	0,464

Tableau 80 – Taux de remplacement calculés par le modèle MMHF [$\text{kg}_{\text{coke}} \text{kg}^{-1} \text{combustible alternatif}$]

Coke	1,0
Charbon de bois pulvérisé	0,73
Biomasse torréfiée pulvérisée	0,37

IV.3.7.4. Gaz de gueulard et poussières émises

Les compositions du gaz de gueulard des différentes alternatives ainsi que les poussières émanant du haut fourneau sont données dans l'annexe P. Ces données seront utilisées dans le chapitre suivant pour le calcul des émissions du haut fourneau.

IV.4. Modélisation de l'unité d'agglomération sous Aspen

Un modèle existant, créé par Iosif (2009), d'une unité d'agglomération a été utilisé afin d'évaluer l'impact du remplacement d'une partie des combustibles classiques par du charbon de bois. Ce modèle permet d'évaluer les quantités de gaz produits et la composition de l'aggloméré final. Les principales émissions considérées ici sont les émissions de CO_2 , de CO, de poussières, de NO_x , de COV, de SO_x et de HCl. Dans un premier temps, le modèle a été paramétré de manière à se rapprocher du fonctionnement de l'unité d'agglomération de SG PAM, et les relations utilisées pour calculer les différentes émissions ont été partiellement modifiées.

IV.4.1. Emissions de dioxyde et de monoxyde de carbone

Lors de la combustion du carbone dans le lit d'agglomération, le carbone n'est pas entièrement brûlé. Pour calculer le rapport entre la quantité de monoxyde de carbone et la quantité de dioxyde de carbone produite, on utilise généralement la loi d'Arthur vue précédemment (relation 58). Aux températures de combustion considérées (de 1100 à 1200 °C), la loi d'Arthur prévoit une quantité négligeable de CO_2 . Dans le cas de l'agglomération, la combustion tend à se faire de manière plus complète, et la quantité de dioxyde de carbone est plus élevée que celle prévue par la loi d'Arthur. Une étude bibliographique de Iosif (2009) indique que ce rapport varie entre 0,1 et 0,16. La valeur utilisée dans le modèle original était de 0,15, valeur qui a été élevée à 0,16 pour nos calculs.

Pour le calcul des quantités produites, l'intégralité du carbone chargé en entrée de l'unité est considérée comme étant consommée dans le procédé. Les quantités de CO et CO_2 sont ainsi calculées à partir du rapport donné précédemment et de la quantité de carbone initiale. Une faible partie de ce carbone initial est consommé pour la production de COV, que nous verrons dans un paragraphe ultérieur.

IV.4.2. Emissions de NO_x

La formation de NO_x est un processus complexe qui peut être de trois principales origines (Asthana A. 2008) :

- d'origine thermique : réaction de l'azote de l'air avec l'oxygène de l'air à des températures supérieures à 1400 °C,

- d'origine dite prompt : dans les flammes “riches” d’hydrocarbures, notamment, qui consiste en une série complexe de réactions à partir de N₂ et de CH- pour former NO_x et d'autres composés intermédiaires,
- d'origine combustible : sous l'effet de l'élévation de la température, l'azote contenu dans le combustible solide est libéré sous forme de composés azotés (NH₃, HCN) et radicaux qui sont ensuite convertis en NO_x.

A l'agglomération, les températures atteintes ne dépassant pas 1300 °C, le mécanisme de formation NO_x thermique n'a pas été considéré. Le mécanisme prompt ne l'a pas été non plus du fait du faible temps de séjour des gaz à haute température. Les NO_x produits dans notre cas sont donc majoritairement d'origine combustible. Pour les déterminer, Iosif (2009) utilise une relation empirique obtenue à partir de données expérimentales pour relier la quantité de NO_x produits (sous forme monoxyde d'azote) à la quantité d'azote dans les combustibles. Cette même relation sera utilisée dans notre cas.

$$NO = 584,42 N_{combustible} + 69,49 \quad 91$$

IV.4.3. Emissions de COV¹⁸

Les COV sont des composés organiques volatiles, résultats d'une combustion incomplète. La production de COV dans le modèle est déterminée à partir de relations empiriques fonctions du taux de matières volatiles des différents combustibles. Les relations initialement utilisées dans le modèle sont données ci-dessous (92 et 93), elles expriment la quantité de COV produits en terme de kg de CH₄. Une nouvelle donnée a été ajoutée pour le cas du charbon de bois : on estime qu'environ 0,016 kg_{CH₄ eq.} de COV sont émis lors de la combustion d'un kilogramme de charbon de bois.

$$COV_{coke} = 0,0203 MV_{coke} [kg \text{ eq. } CH_4 t^{-1} \text{ agglo}] \quad 92$$

$$COV_{anthracite} = 0,157 MV_{anthracite} - 0,433 [kg \text{ eq. } CH_4 t^{-1} \text{ agglo}] \quad 93$$

$$COV_{cdB} = 0,016 [kg \text{ eq. } CH_4 t^{-1} \text{ Charbon de bois}] \quad 94$$

IV.4.4. Autres émissions (SO_x, HCl, poussières)

Le modèle permet également d'évaluer les quantités de SO_x, HCl et de poussières émises. On prend l'hypothèse que l'intégralité du soufre contenu dans la charge (combustibles) est considérée comme étant consommée lors de la combustion et forme du SO₂. Pour le chlore, le modèle initial estime que 22,44 % du chlore introduit avec la charge est converti en HCl par la réaction 95, entre l'hydrogène des combustibles solides et le chlore. Ce chiffre est issu d'une moyenne d'essais industriels. Enfin, la quantité de poussières émise est calculée par le modèle à partir d'une corrélation empirique entre la concentration en poussières et la température des fumées. De cette quantité, 90 % sont considérés comme étant filtrés et canalisés. Leur composition est prise identique à celle de l'aggloméré produit.



¹⁸ Les COV (Composés Organiques Volatils) sont des composés organiques (contenant carbone et hydrogène ou halogène, oxygène, soufre, phosphore...) à l'état gazeux à 20 °C et à 0,01 kPa ou plus.

IV.4.5. Validation du modèle

Les données calculées du modèle ont été comparées aux moyennes mesurées sur le site de Pont-à-Mousson pour l'année 2010. Les entrées utilisées et les résultats comparés sont listés dans les tableaux Tableau 81 et Tableau 82. Ce dernier tableau indique un bon accord entre mesures et calculs.

Tableau 81 – Liste des entrées de l'unité d'agglomération utilisées dans le modèle (SG PAM 2009-2011), valeurs exprimées en [kg t⁻¹ aggloméré] pour les charges minérales et combustibles et en [MJ t⁻¹ aggloméré] pour le gaz naturel

	Mesures
Combustibles	
Coke	17,1
Anthracite	31,1
Gaz naturel	67,3
Charges minérales	
Fines minerai	764
Poussières gaz HF	12
Fines retour HF	85
Fines de retour aggro	329
Olivine	12
Sable	5
Castine	127
Recyclage matière ferreuse	100

Tableau 82 – Comparaison de la composition des fumées de cheminées d'agglomération mesurées et calculées (SG PAM 2009-2011)

	Mesures		Calculs	Ecart relatifs [%]
Composition [% sec]				
CO ₂	3,63		4,0	10,2
CO	0,99		0,76	23
N ₂	78,13		77,9	0,3
O ₂	17,25		17,25	-
Autres émissions				
	min.	max.		
COV [mg _{Ceq.} Nm ⁻³]	15,7	84	66,3	0
SO _x [mg Nm ⁻³]	300,6	598,4	271,2	9,7
NO _x [mg Nm ⁻³]	215,2	345,9	254,1	0
HCl [mg Nm ⁻³]	0,11	1,6	0,44	0
Poussières [mg Nm ⁻³]	72,8	105,7	91,59	0

IV.4.6. Présentation des résultats du modèle

Le modèle a ensuite été utilisé pour évaluer les émissions pour le cas d'une substitution de la totalité de l'anthracite par du charbon de bois. Le taux de substitution choisi provient de l'étude de Lovel (2007), qui suggère qu'un kilogramme de charbon de bois pourrait remplacer 0,7 kg de coke. Dans notre cas, le coke fin utilisé à l'agglomération étant un rebuis du haut fourneau, il n'est pas souhaitable de le remplacer. Le charbon de bois remplace donc uniquement l'anthracite, lui-même étant un substitut du coke dont le taux de remplacement est estimé en moyenne à 0,76 (kg_{coke} kg⁻¹_{anthracite}). Le taux de substitution de l'anthracite par le charbon de bois est alors évalué à 0,9.

Tableau 83 – Composition moyenne des poussières des haut fourneaux de SG PAM, données en % massique (SG PAM 2009-2011)

Emissions	Unités	Cas standard	Cas charbon de bois
CO ₂	[kg t ⁻¹ _{agglo}]	211,0	215,5
CO	[kg t ⁻¹ _{agglo}]	25,6	26,1
NO _x	[gNO t ⁻¹ _{agglo}]	681,7	307,2
SO _x	[gSO ₂ t ⁻¹ _{agglo}]	728	152,3
HCl	[g t ⁻¹ _{agglo}]	1,2	1,1
COV	[gCH ₄ t ⁻¹ _{agglo}]	237,2	806,5
Poussières	[g t ⁻¹ _{agglo}]	245,8	521,3
Eau	[kg t ⁻¹ _{agglo}]	125,2	126,15

Nous pouvons observer que l'utilisation de charbon de bois a tendance à augmenter les quantités de CO₂, CO, COV et poussières produites, tandis que les SO_x et NO_x sont significativement réduites. Les émissions de CO₂ et de CO sont plus importantes du fait du taux de remplacement utilisé : plus de carbone est chargé dans le procédé, ce carbone étant transformé en CO₂, CO ou dégagé sous forme de poussières. Le charbon de bois ayant également un taux de matières volatiles 3 à 4 fois plus élevé que l'antracite, la production de COV en est multipliée par 4.

La réduction des émissions de NO_x et de SO_x est une conséquence logique de l'utilisation de charbon de bois, du fait de ses faibles teneurs en azote et en soufre.

IV.5. Conclusions

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à la modélisation physico-chimique de trois procédés clés de la filière de production de fonte avec de la biomasse : le traitement de la biomasse (bois), le haut fourneau et l'unité d'agglomération. Les modèles ont été implémentés dans le logiciel de diagrammes de flux Aspen Plus, avec adjonction de nombreux sous-programmes spécifiques écrits en Fortran.

Le premier modèle construit permet de décrire un procédé intégré de traitement de plaquette forestière, comportant une étape de pyrolyse précédée d'une étape de pré-séchage. L'énergie nécessaire au séchage et à la pyrolyse est dans notre cas intégralement fournie par la combustion des gaz de pyrolyse, permettant un fonctionnement autotherme. L'approche retenue basée sur les cinétiques, offre la possibilité de décrire les mécanismes physiques et chimiques du séchage et de la libération des matières volatiles lors de la pyrolyse. On peut ainsi déterminer les rendements matière, les émissions (CO₂, COV, poussières), ainsi que les besoins électriques pour la production de bois traité, pour une productivité donnée. Ce modèle a été exploité pour la production de produit de deux qualités différentes et proches de produits obtenus expérimentalement : un bois dit « torréfié » (pyrolysé à 400 °C pendant 90 min) et un bois carbonisé (pyrolysé à 475 °C pendant 120 min). Les résultats du modèle ont ensuite été compilés sous forme d'inventaires d'entrées et de sorties du procédé pour chaque qualité de produit.

Le second modèle abordé concerne le haut fourneau et vise plusieurs objectifs distincts. Il s'agit tout d'abord d'établir, comme pour le modèle précédent, des inventaires d'entrées et de sorties (besoins et émissions) pour différents scénarios, puis de déterminer les taux de remplacement du coke par trois types de combustibles biomasse, et enfin de visualiser l'impact de l'utilisation de ces substituts sur le fonctionnement du fourneau. Puisqu'une différence notable de comportement entre les combustibles biomasse et les combustibles fossiles réside dans leur réactivité (cinétique de gazéification et de combustion), nous avons pris soin de

considérer dans le modèle de haut fourneau ces aspects cinétiques de consommation des combustibles. Nous avons également décrit la cinétique de réduction des oxydes de fer, ainsi que les transferts thermiques. Cinq cas ou « scénarios » ont été envisagés et simulés : un cas de référence avec 100 % coke, puis quatre cas où 20 % de coke est substitué par du charbon fossile injecté aux tuyères, par des blocs de charbon de bois chargés au gueulard, par des fines de charbon de bois injectées aux tuyères et enfin par des fines de bois « torréfié » injectées aux tuyères. Le cas d'injection de charbon fossile, correspondant au fonctionnement actuel à SG PAM, a servi de cas de validation du modèle. Nous avons montré qu'on obtenait une composition de gaz gueulard et une température de fonte proches des valeurs mesurées en usine. A partir de la composition du gaz de gueulard calculée par le modèle, le besoin en gaz naturel nécessaire au chauffage du vent a pu être déterminé pour chaque scénario, et de ce fait, les émissions globales du réacteur « haut fourneau ». La simulation des cas avec biomasse a révélé un fonctionnement du haut fourneau modifié dans chaque cas. En examinant les profils de température et de composition calculés, on a notamment mis en évidence le rôle des matières volatiles à la fois sur les conditions thermodynamiques et cinétiques au sein du haut fourneau.

Enfin, un modèle d'agglomération existant a été adapté au cas de SG PAM pour la réalisation d'inventaires d'émissions pour le cas standard (uniquement combustibles fossiles) et un cas de substitution de l'intégralité de l'antracite par du charbon de bois. Le modèle, construit majoritairement à partir de relations empiriques issues de la littérature a permis de prendre en compte et d'évaluer les émissions de CO₂, CO, COV, NO_x, HCl et de poussières.

L'ensemble des données d'inventaire calculées a été utilisé pour réaliser l'analyse de cycle de vie des différents scénarios (cf. chapitre suivant).

V. Analyse de cycle de vie

Le travail présenté jusqu'ici a permis d'identifier plusieurs scénarios alternatifs pour la production de fonte avec une substitution partielle du combustible fossile par de la biomasse. La finalité de notre étude est d'évaluer leurs impacts environnementaux et de déterminer les scénarios les plus performants, à partir de la méthodologie Analyse de Cycle de Vie (ACV). L'intérêt de cet outil est de s'assurer que les impacts indirects de l'utilisation de biomasse (impacts associés aux étapes de production et de transport par exemple) n'amoindrissent pas les bénéfices apportés par l'emploi de biomasse. Au cours du travail de thèse, nous avons réalisé une première étude dite de screening des émissions de GES pour la filière de production de fonte avec biomasse, étude qui a fait l'objet d'une publication (Fick G. et coll. 2013). Les données utilisées pour la rédaction de cet article ont depuis été mises à jour grâce à la modélisation Aspen et les chiffres ont de ce fait évolué. Enfin, le screening comportait l'étude d'un cas supplémentaire – utilisation de bio-huile – cas que nous avons choisi d'écarter par la suite, du fait de ses faibles performances économiques.

Les modèles physico-chimiques des procédés de traitement de la biomasse, du haut fourneau et d'agglomération présentés au chapitre IV ont débouché sur des inventaires détaillés de leurs émissions et de leurs besoins en ressources énergétiques et matières premières. Ces inventaires vont maintenant être implémentés dans le logiciel d'ACV Gabi4 afin d'effectuer un Inventaire de Cycle de Vie (ICV) complété par des données internes au logiciel et de finaliser l'ACV. L'emploi d'un tel logiciel d'ACV présente de multiples intérêts, outre celui de faciliter la mise en œuvre de l'ACV à l'aide d'une interface graphique. D'une part, les bases de données incluses au logiciel offrent l'accès à une large gamme d'inventaires précis et complets, notamment pour les processus d'extractions et de transports. D'autre part, plusieurs méthodes de calcul d'ACV sont intégrées au logiciel et permettent le calcul des impacts et dommages. Enfin, nous avons utilisé spécifiquement le logiciel Gabi4 car il était disponible à l'IJL. Afin de situer le travail réalisé dans le contexte méthodologique de l'ACV, les différentes étapes inhérentes à cette méthode seront expliquées.

V.1. Méthodologie de l'analyse de cycle de vie

L'ACV est une méthode normalisée qui permet d'évaluer l'impact environnemental d'un produit, pouvant être un produit physique, un service ou un système remplissant une fonction. Contrairement aux outils d'analyse environnementale classique, cette méthode a la particularité de s'intéresser à l'ensemble des étapes élémentaires du cycle de vie du produit considéré. On dénombre cependant plusieurs approches possibles :

- l'analyse du « berceau à la tombe », qui consiste à prendre en compte toutes les étapes élémentaires depuis l'extraction des ressources et matières premières, jusqu'à la phase d'élimination (ou de réutilisation) du produit ;
- l'analyse du « berceau à la porte », depuis l'extraction des ressources et matières premières et jusqu'au produit fini (sortie d'usine dans le cas d'un produit). Les phases d'utilisation et d'élimination n'étant pas intégrées à l'étude.
- l'analyse « de la porte à la tombe » où seules les phases d'utilisation et d'élimination sont considérées.

La norme ISO 14 040 (à 14 044) définit quatre phases pour une étude d'analyse de cycle de vie :

- Définition des objectifs et du champ d'étude : fixe les objectifs, définit les limites du système étudié et une unité fonctionnelle à laquelle les émissions et extractions sont rapportées.
- Inventaire de cycle de vie : constitue pour chaque processus élémentaire un inventaire des entrées et sorties (émissions dans l'air, dans le sol et dans l'eau, ainsi que les extractions et l'utilisation du sol). Différentes stratégies peuvent être utilisées : mesures industrielles, mesures expérimentales, questionnaires, données issues de la littérature ou bien données issues de modèles. C'est une phase importante puisque la qualité de l'étude globale dépend de la fiabilité et de la précision des données récoltées.
- Evaluation des impacts : consiste à classifier les émissions et extractions issues de l'inventaire en catégories d'impacts auxquels elles participent (classification), puis à pondérer chaque émission/extraction au sein de chaque catégorie par des facteurs d'impacts en fonction de leurs importances relatives pour l'impact considéré (caractérisation intermédiaire) et enfin à regrouper chaque catégorie en fonction du type de dommage auquel elle est reliée, les pondérant à partir de facteurs de dommages (caractérisation des dommages).
- Interprétation : phase d'analyse des résultats des trois phases précédentes où les incertitudes et l'incidence des hypothèses prises sont évaluées, les paramètres influents peuvent également être déterminés par l'utilisation d'analyses de sensibilité.

Ces quatre phases ne doivent cependant pas forcément être abordées de manière purement séquentielle, mais plutôt de manière itérative, les résultats d'une phase pouvant interagir sur l'approche utilisée dans les autres phases.

V.2. Définition des objectifs et du champ de d'étude

Conformément aux recommandations de la norme ISO 14040, la première phase d'une étude ACV requiert dans un premier temps d'indiquer explicitement les objectifs de l'étude et les raisons qui la motivent, ainsi que le public cible. Dans un second temps, il faut spécifier le champ d'étude, c'est-à-dire, indiquer (Jolliet O. et coll. 2005) :

- les fonctions du système,
- l'unité fonctionnelle,
- le système à étudier,
- les frontières du système,
- les règles d'allocation,
- les types d'impacts, les méthodologies d'évaluation de l'impact et d'interprétation utilisés,
- les exigences portant sur les données,
- les hypothèses,
- les limitations,
- les exigences initiales de qualité de données

V.2.1. Définition des objectifs

Le but de notre étude est d'évaluer les conséquences environnementales associées à la substitution de ressources fossiles par différents produits biomasse. Il s'agit donc de réaliser dans un premier temps une analyse environnementale de la filière de production de fonte puis d'effectuer une comparaison de ce cas de référence avec plusieurs scénarios alternatifs afin de déterminer les scénarios les plus performants. L'étude est réalisée en priorité pour le compte de l'entreprise SG PAM, qui en est le principal bénéficiaire et donc le public cible, même si ces résultats intéressent la communauté scientifique en général.

V.2.2. Fonction du système et unité fonctionnelle

La fonction du système est la base à partir de laquelle le champ d'étude est défini et doit être spécifiée. L'unité fonctionnelle est dérivée de la fonction du système et est la grandeur de référence à laquelle sont rapportés tous les flux de l'inventaire. Ce doit être une grandeur mesurable et additive, qui remplit une fonction. Lors de sa définition, on lui associe des flux de référence, correspondant aux quantités de produit(s) nécessaires pour remplir la fonction. Afin que les différents scénarios puissent être comparés, il est nécessaire que l'unité fonctionnelle (et la fonction du système) soit identique pour chaque scénario.

Dans notre cas, le système remplit la fonction de production de tuyaux en fonte à partir de la filière de première fusion. L'unité fonctionnelle choisie est un « tuyau en fonte standard » (DN400, de dimension 400 mm x 6000 mm) produit à partir de la filière de « première fusion ». L'unité fonctionnelle devrait en toute rigueur intégrer également la durée de vie du produit, mais il est difficile d'estimer la durée moyenne d'utilisation des produits SG PAM (supérieure à 100 ans), c'est pourquoi nous n'avons pas intégré cet aspect. Enfin, parce que les sidérurgistes utilisent fréquemment comme référence la tonne de fonte liquide et que les scénarios alternatifs ne modifient pas les processus aval du haut fourneau, les résultats principaux de l'étude seront également rapportés à l'unité fonctionnelle « une tonne de fonte liquide produite par la filière de première fusion » dans l'annexe S.

V.2.3. Système à étudier : description des scénarios

Le cas de référence, c'est-à-dire le procédé tel qu'il fonctionne actuellement à SG PAM doit être comparé à des scénarios alternatifs utilisant de la biomasse. 6 scénarios ont donc été définis et traités par l'analyse de cycle de vie. On a souhaité comparer le cas de référence SG PAM, utilisant un mélange de coke et de charbon pulvérisé, avec un cas n'utilisant que du coke et 4 cas alternatifs avec substitution partielle du coke du haut fourneau ou de l'antracite de l'agglomération. Pour les cas où le coke est remplacé, un même taux de substitution du coke est appliqué (20 %).

- 1- **Cas de référence SG PAM** où le haut fourneau fonctionne avec 80 % de la charge nominale de coke, complété par l'injection de charbon pulvérisé,
- 2- Cas d'une marche de haut fourneau à **100 % de coke**,
- 3- Cas avec 80 % de la charge nominale en coke complétée par des blocs de **charbon de bois au gueulard**,
- 4- Cas avec 80 % de la charge nominale en coke complétée par l'injection de **fines de charbon de bois aux tuyères**,
- 5- Cas avec 80 % de la charge nominale en coke complétée par l'injection de **fines de bois torréfié aux tuyères**,

6- Cas avec 100 % de coke et une substitution totale de l'anthracite par du **charbon de bois à l'agglomération**.

Pour tous les scénarios, on considère que la qualité des produits résultant d'un procédé utilisant de la biomasse n'est pas altérée. Cela signifie que l'aggloméré est de même qualité avec ou sans utilisation de charbon de bois et que la même quantité peut être utilisée dans le haut fourneau. De même, la fonte liquide produite est considérée de même qualité lorsqu'elle est produite dans un haut fourneau avec substitution partielle de coke par de la biomasse. La substitution n'étant pas totale, la quantité de soufre dans la fonte est considérée identique, l'étape de désulfuration n'est donc pas impactée. Enfin, la production d'un tuyau nécessite la même quantité de fonte, qu'elle ait été produite avec ou sans biomasse.

V.2.4. Limites du système

La définition des limites du système permet d'établir la liste des processus élémentaires (en terminologie ACV, ici équivalent à « procédé ») qui sont pris en compte dans l'étude, tous les processus nécessaires à la réalisation de la fonction du système devant être considérés. Afin de les identifier, on peut s'appuyer sur des règles de cohérence, par exemple les trois règles suivantes énoncées par Jolliet et coll. (2005) :

- les limites du système doivent permettre aux scénarios comparés de décrire une même réalité fonctionnelle,
- il est possible de ne retenir que les processus ne contribuant qu'à une fraction suffisante de la masse et de l'énergie des entrants ou des émissions. Un critère de retenue doit être arbitrairement choisi, par exemple 5 % de la masse totale des entrants,
- les processus identiques dans les différents scénarios peuvent être exclus si les flux de référence entrant et sortant liés à ces processus sont identiques.

En suivant la première des trois règles citées précédemment, on peut obtenir une première liste des principaux entrants et processus élémentaires à inclure dans les limites du système :

- Extraction des ressources (matières premières, ressources énergétiques),
- Transport des matières premières,
- Production d'électricité
- Etape de cokerie,
- Unité d'agglomération,
- Haut fourneau,
- Fabrication des tuyaux.

Pour simplifier la suite de l'étude, la partie fabrication de tuyau a été dissociée du processus global. En effet, ce processus élémentaire est en réalité une étape globalisée rassemblant plusieurs étapes de fabrication (séjour en poches, désulfuration, ajout de magnésium, centrifugation, traitement thermique, pose du revêtement, finition) qui ne sont pas abordées en détail dans cette étude. L'inventaire de cycle de vie qui lui est associé est issu de données internes SG PAM et est considéré à part. Cet inventaire est donné en annexe Q. Ainsi, les processus et entrants considérés par la suite pour l'application de la seconde règle pour définir le système ne concerneront pas ce processus, et on ne s'intéressera qu'aux entrants des procédés « internes » à SG PAM (soit le haut fourneau, l'agglomération) et de l'unité de traitement de la biomasse.

L'application de la seconde règle permet de sélectionner, parmi les entrants du processus global, ceux qui sont à considérer et ceux qui peuvent être négligés. Dans ce but, un inventaire a été réalisé dans le Tableau 84, exprimant les masses et énergies associées à chaque entrant nécessaire à la production de fonte. Idéalement, les émissions associées à ces entrants devraient également être répertoriées afin de satisfaire entièrement la seconde règle. Cependant, ces émissions n'étant pas connues a priori en début d'étude, elles n'ont pas été prises en compte dans un premier temps. L'utilisation d'une méthode quantitative classique (quantités relatives à la somme des quantités d'entrants) pour l'identification des processus négligeables n'est cependant pas adaptée à notre problème du fait du très important besoin en eau de notre système. Pour pallier ce problème, nous avons décidé d'utiliser un critère seuil basé sur les masses et énergies relatives à l'unité fonctionnelle. Ces valeurs relatives ont été renseignées dans le Tableau 84. Afin de conserver un maximum de processus élémentaires, le seuil de coupure a été fixé à 3 %. Ce critère permet de considérer l'entrant « Olivine » comme négligeable par rapport aux autres entrants. D'après la méthode quantitative classique (par rapport à la masse totale d'entrants), la part massique de l'olivine correspondrait à moins de 0,05 % (et sa part énergétique est nulle)¹⁹.

Tableau 84 – Valeur de références et relatives des masses et énergies associées aux entrants du système d'étude

	Masse [kg t⁻¹_{fonte}]	Energie [MJ t⁻¹_{fonte}]	Masse relative [%]	Energie relative [%]
Coke	385,1	10822,1	38,5	786,8
Charbon pulvérisé	108,0	3499,2	10,8	254,4
Anthracite	40,2	1042,3	4,0	75,8
Gaz naturel	70,6	2261,0	7,1	164,4
Minerai de fer	1087,6	0,0	108,8	0,0
Chaux	102,4	0,0	10,2	0,0
Castine	164,3	0,0	16,4	0,0
Olivine	15,5	0,0	1,6	0,0
Eau	26137,3	0,0	2613,7	0,0
Electricité	0,0	1325,0	0,0	96,3
Biomasse torréfiée	99,8	2495,0	10,0	181,4
Biomasse carbonisée	61,4	1719,2	6,1	125,0
Charbon de bois (blocs)	109,6	3070,0	11,0	223,2
Ferraille	196,1	0,0	19,6	0,0
Refusions	132,0	0,0	13,2	0,0
Unité fonctionnelle (fonte)	1000,0	1375,5*	100,0	100,0

* Pour le calcul de l'énergie contenue dans la fonte, on a considéré que le carbone contenu (4,2 %) représentait une source énergétique, de PCI égale à 32,5 MJ kg⁻¹.

D'après la troisième règle, il est possible d'exclure les processus liés aux phases d'utilisation et de recyclage, qui seront les mêmes quel que soit le scénario, pour ne s'intéresser qu'au produit fini. On réalise alors dans ce cas à une étude de type « du berceau à la porte »

¹⁹ Pour s'assurer que la contribution de l'olivine peut effectivement être négligée, une estimation des émissions de GES associées à son extraction et son transport a été effectuée. Aucune donnée concernant l'extraction n'étant disponible, nous avons pris l'hypothèse que le procédé d'extraction d'olivine était comparable à celui du gypse (extraction sous-terrain dans les deux cas). L'estimation pour l'extraction et le transport de 15,5 kg d'olivine (nécessaires à la production d'une tonne de fonte liquide) est inférieur à 0,5 kg de CO₂, ce qui peut être considéré comme négligeable par rapport aux 2 t de CO₂ émises par tonne de fonte produite.

dont les limites s'étendent de l'extraction des ressources et matières premières, jusqu'à la sortie de l'usine. Limiter le système à la sortie d'usine est une pratique courante dans le cas où les produits considérés ont des durées de vie importantes. C'est généralement le cas dans la production de métaux, par exemple Norgate et coll. (2006) ont utilisé une limitation « du berceau à la porte » pour leurs études, et Iosif (2009), s'est restreint à une étude de type « porte à la porte ». La présente étude, du berceau à la porte, pourrait servir de base à une étude complète, ACV du tuyau en fonte du berceau à la tombe. Cette dernière pourrait alors être intégrée dans des ACV de systèmes plus généraux, ou bien aboutir à une Déclaration Environnementale des Produits (EDP en anglais) qui est également un outil standardisé (norme ISO 21 930) pour la présentation des performance environnementales de produits ou service et dont l'utilisation est encouragée dans les grands groupes, par exemple Saint-Gobain (Solinen et coll. 2012).

Afin que la contribution des entrants non négligés soit effectivement prise en compte de manière fiable, les limites du système sont étendues aux processus correspondants à la production (ou l'extraction) de chacun d'eux. On délimite alors le système final d'étude comme présenté Figure 55.

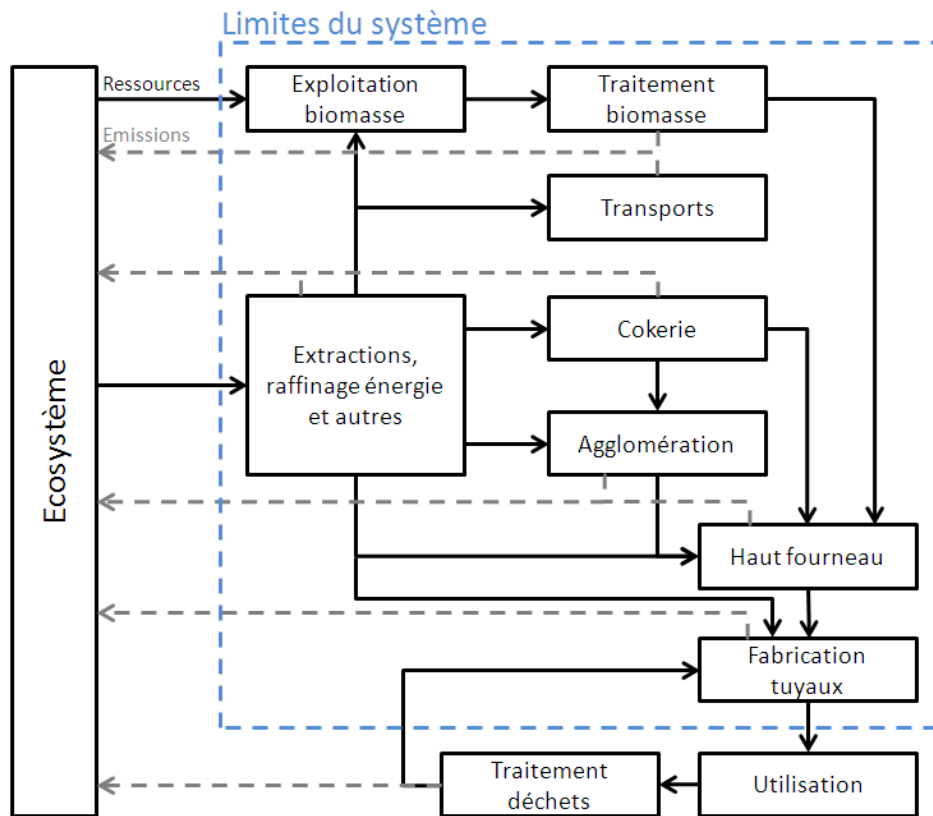


Figure 55 - Arbre des processus retenus et représentation des limites du système (représentées en pointillés bleus).

V.2.5. Règles d'allocation

La problématique de l'allocation se présente lorsque le système analysé fournit plusieurs produits ou un produit principal et des coproduits. Une ACV classique ne s'intéresse généralement qu'aux impacts d'un seul produit (ou service), il est alors nécessaire de déterminer quelle part des impacts lui revient et quelle part doit être attribuée aux coproduits. On appelle la méthode de répartition « allocation ».

La norme ISO 14 040 suggère d'éviter tant que possible l'utilisation d'allocations, et préconise deux solutions. La première consiste à décomposer certains processus élémentaires en sous-processus spécifiques à l'un ou l'autre des coproduits. La seconde solution consiste à étendre les limites du système à une application du ou des coproduits. Cette méthode est utilisable lorsque les coproduits peuvent remplacer des produits similaires et fabriqués par des processus extérieurs dont les données d'impact environnementaux sont connues. Dans ce cas, un bonus d'impact est alors attribué au produit principal du système global étendu.

Lorsque l'allocation ne peut pas être évitée, plusieurs cas sont à considérer selon la nature des coproduits :

- s'ils ont une valeur économique (peuvent être vendus),
- s'il s'agit de déchets, le producteur paie pour s'en débarrasser,
- s'ils ont une faible valeur économique (par exemple si le coût du transport vers un possible acheteur est plus élevé que le prix de vente du coproduit).

Pour Jolliet et coll. (2005), il faut en priorité baser l'allocation sur des relations de causalité physiques entre les produits. Une première possibilité, la méthode des variations marginales, s'applique lorsqu'il est possible de faire varier la proportion entre les produits. Dans ce cas, on peut déterminer les émissions à allouer aux coproduits en observant les variations des besoins énergétiques et émissions engendrées par les variations des quantités de produits et coproduits. Une seconde possibilité consiste à utiliser un coefficient d'allocation proportionnel aux rapports d'une propriété physique des produits et coproduits, par exemple la masse.

Lorsqu'aucune allocation basée sur une causalité physique n'est possible, on peut se baser sur une relation de causalité économique ou fonctionnelle. La plus simple est l'allocation financière qui, comme l'allocation massique, est calculée proportionnellement au rapport des valeurs marchandes des coproduits (prix·quantité). Enfin si les coproduits remplissent une même fonction, on peut exprimer l'allocation en fonction de la propriété relative à cette fonction (PCI, pouvoir énergétique).

Les ACV de procédés sidérurgiques sont susceptibles d'être confrontés à l'emploi d'allocation (notamment pour la cokerie et le haut fourneau). Cependant, dans cette étude, aucune allocation, méthode de décomposition de processus ou d'extension de système n'est nécessaire.

En effet, comme nous le verrons plus tard, l'inventaire de cycle de vie de la cokerie est issu de données de la littérature, dans laquelle la problématique des allocations a déjà été traitée en détail.

Pour le haut fourneau, la question de la nécessité d'utilisation d'allocation se pose puisqu'un coproduit est créé : le laitier, à hauteur d'environ $295 \text{ kg t}^{-1}_{\text{fonte}}$ ²⁰. Chiappini et coll. (2009) se sont par exemple intéressés au cas du laitier. Celui-ci peut alors être considéré comme un coproduit, s'il est revendu, ou comme un déchet. On pourrait considérer les allocations physiques préconisées par Jolliet et coll. (2005), la méthode des variations marginales donnerait 29 % pour la fonte et 71 % pour le laitier et l'allocation massique 77 % pour la fonte et 23 % pour le laitier (calculs effectués en annexe R). Cependant, dans le cadre d'un système industriel, une allocation économique a plus de sens. Ce type d'allocation permet d'établir que dans le cas de SG PAM 99,5 % de la valeur économique des produits (solides) du haut fourneau est attribuée à la fonte. La part du laitier est donc négligeable (calcul détaillé

²⁰ On peut également considérer qu'un second coproduit est créé : le gaz de haut fourneau. Dans certaines études, il peut être considéré comme tel, mais dans notre cas, le gaz de haut fourneau étant valorisé en interne sur site, aucun coproduit n'y est associé.

réalisé en annexe R). A moins d'une modification du procédé pour améliorer la qualité du laitier, on peut donc considérer que l'utilisation d'allocation n'est pas utile dans notre cas.

V.2.6. Impacts et dommages considérés

Comme nous l'avons vu précédemment, d'autres éléments sont à définir dans la première phase de l'ACV, dont les impacts considérés et les méthodes de calcul utilisées. Concernant les types d'impacts, notre étude porte sur l'utilisation de biomasse ce qui implique d'emblée deux aspects, à savoir l'évaluation des émissions de gaz à effet de serre (changement climatique) et l'utilisation de ressources énergétiques non renouvelables. Nous avons souhaité cependant élargir le champ d'étude et prendre en compte une gamme d'impacts plus large en considérant également les effets potentiels sur la santé humaine et sur les écosystèmes, et sur l'occupation des sols. En effet, associée aux inventaires d'entrants et d'émissions issus de SG PAM, l'utilisation du logiciel Gabi4 et de la base de données Ecovinent permettent de produire des inventaires détaillés des processus d'extraction, de transport et de production des entrants du système. C'est un des intérêts d'utiliser ce type de logiciel. Ces inventaires sont alors exploitables pour l'évaluation des impacts que nous souhaitons observer.

Afin de s'assurer de la bonne cohérence des résultats, deux méthodologies d'évaluation et d'interprétation de l'impact seront utilisées et leur résultats comparés : CML 2001 et Impact 2002+. Elles permettent toutes deux d'accéder aux impacts sur des catégories similaires (listées dans le Tableau 85). La première (CML 2001) est une méthode mise au point à l'Institut des Sciences Environnementales de l'Université de Leiden (Pays Bas), qui se concentre principalement sur les impacts de premier ordre, ne permettant que l'évaluation de catégories d'impacts intermédiaires. Nous l'avons choisie, du fait de son utilisation fréquente. Ses facteurs de caractérisation ont par exemple été retenus dans la norme française pour les déclarations environnementales et sanitaires des produits de construction (NF P01-010). La seconde (Impact 2002+) a été développée à l'École Polytechnique Fédérale de Lausanne. Il s'agit d'une méthode orientée dommage, qui permet l'évaluation des impacts intermédiaires mais également d'aller jusqu'à une analyse des dommages. Pour cette dernière, un travail de modélisation poussé a été mis en œuvre pour la détermination des facteurs de caractérisation des impacts sur la toxicité humaine et l'écotoxicité, tandis que les facteurs d'impacts ont été adaptés à partir d'autres méthodes (principalement Eco-Indicator 99 ainsi que IPCC, CML 2001 et Cumulative Energy Demand).

Tableau 85 – Catégories d’impacts intermédiaires et de dommages pour les méthodes utilisées (Jolliet O. et coll. 2005)

	Catégories d’impact	CML 2001	Impact 2002+
Catégories intermédiaires	Changement climatique	X	X
	Destruction d’ozone stratosphérique	X	X
	Santé humaine	X	X
	Radiations ionisantes	X	X
	Accidents	X	X
	Formation de photo-oxydants	X	X
	Acidification	X	X
	Eutrophisation	X	X
	Ecotoxicité	X	X
	Utilisation des sols	X	X
	Extraction d’énergie	X	X
	Extraction de minerai		X
	Utilisation des ressources en eau		X
	Utilisation des ressources biotiques	X	
Catégorie de dommage	Santé humaine		X
	Changement climatique		X
	Qualité des écosystèmes		X
	Ressources non renouvelables		X

Rappelons que nous avons réalisé des modèles des principaux procédés intervenant dans notre étude afin d’assurer la qualité des données utilisées : les inventaires issus des modèles proviennent de calculs déterministes et les bilans de masse et d’énergie sont respectés.

On considère enfin les impacts des phases de construction comme négligeables. C’est une hypothèse généralement prise lorsque les infrastructures ont une durée de vie supérieure ou égale à 20 ans.

V.3. Inventaires des émissions et des extractions

V.3.1. Inventaire du procédé d’agglomération

Pour l’usine d’agglomération, nous utiliserons les données calculées par le modèle décrit dans le chapitre III. Les résultats pour le cas de référence correspondent au fonctionnement moyen pour l’année 2010 chez SG PAM, année pour laquelle toutes les données d’entrée et d’émissions sont connues et pour laquelle le modèle a été validé. Ces données sont listées dans le Tableau 86 récapitulatif. Les données pour le cas alternatif utilisant du charbon de bois y sont également renseignées. La quantité de métaux lourds émis provient de données internes SG PAM et, n’étant pas connue pour le cas avec charbon de bois, elle est considérée comme égale à celle du cas standard. Pour simplifier l’implémentation dans le logiciel Gabi4, les fines de retour (fines produites en sortie de chaîne d’agglomération et réintégréées en début de chaîne) ne sont pas prises en compte dans l’inventaire.

Tableau 86 – Données d’entrée et sorties et inventaire d’émissions pour le modèle d’agglomération, dans le cas standard et dans le cas utilisant du charbon de bois pour 1 t d’aggloméré.

Entrées	Unité	Cas de référence	Cas biomasse
Anthracite	kg	31,1	0
Poussières HF	kg	12	12
Charbon de bois	kg	0	34,5
Poussier de coke	kg	17,1	17,1
Minerai de fer	kg	764	764
Ferraille	kg	100	100
Castine	kg	127	127
Gaz naturel	kg	2,1	2,1
Electricité	MJ	140	140
Sable	kg	5	5
Eau	kg	106,1	106,1
Sorties			
Aggloméré	kg	1000	1000
CO ₂	kg	211,0	215,5
CO	kg	25,6	26,1
HCl	g	1,19	1,1
COV	kg	0,24	0,81
Eau usée	kg	106,1	106,1
Poussières (émissions à l'air)	g	245,8	521,3
SO _x	g	727,8	152,3
NO _x	g	681,7	307,2
Métaux lourds (émissions à l'air)	g	3,03	3,03

V.3.2. Inventaire du procédé de traitement de la biomasse

Le Tableau 87 récapitule l’inventaire des principaux entrants et des émissions pour la production de plaquette forestière torréfiée et carbonisée. Les données sont issues du modèle Aspen précédemment présenté. Les pertes thermiques et chaleurs résiduelles du procédé peuvent représenter jusqu’à 5 MJ kg⁻¹ de plaquette forestière humide traitée, elles sont considérées ici comme fatales et ne sont pas prises en compte dans l’inventaire. On pourrait cependant optimiser le procédé ou imaginer la mise en place de récupération et de valorisation de cette chaleur. Dans ce cas, une méthode d’allocation ou d’extension du système devrait être employée afin de prendre en compte le coproduit « chaleur ». Une autre solution consisterait à valoriser cette chaleur sous forme d’électricité afin de compenser une partie de l’électricité utilisée et réduire les impacts environnementaux et besoins énergétiques du procédé. En effet, environ 2,5 MJ de chaleur (à plus de 500 °C) peuvent être récupérés et pourraient potentiellement être valorisés sous forme d’électricité. Le producteur de charbon de bois Gbmf, par exemple, a optimisé son installation pour produire une partie de son électricité sur site.

Tableau 87 –Inventaire des entrées et des émissions pour le modèle de torréfaction et de carbonisation de plaquette forestière, quantités pour 1 kg de biomasse traitée.

Entrées	Unités	Torréfaction	Carbonisation
Electricité	[MJ]	0,995	1,01
Plaquette forestière (humide)	[kg]	1	1
Air	[kg]	17,3	26
Eau	[kg]	2	2
Sorties			
Biomasse traitée	[g]	348	154
CO ₂	[g]	267,2	546,7
Poussières	[mg]	127,0	72,0
CH ₄	[mg]	7,0	7,1
COV (non méthane)	[mg]	844	836
Eau usée	[kg]	2	2

V.3.3. Inventaire du haut fourneau

Les entrants pour l'inventaire du haut fourneau sont basés sur les données d'entrée d'un haut fourneau de SG PAM (moyennes de l'ensemble du mois de septembre 2011). Ces données, listées Tableau 88, ont été choisies afin d'avoir les entrées mesurées du cas industriel correspondant à une substitution de coke proche de 20 %. Les mêmes données d'entrée ont été utilisées pour les cas alternatifs, seules les mises au mille combustibles (coke, charbon pulvérisé, charbon de bois en blocs ou fines et biomasse torréfiée) ont été ajustées, en accord avec les simulations effectuées dans le chapitre III.

Les émissions et sorties, dont les valeurs ont été calculées à partir du modèle de haut fourneau et de cowpers, sont également présentées dans le Tableau 88.

Une quantité élevée de refusions (fonte refondue) est consommée dans le haut fourneau, ce qui participe à la réduction de la consommation du coke (par rapport à une marche purement aggloméré/minerais de fer) et par conséquent à une réduction de émissions de CO₂. Une partie de ces refusions provient des déchets de la phase d'élaboration des tuyaux (environ 64 kg t⁻¹_{fonte}) et une autre (68 kg t⁻¹_{fonte}) est constituée de « gueusets », restes non utilisés d'une production antérieure. Afin de prendre en compte ce facteur, la quantité de fonte produite dans l'inventaire est ajustée d'un facteur 1,08 de manière à produire la quantité de fonte nécessaire pour la production de tuyaux ainsi que l'approvisionnement du haut fourneau en refusions.

Tableau 88 – Inventaire des entrées et des émissions du modèle de haut fourneau, pour 1 t de fonte liquide.

Entrées	Unités	Cas de ref.	Coke	Charbon de bois au gueulard	Charbon de bois aux tuyères	Biomasse torréfiée aux tuyères
Minerai de fer	[kg]	99	99	99	99	99
Aggloméré	[kg]	1294	1294	1294	1294	1294
Refusions	[kg]	132	132	132	132	132
Coke	[kg]	368,8	461	368,8	368,8	368,8
Charbon fossil	[kg]	108	0	0	0	0
Fines de biomasse torréfiée	[kg]	0	0	0	0	198,6
Charbon de bois (blocs)	[kg]	0	0	129,9	0	0
Fines de charbon de bois	[kg]	0	0	0	122,4	0
Castine	[kg]	85	85	85	85	85
Gaz naturel	[MJ]	220,2	208,3	209,0	196,4	211,6
Electricité	[MJ]	90,7	90,7	90,7	90,7	90,7
Eau	[kg]	19500	19500	19500	19500	19500
Sorties						
Gaz haut fourneau	[Nm ³]	1027,6	1011,0	1188,9	1078,6	1173,4
Fonte liquide	[kg]	1000	1000	1000	1000	1000
Poussières (émissions à l'air)	[kg]	2,7	2,7	3,1	2,7	2,7
Laitier	[kg]	295	294	292,5	292,5	292,5
CO ₂	[kg]	509,7	525,5	476,2	510,7	498,9
CO	[g]	11,0	18,5	6,7	9,2	9,2
HCl	[g]	37,6	38,7	34,8	34,7	34,7
NO _x (hors N ₂ O)	[g]	183,5	90,2	656,7	187,9	212,3
N ₂ O	[µg]	14,1	8,5	22,5	16,3	15,8
Eau usée	[kg]	19500	19500	19500	19500	19500
Goudrons	[kg]	0	0	8,5	0	0
Métaux lourds (émissions à l'air)	[g]	252,5	252,5	252,5	252,5	252,5

V.3.4. Inventaires associés à la production des autres entrants

V.3.4.1. Elaboration des matières premières

Les autres entrants compris dans les limites du système ne sont pas produits au sein de SG PAM. Nous nous sommes donc appuyés sur des inventaires issus de bases de données existantes. Pour nous assurer de la cohérence des résultats, nous avons privilégié l'utilisation d'inventaires issus d'une même base de données : la base de données Ecoinvent 2.0 implémentée dans Gabi4.

Afin de couvrir l'intégralité de l'étendue du système, nous avons sélectionné des inventaires de processus de production élémentaires dits « agrégés », qui prennent en compte toutes les étapes de production des produits considérés, depuis l'extraction des matières premières jusqu'au produit.

V.3.4.2. Broyage des combustibles pulvérisés

Les combustibles injectés aux tuyères (charbon fossil, biomasse carbonisée et biomasse torréfiée) doivent être broyés à une granulométrie resserrée et proche de 0,1 mm pour assurer une injection uniformément répartie sur toutes les tuyères et un taux de combustion élevé dans le fourneau. L'étape de broyage a été simplement traduite en un besoin d'énergie électrique dont la valeur dépend de la nature du combustible à broyer. Les besoins électriques déterminés sont donnés dans le Tableau 89, ils ont été calculés à partir de l'index Hardgrove (HGI) et de la formule 96 (Tichanek F. 2008). Les index Hardgrove utilisés pour le calcul pour la plaquette carbonisée et torréfiée proviennent de mesures effectuées par l'entreprise Broyeur Soudron (Hognoul, Belgique) sur les échantillons préparés par Etia. Il faut rappeler ici que

l'augmentation de la température de torréfaction conduit à une quantité d'énergie de broyage plus faible (cf. Figure 21, chapitre III). Repelin et coll. (2010a) ont montré par exemple que le besoin énergétique approchait 400 à 500 MJ t⁻¹ pour un bois torréfié à 260 °C, ce qui représente un facteur 13 par rapport à nos valeurs. En l'absence d'autres études concernant le broyage de bois torréfié/carbonisé, nous utiliserons les valeurs que nous avons calculées.

Tableau 89 – Consommations électriques nécessaires au broyage des combustibles injectés aux tuyères du haut fourneau

	Unités	PCI	Charbon de bois	Bois torréfié
HGI	[-]	60	100	80
Besoin électrique	[MJ t ⁻¹]	37,7	23,0	29,0

$$E_{el} = \frac{435}{HGI^{0,91}} \text{ [kWh t}^{-1}\text{]} \quad 96$$

V.3.4.3. Transport

Les produits sont acheminés depuis leur lieu de production jusqu'à l'usine par différents moyens de transport, par route, par voie ferrée ou par voie maritime. Le Tableau 90 liste les transports associés à chaque flux élémentaire et indique la distance correspondante retenue. Dans le cas de transport routier, la charge des camions est fixée à 45 %, ce qui signifie que les camions ne transportent que 90 % de leur charge maximale, avec prise en compte d'un retour à vide.

Tableau 90 – Types et distances pour le transport des entrants (distances exprimées en km)

	Route	Maritime	Rail
Minerai de fer	500	9500	500
Coke	29	3875	470
Aggloméré	10	0	0
Castine	65	0	0
Ferraille	65	0	0
Biomasse traitée	5	0	0

Dans le cas de l'utilisation de blocs de charbon de bois, on peut également envisager qu'il provienne d'une source non locale, par exemple le Sud de la France, ou bien l'Asie du Sud Est. Deux scénarios annexes ont alors été calculés pour ces deux provenances supplémentaires. Les distances associées à chaque type de transport sont données dans le Tableau 91.

Tableau 91 – Types et distances pour le transport des entrants (distances exprimées en km)

	Route	Maritime	Rail
Local	5	0	0
France	800	0	0
Asie	250	16300	500

V.3.4.4. Electricité

Les différents processus élémentaires considérés, haut fourneau, traitement de biomasse, agglomération et le transport par voie ferrée, nécessitent une consommation électrique. Le processus élémentaire production et fourniture d'électricité est issu de la base de données Ecoinvent, il correspond au réseau électrique français.

V.3.4.5. Gaz naturel

De la même manière que pour l'électricité, le processus élémentaire choisi pour l'approvisionnement en gaz naturel est issu de la base de données Ecoinvent, il correspond au processus de production moyen en Europe, et comprend toutes les étapes de la production de gaz naturel jusqu'à l'approvisionnement au niveau local.

V.3.4.6. Gestion du gaz de gueulard non consommé aux cowpers

Une fraction importante du gaz de gueulard n'est pas consommée aux cowpers (autour de 65 %). Le gaz de gueulard restant, dont le PCI est relativement faible (2,7 à 2,9 MJ Nm⁻³ selon les cas, voir tableau 4 annexe P), est brûlé d'une part en complément de gaz naturel dans le reste de l'usine en aval du haut fourneau (pour le chauffage de fours de traitement thermique par exemple) et d'autre part aux torchères sans valorisation. Du fait de cet excédent de gaz de gueulard brûlé aux torchères, nous avons considéré que la quantité de gaz naturel utilisé dans le reste de l'installation (poste « fabrication des tuyaux ») était identique pour tous les scénarios.

V.3.4.7. Complément sur l'implémentation des inventaires dans GaBi4

Le système global a été implémenté sous Gabi4 de manière à pouvoir afficher les impacts liés à des processus ou postes unitaires spécifiques. Dans ce but, 9 catégories ont été créées, correspondant à des processus élémentaires ou regroupement de processus élémentaires similaires :

- l'agglomération,
- la cokerie,
- le haut fourneau,
- les torchères,
- l'étape de fabrication des tuyaux,
- le transport,
- les processus liés à l'extraction de matières premières,
- l'étape de plantation/récolte de biomasse,
- l'étape de traitement de la biomasse.

L'inventaire associé à l'étape de cokerie étant un inventaire issu d'Ecoinvent, la part d'impacts liée aux processus en amont de la cokerie est incluse dans la catégorie correspondant à la cokerie, excepté les processus d'extraction de charbon fossile et le transport.

La catégorie des torchères correspond à la combustion du gaz de gueulard qui n'est pas brûlé aux cowpers. Elle regroupe l'intégralité des émissions liées à la combustion de ce gaz, bien qu'une partie soit en réalité utilisée dans le processus de fabrication des tuyaux. Ce découpage permet de visualiser plus directement la part d'émissions associée aux combustibles utilisés dans le haut fourneau.

V.4. Evaluation des impacts et interprétation des résultats

La littérature concernant l'analyse environnementale de la production d'acier ou de fonte est relativement restreinte lorsqu'il s'agit de visualiser les impacts autres que le changement climatique et le besoin énergétique. On peut tout de même citer Van Caneghem et coll. (2010) qui ont observé l'évolution des impacts d'une usine intégrée de production d'acier sur six

catégories d'impacts : potentiel d'acidification, de formation de photo-oxydants, d'eutrophisation, l'impact sur la toxicité humaine, l'écotoxicité sur l'eau douce et l'utilisation d'eau. Lorsque cela sera possible, les valeurs calculées pour le cas standard (cas 2, 100 % coke) seront comparées aux valeurs de l'article précité. Nous utiliserons pour ces comparaisons uniquement la méthode CML 2001 dont les facteurs de caractérisation sont les plus proches de ceux utilisés par Van Caneghem et coll. (2010), et nous adopterons des frontières similaires, à savoir une approche porte-à-porte, et une unité fonctionnelle comparable : une tonne de fonte liquide, n'incluant donc pas la phase de production de tuyaux.

V.4.1. Emissions de GES

Nous nous intéressons dans un premier temps à l'impact du système sur le changement climatique.

V.4.1.1. Comparaison des méthodes

La Figure 56 et la Figure 57 présentent les émissions de gaz à effet de serre, calculées respectivement avec les méthodes CML 2001 et Impact 2002+ et exprimées en $\text{kg}_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ pour la production d'un tuyau. Les 9 postes présentés dans le paragraphe précédent sont représentés pour chacun des 6 scénarios considérés. Sur les figures, les émissions de GES biogéniques sont représentées en zones hachurées. Les résultats présentés par ces deux méthodes sont très similaires, seules les émissions associées à l'unité d'agglomération et aux processus d'extractions présentent des différences notables. Ces différences s'expliquent d'une part par l'intervalle de temps utilisé pour les deux méthodes : la méthode CML considère le potentiel de réchauffement climatique sur 100 ans, tandis que la méthode Impact 2002+ sur 500 ans. En conséquence, les facteurs de caractérisation sont différents, en particulier pour le méthane (23 et 7 $\text{kg}_{\text{CO}_2,\text{eq}} \text{kg}^{-1}_{\text{CH}_4}$ sur, respectivement, 100 et 500 ans). Une importante quantité de méthane étant émise lors du processus d'extraction de charbon fossile (environ 7 $\text{g}_{\text{CH}_4} \text{kg}_{\text{charbon}}$), permet d'expliquer la différence notable observée pour ce poste. D'autre part la méthode CML ne considère pas le monoxyde de carbone comme un gaz à effet de serre, contrairement à la méthode Impact. Le monoxyde de carbone ne contribue effectivement pas directement au réchauffement climatique, cependant, il peut se réoxyder en CO_2 (et il doit alors être comptabilisé avec le CO_2). Il peut aussi participer au contrôle de la teneur troposphérique en OH, ce qui joue un rôle sur la concentration en méthane (Daniel J.S. et coll. 1998), et à celle en ozone (Daniel J.S. et coll. 1998). Ce rôle indirect joué par CO est pris en compte dans la méthode Impact 2002+, avec un facteur égal à 2 $\text{kg}_{\text{CO}_2,\text{eq}} \text{kg}^{-1}_{\text{CO}}$. De ce fait et puisqu'environ 25 kg de CO sont émis par tonne d'aggloméré, on observe environ 20 $\text{kg}_{\text{CO}_2,\text{eq.}} \text{tuyau}^{-1}$ de plus avec la méthode Impact 2002+ qu'avec la méthode CML.

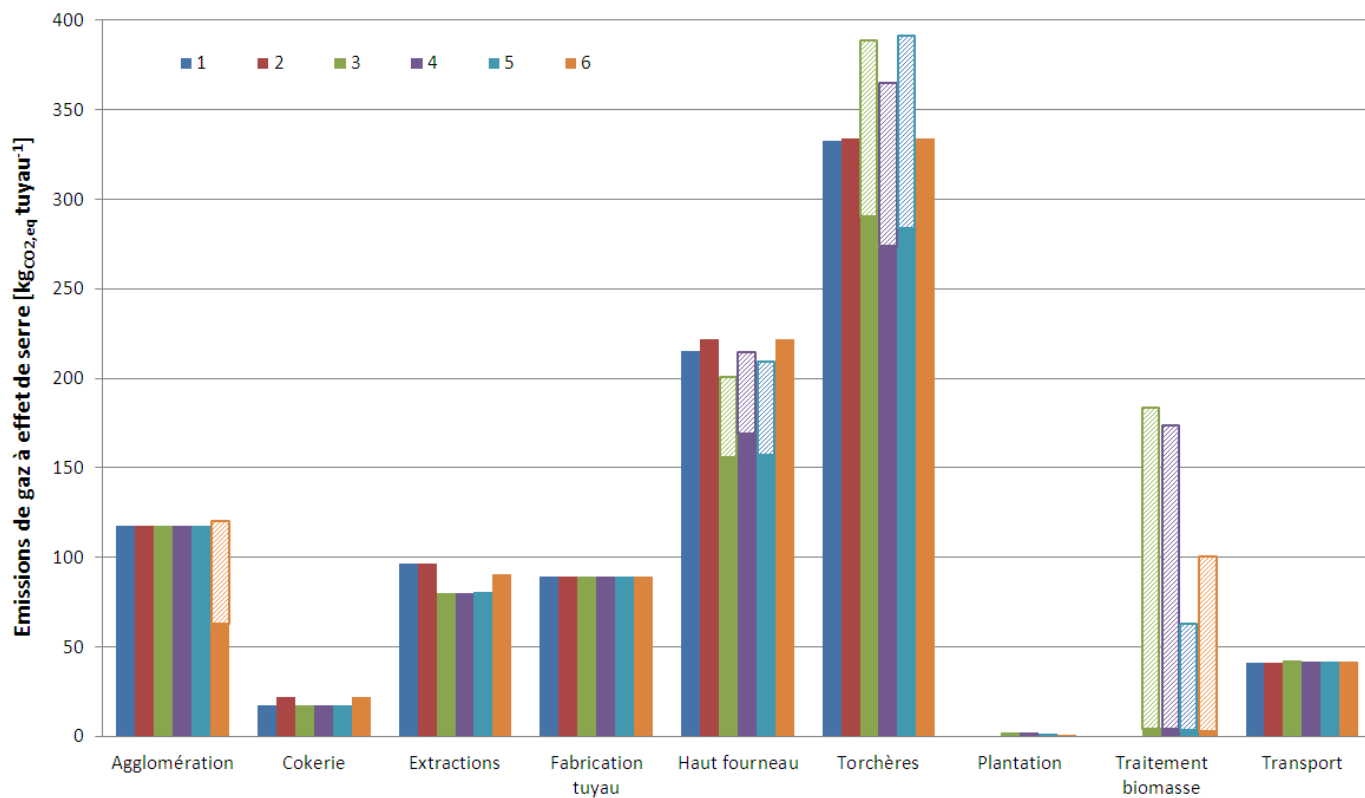


Figure 56 – Répartition des émissions de gaz à effet de serre sur l'ensemble du système, par poste et pour les 6 scénarios. Méthode de calcul utilisée : CML 2001.

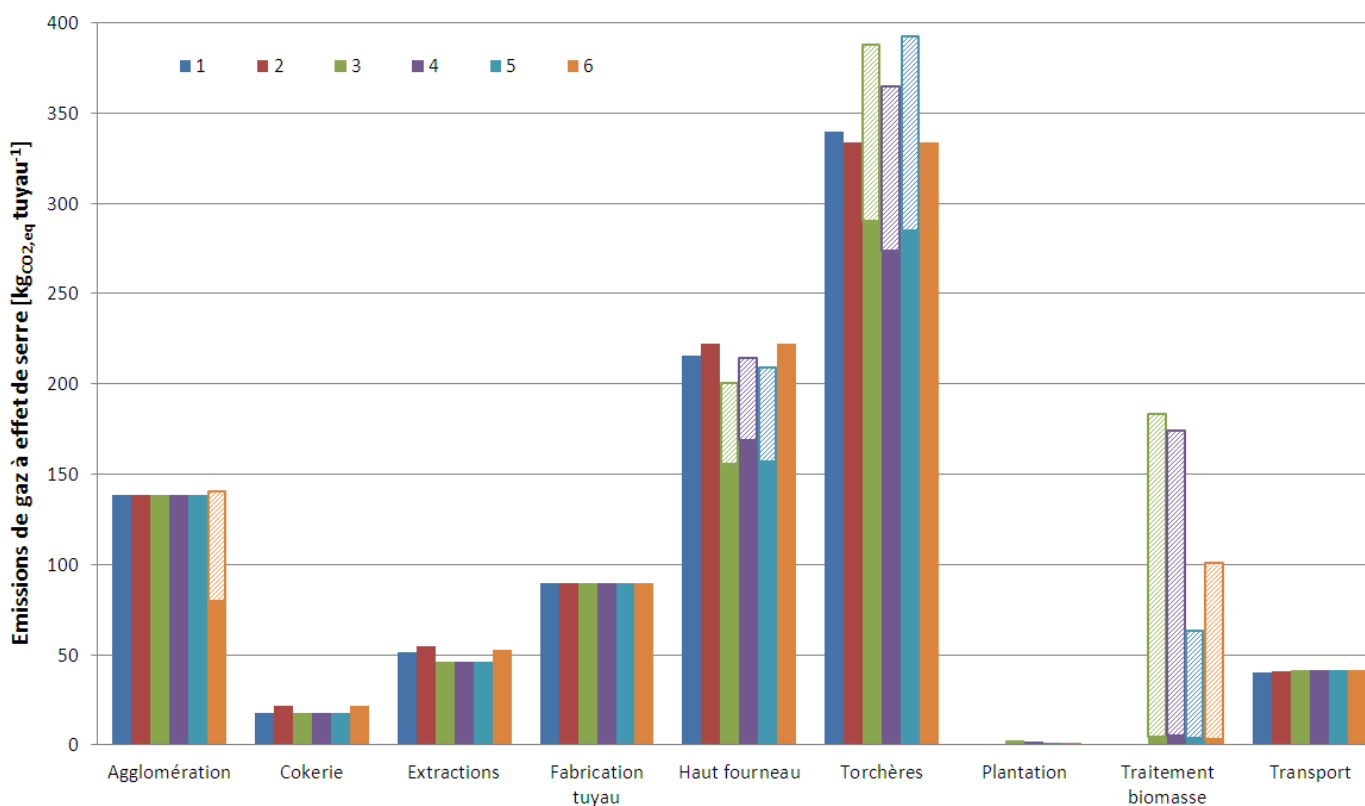


Figure 57 – Répartition des émissions de gaz à effet de serre sur l'ensemble du système, par poste et pour les 6 scénarios. Méthode de calcul utilisée : Impact 2002+.

Ces premiers graphiques permettent d'évaluer les émissions de GES de la filière : d'après la méthode Impact, on compte entre 766 et 902 kg_{CO₂,eq} émis pour la production d'un tuyau dans le meilleur cas (cas 5) et dans le cas standard avec 100 % coke (cas 2). Pour comparaison avec des données de la littérature, Suopajarvi et coll. (2012) donnent pour une approche porte-à-porte d'une aciérie classique intégrée une gamme de valeurs d'émissions de 1650 à 1875 kg_{CO₂} pour la production d'une tonne fonte liquide. Une approche similaire (porte-à-porte) pour le cas de SG PAM montre que les émissions s'élèvent à environ 1787 kg_{CO₂,eq} t⁻¹_{fonte}, ce qui correspond aux ordres de grandeurs cités.

V.4.1.2. Points chauds

Intéressons-nous d'abord à l'analyse des points chauds (postes les plus émetteurs) pour le cas de référence (cas 1). Un regroupement des catégories « Haut fourneau » et « Torchères » fournit l'ensemble des émissions liées à l'utilisation du coke et des combustibles annexes du haut fourneau. Ce regroupement est le principal poste émetteur de gaz à effet de serre avec 548 kg tuyau⁻¹. Un haut fourneau considéré seul émet, d'après Suopajarvi et coll. (2012), entre 320 et 675 kg_{CO₂} t⁻¹_{fonte}, ce qui correspond également au cas SG PAM (avec 553 à 570 kg_{CO₂,eq} t⁻¹_{fonte}, émis par le haut fourneau fonctionnant à partir de combustibles fossiles). Le second poste émetteur est l'unité d'agglomération avec 138 kg tuyau⁻¹, l'étape de fabrication de tuyau (90 kg tuyau⁻¹), puis les extractions de matières premières et ressources fossiles (50 kg tuyau⁻¹), le transport (41 kg tuyau⁻¹) et enfin l'unité de cokerie (21 kg tuyau⁻¹).

Lorsque le coke est substitué par un combustible biomasse, ces résultats restent valables, mais le processus de traitement de la biomasse s'ajoute, représentant une part importante des émissions de GES. Entre 61 et 180 kg tuyau⁻¹ sont émis lors de la production de biomasse torréfiée ou de charbon de bois, ce qui situe ce poste en second émetteur du système complet. La majeure partie de ces émissions de GES (92 à 97 %) est cependant d'origine biogénique. De même, dans le haut fourneau, une partie des GES émis est d'origine biogénique pour les cas 3, 4 et 5. Les fractions de GES biogéniques et fossiles ont été calculées²¹ et listées dans le Tableau 92. Enfin, les émissions liées à l'exploitation de la biomasse (« plantation ») peuvent être considérées comme négligeables.

Tableau 92 – Calcul des répartitions massiques du carbone et des GES biogénique et fossile

	Unités	Cas 3	Cas 4	Cas 5
Carbone fossile (introduit)	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	314,86	314,86	314,86
Carbone biogénique (introduit)	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	94,56	89,10	105,85
Carbone fossile dissous (fonte)	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	32,3	32,3	32,3
Carbone biogénique dissout (fonte)	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	9,70	9,26	10,57
Fraction CO ₂ biogénique (gaz gueulard)	[-]	0,23	0,22	0,25
CO ₂ issu de la combustion de gaz naturel aux cowpers	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	11,67	10,92	11,78

V.4.1.3. Comparaison des scénarios

Les émissions globales de GES pour chaque scénario et les potentiels de réduction associés sont représentées et comparés sur la Figure 58. Pour l'évaluation des réductions des GES, les

²¹ De l'intégralité du carbone injecté ou chargé dans le haut fourneau, une partie est intégrée à la fonte liquide (42 kg t⁻¹_{fonte}). Pour évaluer les fractions de carbone biogénique et fossile émises sous forme de CO₂ et celles de carbone dissoutes dans la fonte, on utilise le rapport des quantités de carbone biogénique et fossile injectées dans le fourneau.

scénarios 1, 3, 4, 5 et 6 ont été comparés au cas utilisant 100 % coke dans le haut fourneau et l'anhracite à l'agglomération. Les chiffres utilisés proviennent des résultats de calculs de la méthode Impact 2002+.

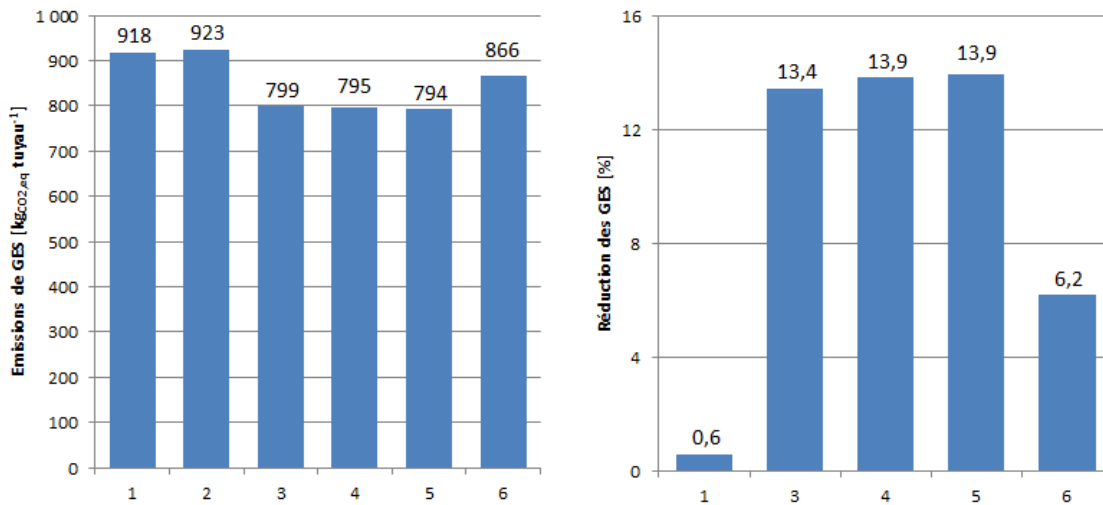


Figure 58 – Total des émissions de GES (hors CO₂ biogénique) pour les 6 scénarios (gauche) et la réduction des émissions correspondante pour les 5 cas de substitution de coke (par rapport au cas 100 % coke)

On remarque dans un premier temps que l'utilisation de charbon pulvérisé (cas 1) permet une légère réduction des émissions de GES (0,6 %), majoritairement due à la réduction des émissions de la phase de cokerie et de l'extraction.

Concernant les scénarios biomasse, les trois cas d'utilisation de biomasse dans le haut fourneau ont des performances comparables. La substitution la plus performante semble être l'utilisation de biomasse torréfiée injectée aux tuyères, avec 13,9 % de réduction, puis l'utilisation de fines de biomasse carbonisée aux tuyères (13,8 %) et enfin le chargement de blocs de charbon de bois au gueulard (13,4 %). Les différences observables entre ces scénarios sont principalement dues aux émissions fossiles de la phase de traitement. En effet, du fait du faible rendement de carbonisation, les cas faisant intervenir de la biomasse carbonisée nécessitent le traitement d'une plus grande quantité de biomasse. Une étude publiée en 2012 (Suopajarvi H. et coll. 2012), s'est également intéressée à l'injection de charbon de bois pulvérisé aux tuyères d'un haut fourneau et a montré qu'une substitution d'environ 20 % de la charge en carbone fossile permettait d'obtenir une réduction de 15,4 % des émissions de CO₂ sur la filière de production de laminé à chaud avec une approche porte-à-porte. Une approche identique pour notre système d'étude montre qu'on obtiendrait une réduction de 15,8 % des émissions de GES dans le cas 4 (charbon de bois injecté aux tuyères).

La substitution de l'anhracite à l'agglomération par du charbon de bois présente un potentiel de réduction plus faible puisqu'une quantité moindre de ressource fossile est remplacée (40 kg d'anhracite t⁻¹_{fonte} à l'agglomération contre 109 kg de coke au haut fourneau). Afin de comparer tous les scénarios sur une même base, on peut les comparer sur la base de la réduction des émissions de GES par quantité de produit remplacé. Le Tableau 93 donne les valeurs calculées de réduction des émissions pour les procédés où se déroulent la substitution (haut fourneau et agglomération) et pour le système global.

Tableau 93 – Evaluation de la réduction de GES intrinsèque pour chaque scénario. (Valeurs exprimées en $\text{kg}_{\text{CO}_2,\text{eq.}} \text{ kg}^{-1}$ combustible remplacé)

	Blocs de charbon de bois	Fines de charbon de bois	Biomasse torréfiée	Charbon de bois à l'agglomération
Réduction sur procédé	2,82	2,82	2,82	3,16
Réduction globale	3,22	3,30	3,39	3,28

Cette comparaison permet de confirmer que, bien que l'utilisation de charbon de bois à l'agglomération soit meilleure dans le cas des procédés considérés seuls, la réduction des émissions de GES est en fait comparable du point de vue des impacts considérés sur la totalité du système. Enfin, la différence entre les deux points de vue concernant la substitution dans le haut fourneau s'explique par le fait que la substitution du coke permet la réduction des émissions sur plusieurs postes : l'extraction de charbon, le transport et la production de coke. Les étapes d'extraction et de cokerie étant fortement émettrices, l'étendue de la réduction est élargie pour le système global.

La provenance de la biomasse, et donc le transport associé, n'a pas une influence notable sur les performances relatives aux émissions de GES. En effet, comme nous pouvons le remarquer dans le Tableau 94, l'utilisation de charbon de bois d'Asie (3^e colonne) engendrerait une augmentation d'environ 0,5 % des émissions de GES du système. On remarque également que du point de vue des GES, sous réserve d'une exploitation (technique de plantation/récolte) similaire, l'importation de charbon de bois d'Asie ou d'Amérique du Sud par bateau pourrait être bénéfique, par rapport à l'utilisation d'un charbon de bois produit dans le sud de la France et transporté par la route.

Tableau 94 – Influence de la provenance du charbon de bois sur les émissions de GES pour le cas 3

	Lorraine	France	Asie
Emissions GES [$\text{kg}_{\text{CO}_2,\text{eq.}} \text{ tuyau}^{-1}$]	799,4	803,2	802,9

V.4.2. Utilisation d'énergies non renouvelables

La Figure 59 représente les variations des besoins en termes d'énergie non renouvelables (exprimés en MJ) pour les 6 scénarios considérés et pour chacune des deux méthodes. Les cas standard (sans biomasse) demandent entre 10 590 et 12 720 MJ tuyau⁻¹, soit entre 27 000 et 32 500 MJ t⁻¹_{fonte}. A titre de comparaison, le besoin énergétique moyen d'une aciérie intégrée européenne est d'environ 25 000 MJ t⁻¹_{fonte} (Babich A. et coll. 2010), ce qui est cohérent avec nos résultats. Le poste correspondant aux extractions des ressources a le plus gros impact sur cette catégorie d'impact, puisqu'il représente environ 80 % des besoins énergétiques. Ensuite vient le processus de fabrication des tuyaux (11 %), gourmand en gaz naturel (2 000 à 2 300 MJ). Enfin les transports représentent le troisième utilisateur de ressources énergétiques non renouvelables (6,5 %). D'après la méthode Impact 2002+, les procédés de traitement de la biomasse jouent également un rôle (environ 2,5 à 5,5 %), dû à l'utilisation d'électricité.

Tableau 95 – Contribution des différentes ressources énergétique non renouvelables dans le cas 2 (valeurs en [%])

	Pétrole brut	Charbon	Lignite	Gaz naturel	Uranium
CML 2001	7,2	83,4	1,0	8,4	0,0
Impact 2002+	9,2	70,7	1,0	12,3	6,8

Les deux méthodes montrent que l'utilisation de biomasse permet effectivement de réduire les besoins d'énergie non renouvelable, mais suivant le cas et la méthode utilisée, le potentiel de réduction des besoins énergétiques varie entre 4,8 et 15,5 %. En effet, plusieurs postes, dont l'extraction des ressources, le transport, et de manière plus notable le traitement de la biomasse impliquent une demande en énergie électrique conséquente. Son origine nucléaire implique l'utilisation d'uranium, dont l'impact sur les ressources énergétiques non renouvelables est pris en compte par la méthode Impact, contrairement à la méthode CML 2001 qui ne l'inclut pas (voir Tableau 95). Cela se traduit par un potentiel de réduction des besoins énergétiques moins élevé (4,8 à 7,9 %) que ce qu'on pourrait attendre avec une substitution de 20 % de coke.

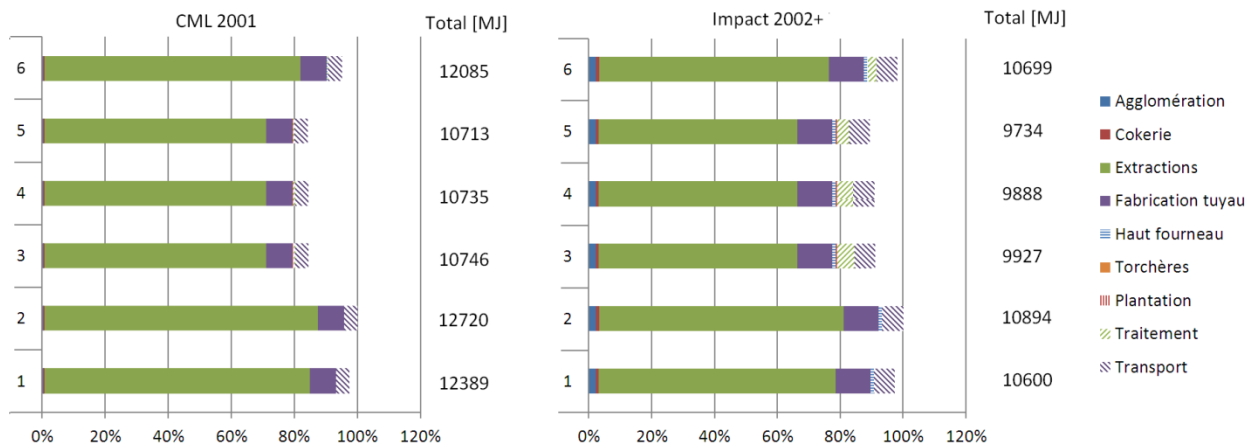


Figure 59 – Répartition des besoins en énergies non-renouvelables par poste pour chaque scénario, calculée à partir des méthodes CML 2001 (gauche) et Impact 2002+ (droite)

Afin de visualiser l'impact de la valorisation de la chaleur produite sur le site de traitement de la biomasse, un calcul supplémentaire a été réalisé. D'après les calculs et estimations du chapitre précédent, il serait possible de valoriser une partie de la chaleur résiduelle en électricité pour produire 0,12 (torréfaction) à 0,4 (carbonisation) MJ_{el} t⁻¹ biomasse brute. Le Tableau 96 présente les réductions de GES et de besoin en énergie non-renouvelable dans le cas d'une telle valorisation. Dans ce cas, les émissions de GES des solutions biomasses diminuent de 0,2 à 0,4 % et le besoin en énergies non-renouvelables de 2,1 à 4,1 %. On remarque également que la réduction du besoin énergétique pour l'utilisation de biomasse torréfiée est plus faible que pour le cas avec charbon de bois. En effet, moins de chaleur est valorisée dans ce cas, et la réduction du besoin électrique est alors plus faible.

Tableau 96 – Réduction des GES et du besoin en énergies non renouvelables pour les 4 alternatives biomasses et en comparaison avec le cas 100 % coke, en considérant qu'une partie de la chaleur produite est valorisée en électricité utilisée sur le site.

		Cas 3	Cas 4	Cas 5	Cas 6
GES	[%]	14,7	15,0	15,3	6,2
Energie	[%]	8,5	8,9	8,5	1,6

V.4.3. Potentiel d'impact sur la formation de photo-oxydants

La formation de photo-oxydants est liée à la production de composés tels que l'ozone à partir de l'action des rayons ultra-violet sur des composés comme les COV ou les NO_x. Les émissions liées à cet impact sont exprimées en kg_{C2H4,eq}, les répartitions par poste sont présentées sur la Figure 60. D'après la méthode CML, les principaux postes émetteurs de substances liées à cet impact sont l'agglomération (67 %), le procédé de fabrication des tuyaux (11 %), les extractions (9 %) puis le transport (6 %). Ces mêmes postes sont mis en avant par la méthode Impact avec une répartition différente. Van Caneghem et coll. (2010) ont situé cet

impact entre 1,2 et 1,45 $\text{kg}_{\text{C}_2\text{H}_4,\text{eq}} \text{t}^{-1}_{\text{acier}}$ pour le cas d'une usine intégrée en approche porte-à-porte, et nous avons calculé 1,23 $\text{kg}_{\text{C}_2\text{H}_4,\text{eq}} \text{t}^{-1}_{\text{fonte}}$ pour le cas de SG PAM restreint à la production de fonte.

Ces résultats indiquent que l'utilisation de biomasse dans le haut fourneau permet de réduire faiblement cet impact (1 à 3 % seulement). Le principal poste d'émissions de composés à fort impact sur la formation de photo-oxydant étant l'agglomération, l'utilisation de charbon de bois à l'agglomération (cas 6) a au contraire un effet négatif, puisque les émissions de COV y sont accrues. L'étendue de l'impact et de l'augmentation dans le cas 6 n'est cependant pas identique d'une méthode à l'autre. En effet le cas standard émet 1,69 et 0,49 $\text{kg}_{\text{C}_2\text{H}_4,\text{eq}}$ selon respectivement la méthode CML et Impact. De plus, le cas 6 se traduirait par une augmentation de cet impact de 10 % pour la méthode CML et de 51 % pour la méthode Impact. Ces divergences proviennent du fait que contrairement à la méthode CML la méthode Impact ne considère pas la contribution du monoxyde de carbone à cet impact, gaz principalement émis à l'agglomération.

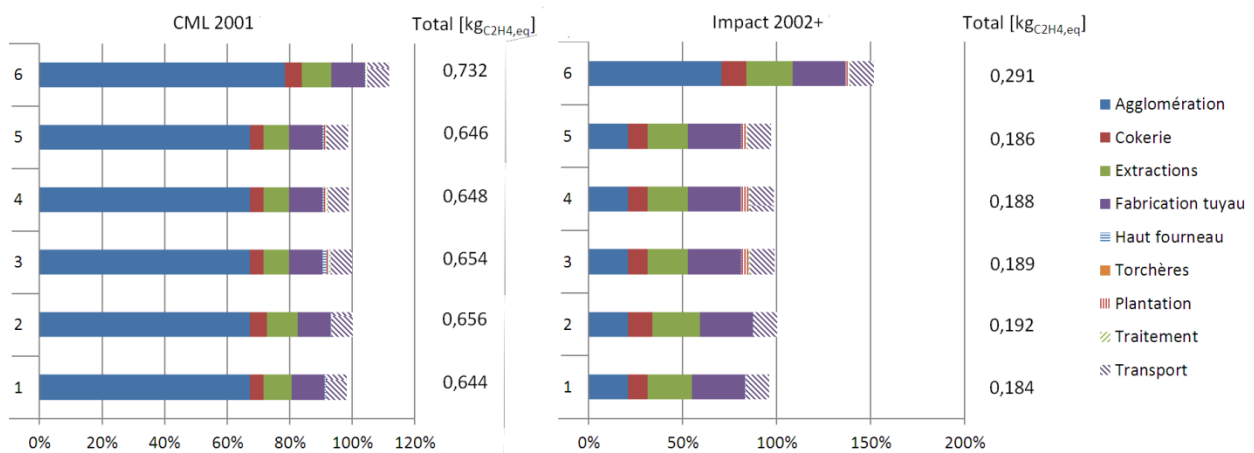


Figure 60 – Répartition du potentiel de formation d'ozone par oxydation photochimique par poste et pour chaque scénario, calculée à partir des méthodes CML (gauche) et Impact 2002+ (droite)

V.4.4. Potentiel d'appauvrissement de la couche d'ozone

L'appauvrissement de la couche d'ozone est l'impact lié à l'amincissement de la couche d'ozone stratosphérique. Il est principalement dû aux émissions de substances contenant du chlore et est exprimé en $\text{kg}_{\text{CFC}_{11,\text{eq}}}$. Les deux méthodes utilisées sont en accord sur les performances des différents scénarios concernant cet impact (Figure 61). Pour chaque méthode, le processus de fabrication de tuyau est le principal émetteur (plus de 50 %), du fait des émissions élevées de halons (halon 1201 et 1301). Le transport et l'extraction des ressources sont les seconds postes d'émissions de substances liées à cet impact, représentant chacun environ 20 % de l'impact total, également du fait d'importantes émissions de halon 1301.

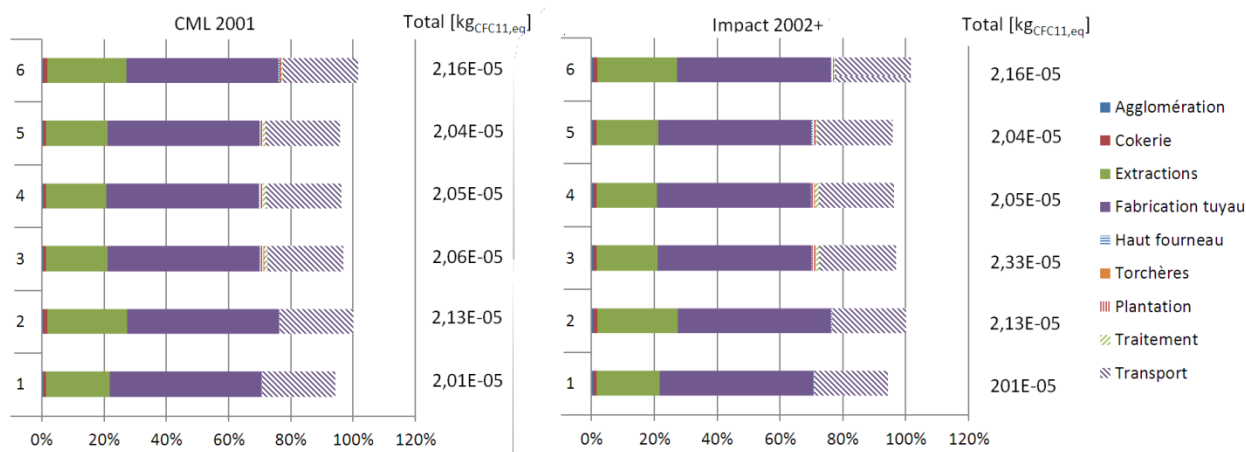


Figure 61 – Répartition du potentiel d'appauvrissement de la couche d'ozone par poste et pour chaque scénario, calculé à partir des méthodes CML 2001 (gauche) et Impact 2002+ (droite)

V.4.5. Potentiel d'acidification

Le potentiel d'acidification est lié aux émissions de gaz acides (principalement SO₂, NO, N₂O et NO_x) et est exprimé en kg_{SO₂,eq}. Les deux méthodes abordent cet impact de manière différente : la méthode CML 2001 établit un potentiel d'impact général « potentiel d'acidification » (Figure 62), tandis que la méthode Impact 2002+ le décompose en deux parties, acidification aquatique et acidification terrestre (Figure 63). L'acidification terrestre considérée par la méthode Impact est cependant couplée avec le potentiel de nutrification, les facteurs de caractérisation s'en trouvent donc modifiés. On peut tout de même constater des tendances similaires entre les différents scénarios et pour les deux méthodes. En effet, le poste d'agglomération est le principal contributeur de cet impact (30 %), puis le poste de fabrication de tuyaux (25 %), le poste d'extraction (20 %) et enfin le transport (17 %). Pour chacun de ces postes, les émissions de NO_x contribuent à la majeure partie de l'impact (85 % contre 10 % pour les émissions de SO₂, moins conséquentes).

Pour une approche restreinte (porte-à-porte et la fabrication de tuyaux n'étant pas prise en compte), l'évaluation de cet impact (2,41 kg_{SO₂,eq} t⁻¹_{fonte}) semble cohérent avec les données de la littérature (entre 1,9 et 3,45 kg_{SO₂,eq} t⁻¹_{acier} selon Van Caneghem et coll. (2010)).

L'utilisation de biomasse peut permettre de réduire cet impact, de manière limitée si la biomasse est utilisée dans le haut fourneau (5 %), et de manière plus conséquente lors de l'utilisation de charbon de bois à l'agglomération (22 % de réduction). Cela s'explique par la réduction des émissions de NO_x.

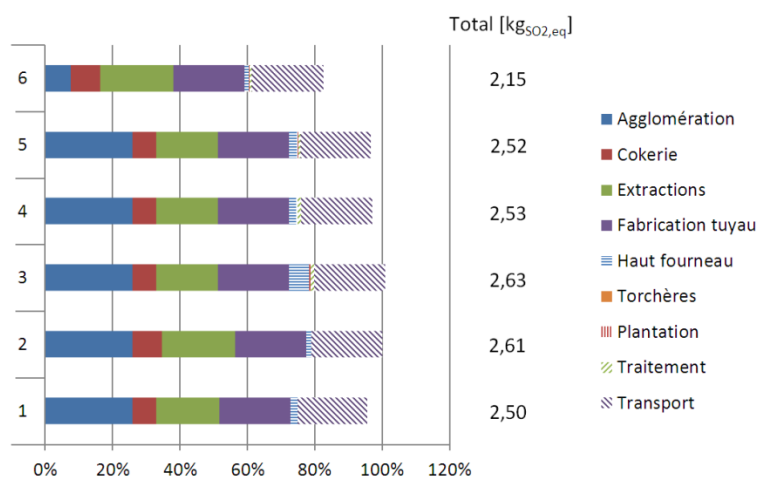


Figure 62 – Répartition du potentiel d'acidification par poste et pour chaque scénario (méthode CML 2001)

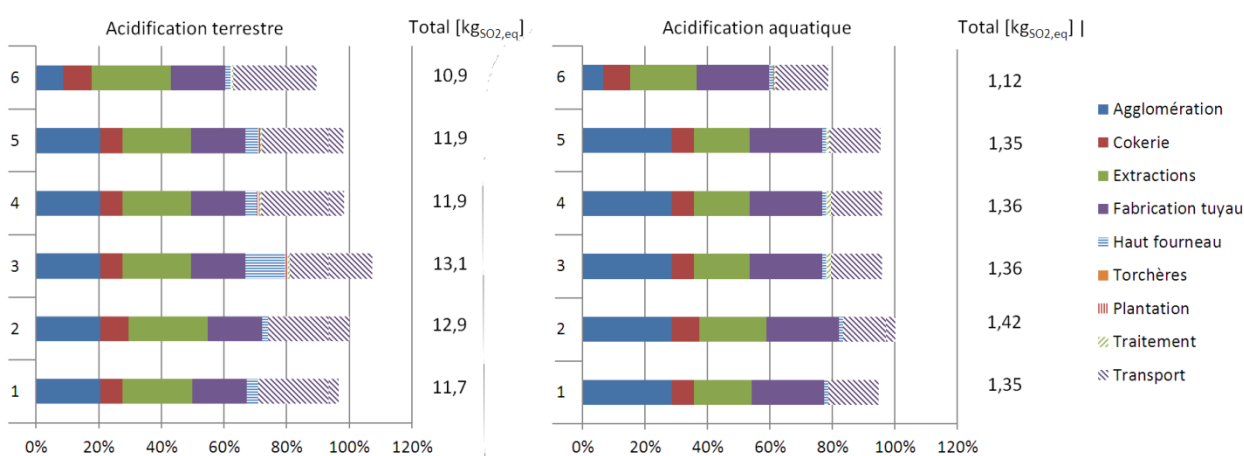


Figure 63 – Répartition du potentiel d'acidification terrestre (gauche) et aquatique (droite) par poste et pour chaque scénario (méthode Impact 2002+)

V.4.6. Potentiel d'eutrophisation

L'eutrophisation est un processus de modification ou de dégradation de milieux aquatiques (principalement) en réponse à l'apport excessif de nutriments azotés et phosphorés. Il est exprimé en kgPO_{4,eq}. Les résultats des deux méthodes (Figure 64) diffèrent considérablement puisque la méthode CML 2001 aborde le problème d'eutrophisation de manière plus générale, considérant les émissions dans l'air (NO_x) aussi bien que les émissions dans l'eau (phosphate et composés azotés), tandis que la méthode Impact 2002+ ne prend en compte que les émissions dans l'eau. On peut noter que pour les deux méthodes, les postes d'extraction, de fabrication des tuyaux et du transport contribuent significativement du fait de leurs émissions de NO_x dans l'air et de phosphate dans l'eau. D'après la méthode CML 2001, l'agglomération joue également un rôle (17 %), notamment à cause des NO_x émis. Pour la méthode Impact 2002+, on constate la contribution de la phase d'exploitation de la biomasse (3 à 7 %) due aux émissions de phosphate. Le cas d'utilisation de charbon de bois au gueulard présente une forte contribution de la part du haut fourneau, correspondant, en fait, aux émissions de goudrons liées à la libération de matières volatiles du charbon de bois. L'impact de ces goudrons (considérés comme un flux d'hydrocarbures dans l'inventaire), n'est cependant observable que sur les résultats obtenus par la méthode CML.

En approche porte-à-porte, l'impact du cas standard est estimé à 0,21 kgPO_{4,eq} t⁻¹_{fonte} ce qui est en assez bon accord avec les chiffres de Van Caneghem et coll. (2010) (entre 0,175 et 0,215 kg PO_{4,eq} t⁻¹_{acier}).

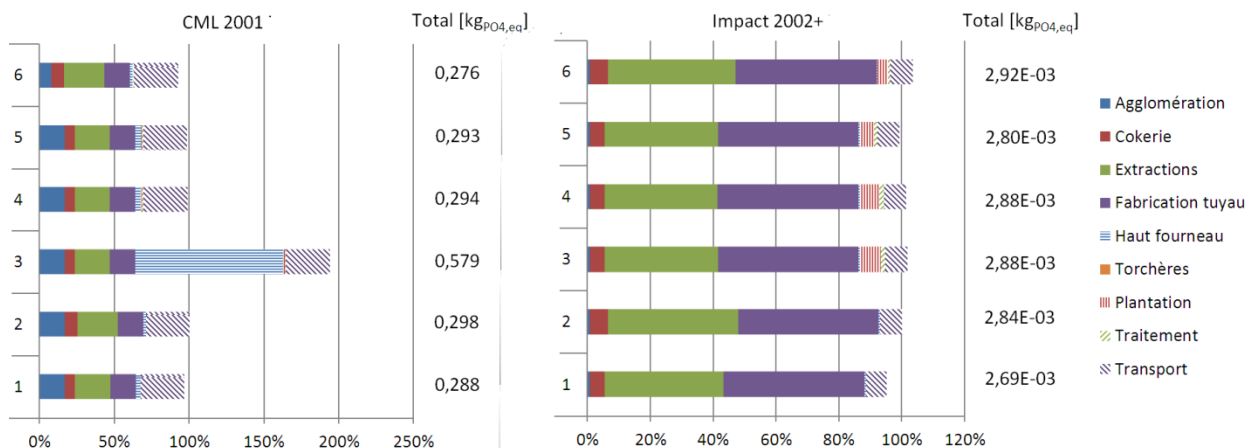


Figure 64 – Répartition du potentiel d'eutrophisation par poste et pour les méthodes CML 2001 (gauche) et Impact 2002+ (droite)

V.4.7. Potentiel d'écotoxicité terrestre et aquatique

Certains composés émis par les procédés sont susceptibles d'être ingérés par des espèces terrestres ou aquatiques, entraînant des risques sur la santé animale. Comme pour les deux impacts précédents, des calculs différents sont effectués selon la méthode utilisée. Par exemple, la méthode CML 2001 décompose le potentiel d'écotoxicité aquatique en impact sur les espèces d'eau douce et sur les espèces d'eau de mer, tandis qu'un seul impact sur les espèces aquatiques est considéré dans la seconde méthode. De plus, la substance de référence utilisée pour la première méthode est le dichlorobenzène (les autres éléments étant alors convertis en kg_{DCB,eq}) et pour la seconde le triéthylène glycol (kg_{TEG,eq}).

La Figure 65 permet de comparer les différents scénarios et les résultats des deux méthodes de manière qualitative pour l'impact sur l'écotoxicité terrestre. Dans les deux cas, le poste de fabrication des tuyaux et l'unité d'agglomération contribuent significativement à cet impact, notamment à cause des émissions de métaux lourds. Les facteurs de caractérisation de la méthode Impact 2002+ tendent à exacerber certaines substances, comme Zn²⁺, dont les émissions au poste de fabrication de tuyaux sont élevées.

D'après la méthode CML 2001, on remarque que l'utilisation de biomasse au haut fourneau ou à l'agglomération entraîne une faible augmentation de cet impact. En effet, si la réduction de l'utilisation de coke permet de réduire les impacts lors des processus de cokerie et d'extraction, l'émission de métaux lourds lors de l'utilisation d'électricité aux postes d'exploitation et de traitement de la biomasse compensent ce bénéfice. Globalement, les écarts entre les scénarios sont cependant faibles pour cet impact.

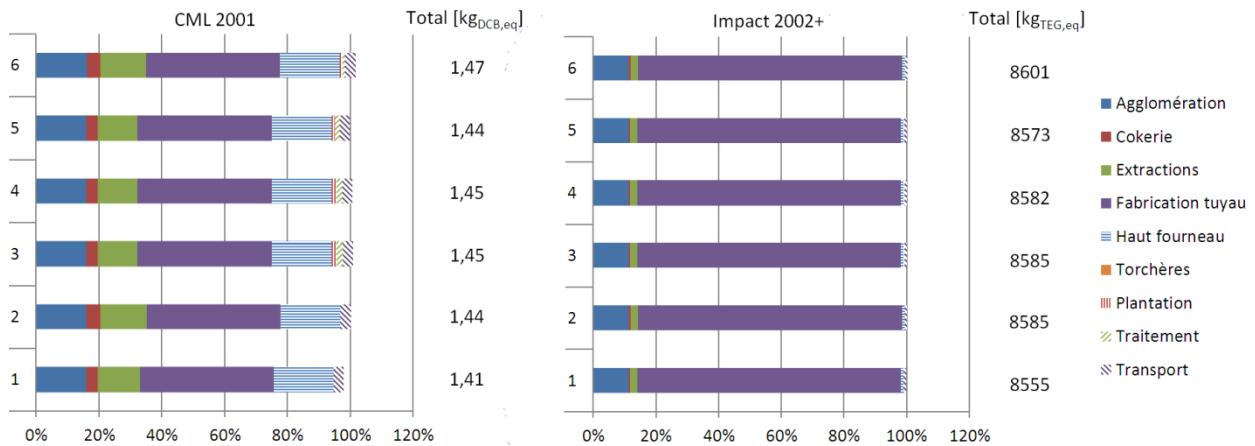


Figure 65 – Répartition du potentiel d'écotoxicité terrestre par poste et pour chaque scénario (méthodes CML 2001 à gauche et Impact 2002+ à droite)

Pour l'écotoxicité aquatique (Figure 66 et Figure 67), la part du poste d'extraction est plus importante (45 à 50 %), quelle que soit la méthode utilisée. Le poste de fabrication des tuyaux intervient ensuite avec 20 à 30 % de la contribution sur l'impact. Enfin la cokerie, l'agglomération et le transport se partagent les points restants. La comparaison des scénarios à partir des résultats par la méthode CML 2001 permet d'aboutir à des conclusions similaires à celles relatives pour l'écotoxicité terrestre : l'utilisation de biomasse permet la réduction des impacts liés à la cokerie et aux extractions, mais les postes de plantation et de traitement de la biomasse compensent voire surpassent cette réduction.

Dans ce cas, l'impact potentiel calculé est plus élevé que l'impact évalué par Van Caneghem et coll. (2010) puisque nous calculons $1,9 \text{ kg}_{\text{DCB,eq}} \text{ t}^{-1}_{\text{fonte}}$ pour une gamme de $0,195$ à $0,47 \text{ kg}_{\text{DCB,eq}} \text{ t}^{-1}_{\text{acier}}$ dans la littérature. 50 % de la valeur que nous avons calculée correspond au processus d'agglomération, dont les émissions en métaux lourds sont issues de données mesurées en interne, il s'agit donc d'une valeur fiable. Par contre 40 % correspondent au procédé de cokerie, dont l'inventaire provient d'Ecoinvent sur une échelle globale, et dont nous ne pouvons pas analyser la fiabilité.

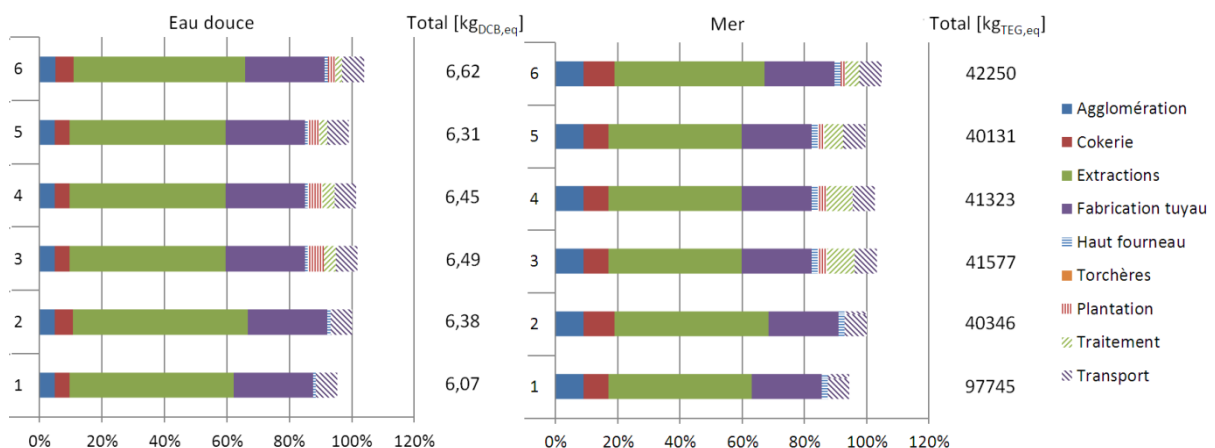


Figure 66 – Répartition du potentiel d'écotoxicité aquatique par poste et pour chaque scénario (méthode CML 2001, pour l'eau douce à gauche et pour l'eau de mer à droite)

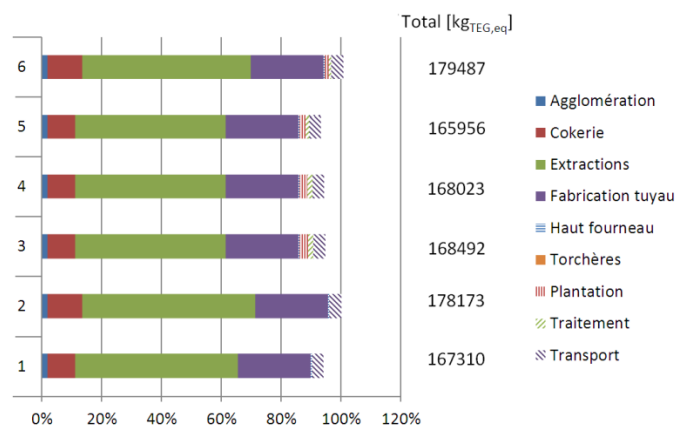


Figure 67 – Répartition du potentiel d'écotoxicité aquatique par poste et pour chaque scénario (méthode Impact 2002+)

V.4.8. Potentiel de toxicité humaine

L'impact sur la toxicité humaine est abordé de manière différente par les deux méthodes considérées. La méthode CML s'appuie sur une catégorie d'impact globale tandis que la méthode Impact en comprend deux : substances cancérigènes et non-cancérigènes (Jolliet O. et coll. 2003). De plus, différentes substances de référence sont utilisées : le dichlorobenzène pour la toxicité humaine de la méthode CML, le polychlorure de vinyle pour les substances cancérigènes et non-cancérigènes.

D'après la méthode CML, l'agglomération et la fabrication des tuyaux se présentent comme les principaux postes émetteurs (30 % chacun), suivis par l'extraction (18 %), puis la cokerie (7,5 %) et le haut fourneau (6 %) (Figure 68). Les métaux lourds sont les substances dont la contribution est la plus significative à l'agglomération, lors de la fabrication de tuyaux ainsi qu'à l'extraction. L'impact de ce dernier poste est également amplifié par l'émission de particules fines. L'utilisation de biomasse dans le haut fourneau a donc un impact bénéfique puisqu'elle permet de diminuer la part liée à la cokerie et aux extractions. Cependant, les émissions de poussières lors de la phase traitement compensent en partie ce bénéfice, et seuls 1 à 1,5 % de réduction de l'impact sur la toxicité humaine peuvent être atteints. L'utilisation de charbon de bois à l'agglomération par contre présente un impact légèrement supérieur au cas standard (moins de 1 %) dû à l'augmentation des émissions de COV à l'agglomération.

Par comparaison avec la littérature, cet impact est réaliste puisque nous avons calculé $82 \text{ kg}_{\text{DCB,eq}} \text{ t}^{-1}_{\text{fonte}}$ et Van Caneghem et coll. (2010) indiquent une fourchette de 60 à $280 \text{ kg}_{\text{DCB,eq}} \text{ t}^{-1}_{\text{acier}}$.

La Figure 69 présente la répartition des émissions de substances contribuant aux effets non-cancérigènes sur la santé humaine. La fabrication des tuyaux contribue pour 65 % à ces effets, suivie de l'extraction à 23 %. Les émissions de métaux lourds dans l'air sont responsables de la majeure partie de la contribution de la fabrication des tuyaux, tandis que les émissions de métaux lourds dans l'eau sont responsables pour l'extraction.

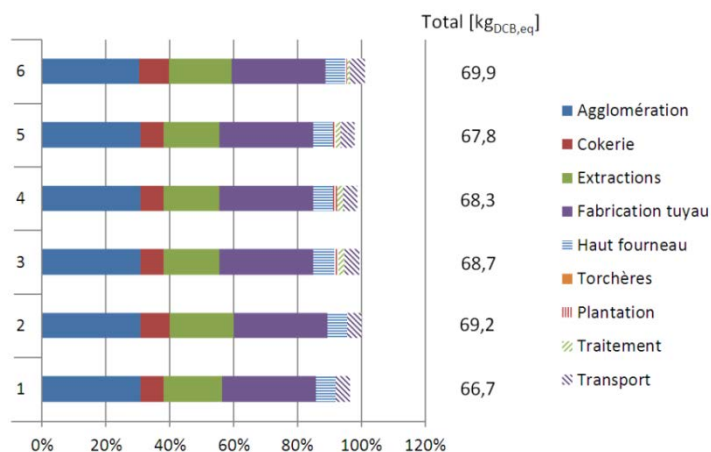


Figure 68 – Répartition de l'impact sur la toxicité humaine par poste et pour chaque scénario (méthode CML 2001)

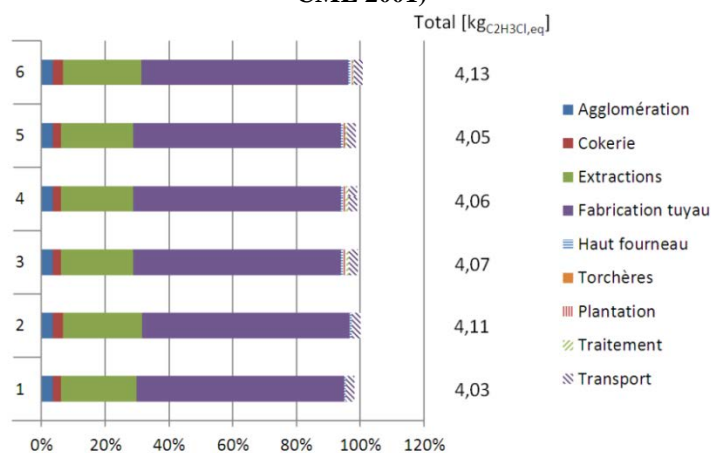


Figure 69 – Répartition des émissions de substances non-cancérigènes par poste et pour chaque scénario (méthode Impact 2002+)

La répartition des émissions de substances contribuant aux effets cancérigènes présente un profil différent des effets non-cancérigènes. En effet, concernant cet impact, la cokerie est la principale source d'émissions (50 %) suivie de la fabrication des tuyaux (35 %) et de l'extraction (11 à 12 %). Pour la cokerie, l'émission d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), notamment de benzopyrène est la cause principale. Les HAP sont également responsables d'une partie du rôle de l'étape de fabrication des tuyaux, le reste étant principalement dû aux émissions de composés organiques halogénés. Enfin la contribution de l'extraction provient d'une combinaison de toutes les émissions (HAP et composés halogénés) ainsi que d'émissions de métaux lourds dans l'eau.

Du fait de la forte contribution de la cokerie et de l'étape d'extraction, l'utilisation de biomasse au haut fourneau se révèle avoir un impact notable sur les émissions de substances cancérigènes. Pour une substitution de 20 %, on peut ainsi s'attendre à une réduction d'environ 10 %. En fait, plus que l'utilisation de biomasse, c'est la substitution de coke qui présente cet avantage, puisque l'injection de charbon (fossile) pulvérisé permet d'atteindre le même niveau de réduction, tandis que l'utilisation de charbon de bois à l'agglomération n'apporte aucune amélioration.

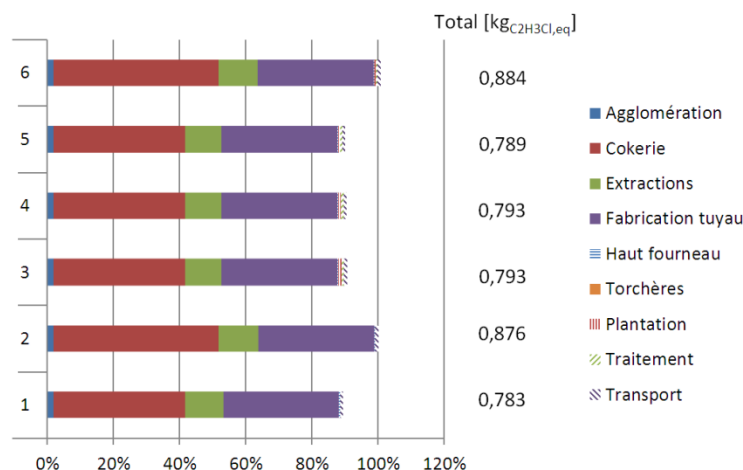


Figure 70 – Répartition des émissions de substances cancérogènes par poste et pour chaque scénario (méthode Impact 2002+)

V.4.9. Occupation des sols

Seule la méthode Impact permet d’observer l’impact du système sur l’occupation des sols (Figure 71). Pour les cas utilisant des combustibles fossiles la majeure partie de l’occupation des sols résulte de la phase d’extraction (90 %). Lorsque de la biomasse est utilisée, l’occupation des sols augmente de manière significative (47 à 90 %), à cause du poste correspondant à la plantation.

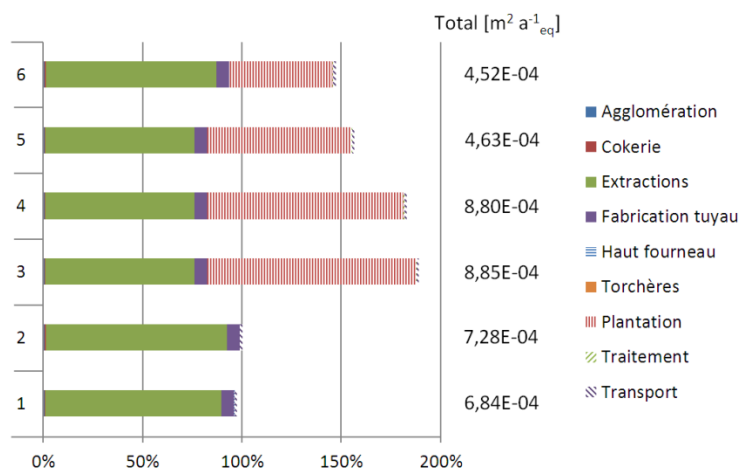


Figure 71 – Répartition de l’occupation de sols par poste et pour chaque scénario (méthode Impact 2002+)

V.4.10. Conclusion sur l’analyse des impacts intermédiaires

Nous avons vu que la contribution des différents postes sur tous les impacts considérés est plutôt variable et inégale. Globalement, pour les impacts autres que les GES et l’occupation des sols, quatre postes se distinguent particulièrement : l’agglomération, la cokerie, l’étape de fabrication des tuyaux et l’extraction des ressources et des matières premières.

L’agglomération a un rôle prépondérant principalement à cause des émissions de CO₂, CO, COV, de NO_x et de métaux lourds, qui interviennent de façon significative dans plusieurs effets (GES, formation d’ozone, toxicité humaine et acidification).

La cokerie émet quant à elle une quantité élevée de HAP, NO_x et SO_x, et de particules fines, entraînant des impacts sur la santé humaine, l'eutrophisation et l'acidification.

Le processus de fabrication des tuyaux est également un poste important d'après les résultats que nous avons exposés. L'émission de certains composés à fort impact (tels que le halon, les particules fines, les métaux lourds, COV) font contribuer ce poste à de nombreux impacts (écotoxicité terrestre et aquatique, acidification, appauvrissement de la couche d'ozone, formation de photo-oxydants...).

L'extraction des ressources énergétiques (plus que l'extraction des matières premières) est le poste contribuant le plus significativement à tous les impacts. Ses émissions de particules, COV, NO_x, composés halogénés et de métaux lourds le font intervenir dans la plupart des impacts considérés : santé humaine, appauvrissement de la couche d'ozone, formation de photo-oxydants, acidification et eutrophisation. De plus, il intervient directement sur l'appauvrissement des ressources énergétiques non renouvelables. Enfin, il représente le premier poste d'occupation des sols pour les filières à combustibles fossiles.

Cette étude permet également d'observer l'effet de l'utilisation de biomasse à différents niveaux. On peut remarquer deux tendances selon l'endroit où est utilisée la biomasse. L'utilisation au haut fourneau (aux tuyères ou chargement au gueulard) permet de réduire les effets sur la plupart des catégories d'impacts, conséquence de la réduction de l'utilisation de coke. Cela permet en effet de réduire les impacts associés à la production de coke et à l'extraction de charbon fossile, deux postes à forte influence sur une majorité de catégories d'impact. L'utilisation de biomasse à l'agglomération peut également avoir un effet bénéfique sur les impacts, mais il est moins marqué. En revanche, certaines catégories d'impacts se retrouvent amplifiées par l'utilisation de charbon de bois. En effet, la réduction des émissions de NO_x peut être compensée par une augmentation des émissions de COV, contrebalançant les effets bénéfiques, par exemple sur l'appauvrissement de la couche d'ozone, ou la formation de photo-oxydants.

Deux catégories d'impacts sont affectées négativement par l'utilisation de biomasse : l'utilisation des sols, et l'écotoxicité terrestre et aquatique. Le premier est une conséquence de l'utilisation de sol forestier, bien que la biomasse forestière utilisée dans notre cas consiste en plaquette forestière (donc un déchet de l'exploitation de bois d'œuvre). Le second impact est surtout dû à l'utilisation d'électricité lors de la phase de traitement de la biomasse, et pourrait être réduit dans le cas d'une optimisation énergétique de ce poste.

De manière générale, on peut noter que le meilleur scénario, sur l'ensemble des cas, pour les performances sur les émissions de GES et tous les autres impacts est le cas 5, d'utilisation de biomasse torréfiée injectée aux tuyères.

V.4.11. Caractérisation des dommages

Seule la méthode Impact 2002+ permet d'effectuer une évaluation des dommages. La Figure 72 en présente les résultats, les calculs ayant été effectués avec une normalisation pour l'Europe de l'Ouest. La liste des facteurs de caractérisation des dommages et de normalisation utilisés se trouve en annexe U. Ces résultats suggèrent que les principaux impacts du système se concentreraient d'abord sur la santé humaine puis sur le changement climatique et la consommation de ressources non renouvelables, avec respectivement 49, 28 et 21 % des dommages totaux. L'utilisation de biomasse aurait donc un effet bénéfique puisque les émissions liées aux procédés de cokerie et d'extraction des ressources seraient réduites, d'où une diminution des dommages sur la santé humaine. De même, les émissions de GES et la

consommation des ressources diminueraient, permettant de réduire les impacts globaux du système (de 3 à 8 %) d'après la méthode Impact 2002+.

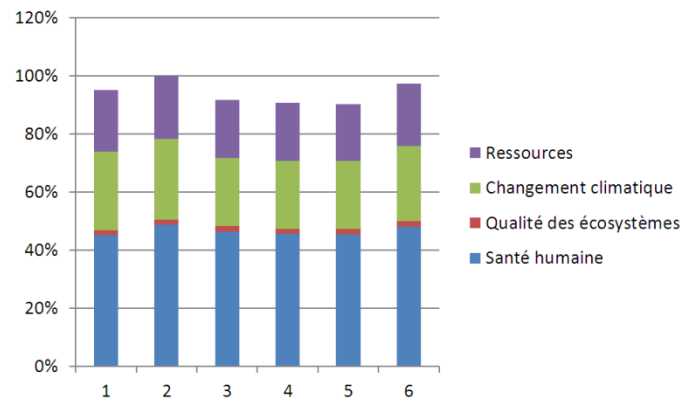


Figure 72 – Caractérisation des dommages (normalisés pour l'Europe de l'Ouest) des 6 scénarios, à partir de la méthode Impact 2002+

V.5. Aspects économiques

Du fait de la nature industrielle de l'activité de production des tuyaux en fonte, les aspects économiques sont également déterminants pour les choix stratégiques futurs. En complément de l'étude environnementale, mais de manière beaucoup moins détaillée, nous avons réalisé une rapide évaluation du coût de chaque scénario. Cette évaluation s'appuie sur 4 paramètres :

- le coût de la biomasse (noté ici $P_{biomasse}$),
- le coût du combustible remplacé (noté $P_{combustible}$),
- le taux de remplacement du combustible par la biomasse considérée (noté TR),
- le prix de la tonne de CO_2 (noté P_{CO_2}).

Les deux premiers paramètres peuvent être estimés ou calculés à partir de données de la littérature et le troisième a été déterminé grâce à la modélisation. Enfin le quatrième paramètre, bien que connu actuellement (inférieur à 5 $\text{€t}^{-1}_{CO_2}$ en avril 2013), est susceptible d'évoluer dans les prochaines années. Afin de considérer l'éventualité d'une hausse significative du prix du CO_2 , une gamme de 30 à 60 €t^{-1} a été envisagée.

Pour le calcul économique, on ne peut pas utiliser les données de réduction des émissions de GES issues de l'ACV. En effet, le système de quotas actuel calcule les émissions de CO_2 sur la base d'un bilan de masse en carbone entre l'entrée et la sortie du site de production (ce qui correspond à l'agglomération et au haut fourneau dans notre cas). Par contre, comme le reconnaît la réglementation européenne (CE, 2008), les émissions de CO_2 provenant de carbone biomasse sont comptées comme nulles dans le bilan.

Enfin une dernière hypothèse doit être effectuée : une partie du carbone chargé dans le haut fourneau se retrouve stockée dans la fonte. Ce carbone n'étant pas émis sous forme de CO_2 , il peut être décompté du bilan. En considérant le cas étudié dans notre travail (soit une mise au mille de $461 \text{ kg}_{\text{coke}} \text{ t}^{-1}_{\text{fonte}}$), on a 394 kg de carbone en entrée de fourneau, et 354,5 kg de carbone libérés sous forme de CO_2 . Cela permet de calculer un facteur d'émission (FE) de $2,82 \text{ kg}_{CO_2} \text{ kg}^{-1}_{\text{coke}}$. Le facteur d'émission de l'antracite est de $3,16 \text{ kg}_{CO_2} \text{ kg}^{-1}_{\text{antracite}}$.

La formule utilisée pour le calcul des coûts des scénarios est la suivante :

$$\text{Coût} = TS \cdot CC \cdot \left(\frac{P_{biomasse}}{TR} - P_{combustible} - P_{CO_2} \cdot FE_{combustible} \right)$$

Où, en sus des notations déjà introduites, TS est le taux de substitution/fraction du combustible fossile remplacé par de la biomasse et CC est la quantité de combustible nécessaire pour 1 t de fonte. Il s'agit en fait d'un surcoût (en $\text{€t}^{-1}_{\text{fonte}}$) qu'engendrerait la substitution d'un combustible fossile par de la biomasse.

Tableau 97 – Calcul des coûts pour les 4 scénarios biomasse (coût donné en $\text{€t}^{-1}_{\text{fonte}}$)

		Biomasse remplace coke			Biomasse remplace anthracite	Biomasse remplace charbon fossile	
		Bois torréfié	Charbon de Bois (tuyères)	Charbon de Bois (gueulard)	Charbon de bois (agglomération)	Bois torréfié	Charbon de bois (tuyères)
P_{biomasse}	[€t^{-1}]	275	325	350	325	275	325
$P_{\text{combustible}}$	[€t^{-1}]	250	250	250	110	167	167
TR	[-]	0,464	0,754	0,712	0,9	0,512	0,831
Coût (CO_2 à 30 €t^{-1})	[€t^{-1}]	23,2	8,7	14,1	6,9	25,9	12,7
Coût (CO_2 à 60 €t^{-1})	[€t^{-1}]	15,6	1,1	6,5	2,7	18,4	5,2
Prix CO_2 pour coût nul	[€t^{-1}]	121,5	64,2	85,7	79,5	133,8	80,8

Nous avons tout d'abord considéré que 20 % du coke était remplacé par de la biomasse (bois torréfié aux tuyères, charbon de bois pulvérisé aux tuyères ou introduit en blocs au gueulard). Les chiffres correspondants sont donnés dans les 3 premières colonnes du Tableau 97. La substitution de l'anthracite par du charbon de bois correspond à la 4^e colonne du tableau. Les prix utilisés pour les calculs correspondent aux coûts minimum des différentes biomasses considérées, à savoir le coût théorique de production de biomasse torréfiée et le coût d'achat de charbon de bois (voir chapitre III).

Finalement, comme une injection de biomasse aux tuyères se substituerait vraisemblablement à l'injection de charbon fossile pulvérisé actuelle, nous avons considéré deux cas d'injection de biomasse au haut fourneau en remplaçant du charbon fossile, moins cher que le coke (dernières colonnes du Tableau 97). Les taux de remplacement utilisés ont été réajustés à partir du taux de remplacement du coke par le PCI que nous avons calculé à partir du modèle (0,907). De la même manière qu'avec le coke, le facteur d'émission du PCI a été calculé en tenant compte du carbone fixé par la fonte, il vaut $2,77 \text{ kg}_{\text{CO}_2} \text{ kg}^{-1}_{\text{PCI}}$.

On observe dans un premier temps que pour un coût CO_2 inférieur à 60 €t^{-1} , aucun scénario n'a d'intérêt économique puisqu'un surcoût serait associé à chacun d'entre eux (de 1,1 à $25,7 \text{ €t}^{-1}_{\text{fonte}}$). A $30 \text{ €t}^{-1}_{\text{CO}_2}$, l'utilisation de charbon de bois à l'agglomération se présente comme le scénario le plus avantageux avec un surcoût de seulement $6,9 \text{ €t}^{-1}_{\text{fonte}}$, suivi de l'utilisation de charbon de bois pulvérisé aux tuyères avec $8,7 \text{ €t}^{-1}_{\text{fonte}}$. Dans une optique d'augmentation plus significative du coût du CO_2 (60 €t^{-1}), le charbon de bois pulvérisé aux tuyères deviendrait la solution la plus intéressante, avec un surcoût de $1,1 \text{ €t}^{-1}_{\text{fonte}}$, tandis que la substitution à l'agglomération coûterait $2,7 \text{ €t}^{-1}_{\text{fonte}}$. Le cas le plus onéreux, quel que soit le prix du CO_2 , serait l'utilisation de bois torréfié, avec un surcoût dépassant $15 \text{ €t}^{-1}_{\text{fonte}}$. Enfin dans le cas plus vraisemblable d'une substitution au charbon fossile, les deux cas calculés, charbon de bois et bois torréfié injectés aux tuyères, ont des coûts plus élevés qu'en substitution de coke (de 5,2 à $25,9 \text{ €t}^{-1}_{\text{fonte}}$).

En considérant un coût de production de fonte de $300 \text{ €t}^{-1}_{\text{fonte}}$, l'utilisation de biomasse pourrait représenter un surcoût de 0,4 à 8,7 %, pour une gamme de coûts de CO_2 de 30 à 60 € et selon la biomasse et le type d'injection. Dans le scénario le plus avantageux, le surcoût n'est donc pas très élevé rapporté au coût de production de la fonte, mais il reste basé sur une hypothèse de CO_2 très cher, et en prenant une substitution du coke. Un calcul pour une

substitution du charbon fossile et au cours du CO₂ actuel (5 €t⁻¹), la solution représenterait une augmentation de 6 % du coût de production.

La dernière ligne du tableau indique que l'utilisation de biomasse ne pourrait être rentable qu'à la suite d'une augmentation conséquente du cours du CO₂. Dans le meilleur des cas, charbon de bois pulvérisé aux tuyères, ce dernier devrait atteindre plus de 80 €t⁻¹CO₂, et plus de 130 €t⁻¹CO₂ dans le cas d'injection de bois torréfié.

Les aspects économiques se présentent donc comme un frein à l'utilisation de biomasse dans la filière de production de fonte, tant au cours du CO₂ actuel qu'à des cours plus élevés. On peut cependant noter que ces calculs ont été réalisés sur la base de coûts de combustibles fossiles et biomasses fixes, qui sont eux aussi sujets à évolution. En effet, la conjoncture économique, qui a résulté en la chute du prix du CO₂, a également entraîné une chute puis une stagnation des cours des combustibles fossiles, alors plus élevés. Par exemple, en 2008 ou en 2011, le cours du coke avait dépassé 350 €t⁻¹, cours qui pourrait de nouveau être rapidement atteint en cas d'évolution positive de la croissance économique.

V.5.1. Conclusions

En utilisant le logiciel d'ACV Gabi et les résultats d'inventaires issus de nos modèles pour les trois principaux procédés (haut fourneau, agglomération et traitement de la biomasse) et de données d'usine ou de la base de données Ecoinvent pour les autres procédés, nous avons évalué l'ensemble des impacts environnementaux et, dans certains cas, des dommages correspondants à différents scénarios (fonctionnements classiques et avec biomasse). L'unité fonctionnelle est 1 tuyau en fonte standard (type DN400). L'approche est du type berceau à la porte.

Concernant les émissions de GES, dans le cas d'un haut fourneau fonctionnant entièrement au coke, on obtient une émissions de 927 kg_{CO₂,eq.} tuyau⁻¹. La substitution de 20 % du coke par un combustible annexe produit à partir de biomasse peut permettre de réduire ces émissions jusqu'à 13,9 %.

L'utilisation de biomasse est donc intéressante du point de vue des émissions de GES mais elle conduit également à la réduction du besoin en énergies non renouvelables. L'étendue de cette réduction n'est toutefois pas aussi élevée que la réduction des émissions de GES. En effet, la production de biomasse engendre des besoins électriques (sur le réseau français) non négligeables résultant en des besoins en uranium conséquents.

L'utilisation de biomasse s'avère avoir également des impacts moins bénéfiques, par exemple sur l'occupation des sols, puisqu'on accroît la surface requise de 189 % lors de la substitution de 20 % du coke par des blocs de charbon de bois.

Le meilleur scénario parmi les cas envisagés s'avère être l'injection de fines de biomasse torréfiée, plus performant du point de vue des émissions de GES (-13,9 %), du besoin en énergie non renouvelables (-7,9 %) et de l'occupation des sols (+56 %). Les performances environnementales de ce scénario par rapport aux autres scénarios biomasse s'expliquent par l'utilisation d'une pyrolyse moins poussée et donc un besoin en biomasse brute et en transport moindre que dans le cas des carbonisations. Ensuite vient l'injection de fines de charbon de bois en second choix, et enfin le chargement de blocs de charbon de bois au gueulard, tous deux avec des réductions comparable en terme de GES, mais des impacts plus importants sur les besoins en énergie et en surface de sol occupée. Enfin la substitution à l'agglomération serait le quatrième choix en termes de performances environnementales.

Enfin, si on prend également en considération les aspects économiques, on remarque que c'est l'utilisation de charbon de bois pulvérisé aux tuyères qui est le scénario le plus intéressant. En effet, nonobstant le prix élevé du charbon de bois pulvérisé, le taux de remplacement favorable du charbon de bois permet d'avoir une quantité moins importante à injecter, et donc à acheter. On observe également qu'au cours du CO₂ actuel, aucun scénario ne serait rentable. Il en serait de même avec des prix du CO₂ plus élevés, 30 et 60 €t⁻¹ CO₂, et il faudrait atteindre plus de 80 €t⁻¹ CO₂ pour être rentable dans le cas d'injection de charbon de bois, et en considérant que les coûts des matières premières (coke et biomasse) n'évolueraient pas.

VI. Conclusion

Notre étude avait pour objectif d'évaluer une option innovante pour la réduction des émissions de CO₂ associées à la production de fonte, avec application à la production de tuyaux en fonte par la filière de première fusion de l'entreprise SG PAM. Cette option consiste à substituer partiellement les combustibles ou agents réducteurs d'origine fossile utilisés par la filière classique par des produits d'origine biomasse. Notre évaluation s'est appuyée sur différents aspects : la faisabilité technique, la disponibilité de la ressource, et la viabilité économique et environnementale. Ce dernier volet est d'ailleurs fondamental puisque la réflexion autour de la problématique du CO₂ est une conséquence de l'application du protocole de Kyoto. Il était donc important de s'assurer que l'emploi de biomasse n'engendrerait pas d'émissions « grises » en amont de l'unité de production. C'est ce qui a motivé l'utilisation de la méthode « Analyse de Cycle de Vie », outil de nature holistique, pour la réalisation de cette partie de l'évaluation.

Dans un premier temps un état des lieux des solutions existantes ou étudiées a été dressé, dont on a tiré des alternatives possibles applicables au cas de SG PAM. Neuf solutions ont été répertoriées, dont sept substitutions partielles du coke dans le haut fourneau, une substitution du combustible à l'agglomération et une solution de substitut du charbon fossile à la cokerie. Entre 3,16 et 3,27 t_{CO2eq} par tonne de combustible remplacé à l'agglomération ou dans le haut fourneau pourraient théoriquement être évitées par l'utilisation des solutions envisagées. Enfin, le degré maximal de substitution possible a été estimé. Il varie entre 3 et 36 % selon les cas permettant d'atteindre 2,3 à 27,5 % de réduction des émissions de GES sur l'ensemble de la filière (cokerie, agglomération et haut fourneau).

Nous nous sommes ensuite intéressés plus spécifiquement à la biomasse, sa nature et aux différentes ressources la constituant. Bien qu'un grand nombre de types de biomasse existent, nous avons montré que l'accès à la ressource est généralement compliqué et que la disponibilité de la biomasse varie significativement d'une ressource à l'autre. Trois types de biomasse sont néanmoins ressortis de l'étude comme étant potentiellement disponibles en quantité suffisante localement, nationalement ou mondialement : le bois énergie, la paille de céréales et le charbon de bois. Du fait des propriétés intrinsèques de la biomasse, teneur en carbone, hydrogène et oxygène, lui conférant un pouvoir calorifique un peu faible en vue d'une utilisation en haut fourneau ou à l'agglomération, nous avons recensé les procédés technologiques existants (ou en cours de développement) de raffinage de la biomasse. Ces derniers se classent en deux catégories : des procédés thermiques réalisant une pyrolyse plus ou moins poussée, et des procédés biologiques. Suite à des considérations techniques n'ont été retenus pour la suite de notre étude que deux procédés thermiques relativement similaires l'un à l'autre: la carbonisation et la torréfaction.

Dans une troisième partie, les principaux procédés affectés par l'emploi de biomasse (haut fourneau, agglomération et procédé de pyrolyse) ont été modélisés avec le logiciel de diagramme de flux Aspen Plus. L'objectif principal du développement de ces modèles physico-chimiques était de mettre en œuvre une méthodologie précédemment utilisée au sein de l'équipe de recherche par Iosif (2009) : le couplage ACV – Aspen Plus et ce pour la réalisation d'inventaires détaillés des entrées et sorties des procédés. Ce couplage a la particularité d'assurer la qualité des données utilisées dans l'ACV, puisqu'elles sont issues de calculs déterministes et que les bilans de masse et d'énergie sont respectés. Les modélisations sont également importantes dans le cadre de notre étude puisqu'elles permettent de simuler des cas alternatifs non encore existants et que de leurs résultats peuvent être tirés des renseignements importants sur le fonctionnement du procédé, en particulier dans le cas du haut fourneau.

Une unité intégrée de traitement de bois a été modélisée sous Aspen Plus, qui combine une étape de pré-séchage et une étape de pyrolyse. Pour chaque étape, les processus et mécanismes physiques réels mis en jeu ont été décrits, en incluant les aspects cinétiques. Pour le séchage, la cinétique globale peut être contrôlée par deux phénomènes, le transfert de chaleur entre l'air chaud et la biomasse et le transport de l'eau de l'intérieur vers la surface des particules. La modélisation de ce dernier est basée sur l'utilisation de courbes caractéristiques de séchage de bois. Concernant l'étape de pyrolyse, nous avons retenu un procédé en four tournant. Pour modéliser la cinétique de pyrolyse, notre choix s'est porté sur l'emploi de cinétiques multiples et à deux étapes, avec d'une part la libération des matières volatiles puis une étape de craquage de ces dernières. Nous avons pu déterminer les conditions opératoires (débits et températures du gaz chauffant) pour des installations dimensionnées afin d'assurer les productivités visées. Pour le besoin de notre étude, nous avons considéré la production de deux types de bois traité : un bois dit « torréfié à haute température » (400 °C) et un bois carbonisé (475 °C). Les modèles ont été paramétrés de manière à s'approcher de deux qualités de biochar produits par une unité pilote. L'intégration énergétique des deux étapes n'a été que partiellement réalisée : en effet, du fait des températures élevées atteintes lors de la combustion des gaz de pyrolyse, une partie de la chaleur est perdue dans l'unité simulée. Cette chaleur pourrait être récupérée et utilisée, par exemple dans un réseau de chaleur ou bien pour la production d'électricité. Enfin, les débits de gaz élevés nécessitent l'utilisation de soufflantes, impliquant un besoin électrique, qui pourrait être partiellement compensé par la valorisation de la chaleur résiduelle.

Pour modéliser le haut fourneau, nous l'avons décomposé en deux zones principales, une zone de préparation et une zone d'élaboration. Dans la première zone, la combinaison de blocs spécifiques d'Aspen Plus et de sous-programmes en Fortran a permis de modéliser les phénomènes de transfert de chaleur entre les charges solides et les gaz, les cinétiques de réduction des différents oxydes de fer et les cinétiques de gazéification des charges carbonées (coke et charbon de bois). Afin de baser les calculs sur des données fiables, une courte étude expérimentale de la gazéification de coke et de charbon de bois en présence de CO₂ a été réalisée. Pour le cas de charbon de bois chargé au gueulard, la modélisation prend aussi en compte le processus de pyrolyse et de libération de matières volatiles, avec sa cinétique, également déterminée expérimentalement. Du fait de la diversité des phénomènes physiques ayant lieu dans la seconde zone du haut fourneau, celle-ci a été divisée en plusieurs parties. Une partie « zone de fusion », directement dans la continuité de la zone de préparation, permet de modéliser les mêmes phénomènes que précédemment tout en prenant en compte la fusion des charges solides. Une deuxième partie s'attache aux phénomènes physico-chimiques intervenant au niveau des tuyères. On modélise le chauffage par le vent chaud des charges pulvérisées injectées aux tuyères, puis la libération des matières volatiles de ces charges ainsi que leur combustion dans les cavités et, enfin, la combustion et la gazéification du coke dans ces cavités et dans le lit de coke autour des cavités. Enfin dans une troisième partie ont lieu la réduction directe des oxydes restants et l'ajustement de la teneur des éléments d'alliage de la fonte. Tout au long du fourneau, les pertes thermiques sont évaluées à partir des températures des gaz ascendants et des propriétés des réfractaires. La prise en compte des cinétiques dans les différentes zones de la modélisation est indispensable dans notre étude puisque c'est un des principaux paramètres différenciant les combustibles fossiles des combustibles biomasse. Grâce au modèle, on peut notamment déterminer les profils de températures et la composition des gaz de gueulard, image du rendement de l'utilisation du carbone chargé dans le fourneau, et calculer les quantités de combustibles à utiliser. Le modèle a ainsi permis de préciser le taux de remplacement de trois types de biomasses : 0,71 pour le charbon de bois chargé au gueulard, 0,75 pour le charbon de bois pulvérisé aux tuyères et 0,46 pour le bois torréfié pulvérisé aux tuyères. L'impact des substitutions sur les températures et compositions des gaz de gueulard et, plus généralement, sur le fonctionnement du haut fourneau a également pu être visualisé à partir de ce modèle.

Enfin un modèle existant d'une unité d'agglomération a été adapté au cas de SG PAM et a été utilisé pour simuler l'emploi de charbon de bois en substitut de l'anhracite. Ce modèle, contrairement aux autres, ne tient pas compte des cinétiques, il est basé sur des bilans de masse et d'énergie et des relations empiriques. Ces dernières permettent d'évaluer les quantités de polluants produites lors de la combustion (COV, NO_x, SO_x et HCl). Les relations d'origine ont été modifiées afin de correspondre au cas de SG PAM et de nouvelles ont été ajoutées afin de prendre en compte l'ajout de combustible biomasse, notamment pour les émissions de COV. Un taux de remplacement de l'anhracite par le charbon de bois de 0,9 a été utilisé. Finalement, un inventaire des émissions de polluants divers (CO₂, CO, COV, NO_x, SO_x, HCl et poussières) a pu être vérifié pour le cas standard (fossile) et déterminé pour un cas avec charbon de bois.

Enfin les résultats des modèles de procédés ont servi de base à la réalisation d'une ACV complète de la production de tuyaux en fonte par la filière de première fusion SG PAM, avec et sans utilisation de biomasse. La base de données Ecoinvent 2.0, implémentée dans le logiciel d'ACV Gabi4, a été utilisée en complément des inventaires précédemment calculés. Afin de garantir une interprétation rigoureuse, deux méthodes d'analyses des impacts ont été pratiquées, la méthode CML 2001 et la méthode Impact 2002+. Nous avons comparé les impacts environnementaux de deux scénarios classiques n'utilisant que des ressources fossiles à quatre scénarios biomasse.

L'impact sur le réchauffement climatique a été le premier analysé. Notre étude montre qu'une substitution de 20 % du coke par de la biomasse (charbon de bois ou biomasse torréfiée) dans le haut fourneau conduit à des réductions de 13,4 à 13,9 % des émissions de gaz à effet de serre par rapport aux 927 kg_{CO2eq} normalement émis pour la production d'un tuyau SG PAM, depuis l'extraction des matières premières jusqu'au tuyau fini. La meilleure solution de ce point de vue est la biomasse « torréfiée », dont le traitement thermique moins poussé nécessite des quantités de biomasse brutes moindres, et donc engendre moins d'impacts indirects. L'utilisation de biomasse à l'agglomération peut également réduire les émissions de manière significative, puisque 5,9 % de réduction des GES sont attendus dans le cas d'une substitution totale de l'anhracite.

Les effets des substitutions sur d'autres catégories d'impacts ont pu être observés, par exemple l'exploitation des ressources énergétiques non renouvelables et l'occupation des sols. On a ainsi montré que l'utilisation de biomasse ne permet pas de réduire tous les impacts avec la même ampleur et qu'elle pouvait éventuellement avoir des effets néfastes sur certains d'entre eux comme l'occupation des sols (accrue de 56 à 89 % par rapport au cas fossile).

L'interprétation des résultats de l'ACV a permis d'aller un peu plus loin dans la compréhension des impacts environnementaux du processus étudié globalement. L'exploitation de l'analyse de l'impact à la fois au niveau intermédiaire et au niveau des dommages a montré que la principale source de nuisances sur l'ensemble du processus est liée à l'utilisation de coke (cokerie et extraction du charbon), responsable d'émissions de CO₂ et de COV élevées (forts impacts sur le climat, la formation de photo-oxydants et les effets respiratoires et cancérigènes). La substitution de coke est donc une voix intéressante pour l'amélioration des performances environnementales de la filière, au-delà des émissions de gaz à effet de serre, comme l'a mis en exergue la méthode Impact 2002+. L'utilisation de biomasse, substituant 20 % du coke, pourrait permettre de réduire les dommages de 3 à 8 % par rapport à un cas 100 % coke et jusqu'à 5 % par rapport au fonctionnement actuel de SG PAM (avec injection de charbon fossile pulvérisé).

Plus spécifiquement pour SG PAM, comme nous l'avons vu, l'utilisation de biomasse peut permettre de réduire les émissions de CO₂ de 20 % sur site avec une substitution partielle des combustibles fossiles dans le haut fourneau. Dans nos calculs, une partie du carbone

biogénique (issu de la biomasse) est comptée – et stockée pour la durée de vie du tuyau – dans la fonte. Si cet effet n'était pas pris en compte, la réduction des émissions de CO₂ par l'utilisation de biomasse serait d'environ 1 % supérieure. De ce point de vue, il serait intéressant de pouvoir déterminer l'origine, fossile ou biogénique, du carbone dissous dans la fonte. Par ailleurs, on peut considérer que le carbone biogénique dissous dans la fonte a réalisé la capture d'une partie du CO₂ atmosphérique, contrairement au carbone fossile de la fonte, qui n'est pas passé par le stade CO₂. Pour une productivité nominale de l'usine de SG PAM, on peut ainsi estimer à environ 5 000 t le carbone biogénique stocké dans les tuyaux annuellement, soit plus de 18 300 t_{CO2} « stockées ». A titre de comparaison, ce chiffre représente l'équivalent des émissions de gaz à effet de serre de 1 950 européens en moyenne.

Enfin, on peut retenir que malgré les avantages environnementaux de l'utilisation de biomasse, aucune solution ne serait économiquement viable aux prix des combustibles fossiles et du CO₂ actuels. Nous avons également montré qu'une hausse conséquente du CO₂ jusqu'à 60 €/t⁻¹ ne serait pas suffisante, et qu'il serait nécessaire d'atteindre des prix de l'ordre de 80 €/t⁻¹_{CO2} ou plus pour pouvoir concurrencer la pratique actuelle. Au-delà des calculs de coûts, la conjoncture actuelle n'est malheureusement pas propice à l'emploi de telles solutions. D'une part, la situation économique actuelle défavorable ne permettrait pas à SG PAM d'investir dans la mise en place d'infrastructures liées à l'utilisation de biomasse. D'autre part, on observe une forte réduction de la cadence de production liée à la crise économique qui résulte en une baisse importante des émissions de CO₂ de SG PAM, les plaçant en dessous du seuil de quotas autorisés. Le rachat de quotas n'est donc plus nécessaire et, au cours actuel, la vente n'est pas non plus rentable, ce qui réduit l'intérêt économique d'une réduction des émissions de CO₂.

VII. Perspectives

A l'issue de ce travail, je ne peux tout d'abord que constater que les conseils que je pourrais donner à SG PAM sur la problématique de la biomasse rejoignent la direction prise par l'entreprise : les conditions actuelles n'étant pas favorables, se lancer dans l'utilisation de biomasse maintenant serait prématuré. Cependant, les avantages environnementaux mis en valeur par ce travail suggèrent deux pistes à suivre pour l'avenir. La première est de rester attentif à l'évolution des marchés concernés. La seconde est d'anticiper une conjoncture qui deviendrait plus favorable. Sur le second point, je pense qu'il serait utile de lancer de courtes campagnes d'essais d'injection de biomasse afin de confirmer ou infirmer industriellement les résultats de la modélisation. Pour le premier point, il convient de garder un œil sur le marché de la biomasse locale et national. En effet, les coûts des ressources énergétiques fossiles peuvent évoluer rapidement, et leur augmentation pourrait rendre la biomasse plus attractive. Bien sûr, le coût de la biomasse est lui aussi susceptible d'évoluer. Si son coût augmentait parallèlement à celui des ressources fossiles, cela réduirait d'autant plus l'attrait de l'option biomasse puisqu'il faut environ 4 kg de matière sèche de biomasse pour remplacer 1 kg de coke dans le haut fourneau. Il est cependant plus probable que le coût de la biomasse atteigne un palier, dû à la biomasse bois énergie. Dans une optique de développement durable, le coût du bois énergie ne devrait en effet théoriquement pas dépasser les coûts du bois d'œuvre, sous peine d'affaiblir cette filière.

Concernant le travail réalisé lors de cette thèse, les modèles développés ont sans doute fourni des résultats intéressants, mais un certain nombre d'améliorations pourraient leur être apportées.

Dans le cas du procédé de pyrolyse, on pourrait notamment envisager :

- de détailler l'ensemble de l'unité de traitement, en prenant en compte des éléments réels tels que des unités d'épuration, filtres,
- de développer un modèle de chambre de combustion,
- d'améliorer l'optimisation énergétique en intégrant la valorisation des chaleurs résiduelles sous forme de chaleur ou d'électricité,
- de considérer la pyrolyse d'autres types de biomasse (paille, ou autres résidus agricoles par exemple),
- de prendre en compte les interactions gazeuses au sein de la pyrolyse.

Le modèle du haut fourneau peut également subir de nombreuses améliorations :

- en premier lieu la ré-évaluation des phénomènes ayant lieu dans les cavités, par l'utilisation de modèles physiques plus complexes (passer d'une sphère à une forme plus sophistiquée, décomposer la cavité en plusieurs zones de densités diverses, utiliser une autre méthode de calcul des paramètres de turbulence et temps de séjour). En effet, les températures calculées en sortie de cavités sont plus élevées que les températures généralement calculées par les modèles numériques de la littérature et la modélisation utilisée sous Fluent pourrait en être à l'origine,
- optimisation des temps de calculs (optimisation de l'agencement du diagramme de flux, utilisation de programmes Fortran externes à la place des calculateurs),
- prises en compte de phénomènes supplémentaires au sein du fourneau, comme la formation de goudrons aux nez des tuyères, la cinétique du processus de formation du silicium dissous dans la fonte, les effets de refroidissement lié aux recirculations (d'alcalins entre autres), la cinétique de réduction directe...

- développement d'un modèle de combustion dans les cowpers pour une meilleure description des produits formés (NO_x , COV, CO) que celle donnée par un réacteur à équilibre de Gibbs.

Pour compléter et vérifier les paramètres des modèles, des études expérimentales pourraient également être entreprises :

- le besoin énergétique associé au broyage du bois torréfié et carbonisé mériterait d'être précisé. D'après nos estimations, le bois torréfié nécessite une énergie de broyage plus élevée mais du même ordre de grandeur que le bois carbonisé. Si ce besoin est en fait beaucoup plus élevé pour le bois torréfié, les conclusions de cette étude pourraient en être légèrement modifiées ;
- des essais expérimentaux d'injections de fines de biomasse (carbonisée ou torréfiée) au haut fourneau pourraient permettre de valider ou infirmer les conclusions obtenues à partir du modèle ;
- une série d'essais expérimentaux de pyrolyse de charbon de bois, suivis par thermogravimétrie, avec analyse de gaz et goudrons, et accompagnée de calorimétrie différentielle à balayage pourrait permettre de vérifier l'impact thermique du charbon de bois chargé au gueulard sur les températures internes et sur les gaz produits ;
- des expériences de réduction de l'aggloméré et du minerai utilisé chez SG PAM pourraient permettre de valider l'utilisation du modèle de Ranzani (2011) et de déterminer les paramètres de cinétiques chimiques associés aux entrants réels de SG PAM.

Le travail d'ACV pourrait lui aussi être complété, notamment concernant le procédé de cokerie. Le coke utilisé à Pont-à-Mousson n'étant pas produit sur site mais acheté à de nombreux producteurs européens, nous nous sommes basés sur un inventaire de la base de données Ecoinvent, moyenné pour l'Europe. D'après nos résultats, le poste « cokerie », associé aux extractions de charbon fossile en amont est un point chaud de l'inventaire, en termes de gaz à effet de serre mais également d'autres polluants à fort potentiel d'impacts sur la santé humaine. Une partie du travail de Iosif (2009) consacré à la modélisation de la cokerie et la réalisation d'un inventaire de cycle de vie associé, pourrait par exemple être utilisée dans ce sens.

La méthodologie utilisée avec le couplage Gabi/Aspen Plus présente plusieurs intérêts dans le cadre d'une étude comme la nôtre. Elle permet tout d'abord d'assurer une certaine qualité des données en vérifiant le bouclage des bilans énergétiques et massiques pour la production d'ICV, ce qui n'est pas toujours le cas avec les données industrielles. En outre, la modélisation offre la possibilité d'explorer des alternatives non existantes et de réaliser des études comparatives et d'impacts pour divers scénarios. Enfin le logiciel Aspen Plus dispose d'une base de données thermodynamiques et chimiques riche, ainsi que de nombreux outils (réacteurs, échangeurs) qui en fait un logiciel idéal pour la modélisation d'aspects énergétiques et/ou thermochimiques. Par exemple, les modèles simplement basés sur des bilans et des équilibres thermodynamiques tel que le modèle d'agglomération permettent des calculs rapides et précis. On notera tout de même quelques limites à cette méthode pour la modélisation de procédés complexes. En effet, lorsqu'une utilisation plus exotique du logiciel Aspen Plus est nécessaire, on peut se trouver devant des difficultés pour l'élaboration et l'implémentation des modèles. Dans le cas du haut fourneau, l'intervention de métaux et des problématiques de fusion, l'utilisation de solides non conventionnels (biomasse), l'intervention de phénomènes ou mécanismes complexes, multiples et parallèles (combustion dans les cavités, gazéification dans le lit de coke) ou le problème de cinétiques multiples en diphasique et pour des réacteurs à

contre-courant étaient autant de caractéristiques non-standard pour Aspen Plus. Il a de ce fait été nécessaire de faire appel à de nombreux programmes en Fortran pour modéliser ces mécanismes. Enfin, le haut fourneau étant un gigantesque réacteur à contre-courant, le modèle comprend un grand nombre de boucles de flux, ce qui entraîne des difficultés de convergence. Les méthodes de convergence d'Aspen étant gourmandes en mémoire, il n'est pas rare de voir des temps de calcul longs (de l'ordre d'une journée pour environ 500 itérations) ou des calculs inaboutis dus au manque de mémoire. Le travail de modélisation peut alors devenir très fastidieux. D'après mon expérience, Aspen peut donc être un outil intéressant pour la production de modèles simples, ou basés sur des bilans de masses et d'énergie, mais lorsqu'il est nécessaire de rentrer plus dans les détails des mécanismes et chimiques physiques de procédés complets et complexes, il pourrait être judicieux de se tourner vers d'autres outils de simulation numérique, du type CFD par exemple.

Enfin, je terminerais par un retour sur la problématique biomasse. Comme pour la plupart des énergies renouvelables, le développement de la biomasse énergie représente un enjeu considérable pour l'avenir. La ressource étant limitée et la demande de plus en plus pressante, on comprend bien les difficultés logistiques et économiques qui sont liées à cette thématique. On peut alors se poser la question de savoir quelle utilisation de la biomasse serait optimale d'un point de vue environnemental : l'utilisation en haut fourneau ? Pour la production de chaleur ? La production d'électricité ?

On pourrait par exemple, au lieu de partir d'un produit comme on le fait classiquement en ACV, comparer les impacts environnementaux d'un système dont la fonction générale serait la valorisation d'une tonne de bois (et l'unité fonctionnelle « une tonne de bois sec ») en considérant les différents scénarios énumérés précédemment. L'utilisation d'une extension du système serait nécessaire afin de prendre en compte les impacts évités et d'y associer des crédits d'impacts. Dans le cas du haut fourneau, notre étude a montré que l'utilisation d'une tonne de bois sec permettait de produire 257 kg de charbon de bois, qui permettrait d'éviter 734 kg_{CO2eq} sur l'ensemble du cycle de production de tuyaux en fonte. D'après Guest et coll. (2011) l'utilisation d'une tonne de bois dans une unité de cogénération (unité produisant 50 MW_{el} et 66,7 MW_{th}) émettrait entre 80,6 et 96,0 kg_{CO2eq} t⁻¹_{bois sec}, ce qui, en prenant les chiffres relatifs à la production française d'électricité et à la production de chaleur au gaz naturel (moyenne européenne) permettrait d'éviter 815,6 kg_{CO2eq} en production d'électricité et de chaleur (soit un total compris entre 719,6 et 735 kg_{CO2eq}). L'ordre de grandeur est donc ici le même que pour l'utilisation au haut fourneau. Une étude similaire de Caserini et coll. (2010), réalisée en Lombardie (Italie), montre par contre que 914 à 1020 kg_{CO2eq} seraient économisés par tonne de biomasse sèche. Il paraît donc évident que cette problématique est complexe et ne peut être adressée de manière simple et globale, d'autant plus que, comme nous l'avons montré dans la dernière partie de notre travail, les répercussions de l'utilisation de biomasse ne se limitent pas à la réduction des émissions de gaz à effet de serre, des impacts négatifs de son utilisation sont à prévoir sur les besoins en énergie non renouvelables ou l'occupation des sols. Enfin, un impact lié à l'utilisation de biomasse n'est pas pris en compte dans notre étude, du fait du manque de donnée le concernant : l'impact sur l'appauvrissement des sols. Ce sujet a été abordé par l'ADEME, mais l'intégration de ce type de résultats dans une ACV n'est pas encore effectuée. De plus, d'après Cacot et coll. (2007) cet impact est fortement dépendant des sols concernés, ce qui restreint les évaluations de type ACV à des échelles locales.

VIII. Références bibliographiques

- Abdelouahed L., et coll. (2012). "Detailed Modeling of Biomass Gasification in Dual Fluidized Bed Reactors under Aspen Plus." *Energy & Fuels* **26**: 3840-3855.
- ADA (2012). www.azote.info.
- Adam J. (2005). Catalytic conversion of biomass to produce higher quality liquid bio-fuels. *Department of Energy and Process Engineering*. Trondheim, Norwegian University of Science and Technology, Faculty of Engineering Science and Technology.
- ADEME (2008). "La récolte raisonnée des rémanents en forêt."
- ADEME, et coll. (1998). Résidus de culture: paille de céréales. Paris, ADEME, ITCF.
- Agreste (2007). "Récolte de bois et production de sciages en 2007."
- Agreste (2008). Déchets des industries agroalimentaires selon le type de déchet et la région en 2008, Agreste.
- Agreste (2010). "Les Productions végétales."
- Agreste (2011). DISAR.
- AILE (2007). Impacts environnementaux des TTCR.
- Akiyama T., et coll. (1993). "Measurements of heat transfer coefficient between gas and particles for a single sphere and for moving beds." *ISIJ International* **33**(6): 703-710.
- Alexandre S., et coll. (2012). Les usages non alimentaires de la biomasse.
- Andritz (2012a). Belt drying system for biomass and organic waste. Graz, Austria.
- Andritz (2012b). Torrefaction of biomass - The ACB process. Graz, Austria.
- Angus-Hankin C., et coll. (1995). "The transportation of fuelwood from forest to facility." *Biomass and Bioenergy* **9**(5): 191-203.
- Antal M.J., et coll. (2000). "Attainment of the Theoretical Yield of Carbon from Biomass." *Ind. Eng. Chem. Res.* **39**(11): 4024-4031.
- Antal M.J., et coll. (1996). "High-Yield Biomass Charcoal." *Energy & Fuels* **10**: 652-658.
- Aoki H., et coll. (1993). "Simulation of Transport Phenomena around the Raceway Zone in the Blast Furnace with and without Pulverized Coal Injection." *ISIJ International* **33**(6): 646-654.
- Asthana A. (2008). Modélisation mathématique de la formation des NOx et de la volatilisation des métaux lourds lors de l'incinération sur grille d'ordures ménagères. Nancy, France, INPL.
- Astier J. (2007). "Agglomération des minerais de fer." *Techniques de l'Ingénieur* **m7320v2**.
- Austin P.R., et coll. (1997). "A mathematical model of four phase motion and heat transfer in the blast furnace." *ISIJ International* **36**(5): 458-467.
- Babich A., et coll. (2002). "Choice of Technological Regimes of a Blast Furnace Operation with Injection of Hot Reducing Gases." *Revista de Metalurgia (Madrid)* **38**(4): 288-305.
- Babich A., et coll. (2010). "Charcoal Behaviour by Its Injection into the Modern Blast Furnace." *ISIJ international* **50**(1): 81-88.
- Babu B.V., et coll. (2003). "Modelling for pyrolysis of solid particle: kinetics and heat transfer effects." *Energy Conversion & Management* **44**: 2251-2275.
- Bahgat M., et coll. (2012). "Fundamental Study of Water-Gas Shift Reaction in Ironmaking Process." *Journal of Metallurgical Engineering* **1**(3): 63-69.
- Basha S.A., et coll. (2009). "A review on biodiesel production, combustion, emissions and performance." *Renewable and Sustainable Energy Reviews* **13**: 1628-1634.
- Beauchemin P., et coll. (2008). Emissions and air pollution controls for the biomass pellet manufacturing industry. Vancouver, Envirochem Services Inc.
- Benati E., et coll. (2011). "Simulation of olive pits pyrolysis in a rotary kiln plant." *Thermal science* **15**(1): 145-158.

- Bergman P.C.A., et coll. (2005). Torrefaction for entrained-flow gasification of biomass, ECN.
- Bergman P.C.A., et coll. (2005). Torrefaction for biomasse co-firing in existing coal-fired power stations, ECN.
- Birat J.P., et coll. (2008). "ULCOS program: a progress report in the Spring of 2008."
- Boerrigter H., et coll. (2006). Biomass Pre-treatment by Torrefaction. Third ThermalNET Meeting, Lille, France.
- Bonalde A., et coll. (2005). "Kinetic analysis of the iron oxide reduction using hydrogen-carbon monoxide mixtures as reducing agent." ISIJ International **45**(9): 1255-1260.
- Bradley (2006). European Market Study for BioOil.
- Branca C., et coll. (2003). "Global Kinetics of Wood Char Devolatilization and Combustion." Energy & Fuels **17**: 1609-1615.
- Branca C., et coll. (2003). "Kinetics of the isothermal degradation of wood in the temperature range 528–708 K." Journal of Analytical and Applied Pyrolysis **67**(2): 207-219.
- Branca C., et coll. (2005). "Devolatilization and Heterogeneous Combustion of Wood Fast Pyrolysis Oils." Industrial and Engineering Chemistry Research **44**(4): 799-810.
- Bridgwater A.V. (2003). "Renewable fuels and chemicals by thermal processing of biomass." Chemical Engineering Journal **91**: 87-102.
- BTG-BTL (2009). "2009 - Brochure BTG-BTL Pyrolysis oil."
- Buchwalder J., et coll. (2003). "Experience with using alternative reducing agents at blast furnace." Revue de Métallurgie **100**(3): 289-295.
- Burteaux M. (1991). "Haut Fourneau - Théorie." Techniques de l'Ingénieur.
- Burteaux M. (1992). "Haut fourneau - Conception et technologie." Techniques de l'Ingénieur m **7410**.
- Byron Smith R.J., et coll. (2010). "A Review of the Water Gas Shift Reaction Kinetics." International Journal of Chemical Reactor Engineering **8**.
- Cacot E., et coll. (2007). Etude de l'impact du prélèvement des rémanents en forêt, ADEME.
- CAL (2010). "Agriculture en Lorraine."
- Campos de Assis C. F. (2010). Caracterizacao de carvao vegetal para a sua injecao em altos fornos a carvao vegetal de pequeno porte.
- Campos Ferreira O., et coll. (2000). "Emission of Greenhouse Effect Gases in Vegetal Coal Production." Economy & Energy **20**.
- Carbo France (2010). "Données Carbo France."
- Caserini S., et coll. (2010). "LCA of domestic and centralized biomass combustion: The case of Lombardy (Italy)." Biomass and Bioenergy **34**: 474-482.
- Chaabane A., et coll. (2010). Réduction des émissions de CO₂ de la filière fonte par utilisation de biomasse: Procédés d'élaboration du charbon de bois. Nancy, Progepi.
- Chambre d'Agriculture de Lorraine (2009). Boues d'épuration d'origine industrielle en Lorraine.
- Channiwala S.A., et coll. (2002). "A unified correlation for estimating HHV of solid, liquid and gaseous fuels." Fuel **81**: 1051-1063.
- Chatterjee A. (1993). Beyond the blast furnace, CRC Press.
- Chen C.W. (2005). "Numerical analysis for the multi-phase flow of pulverized coal injection inside blast furnace tuyere." Applied Mathematical Modelling **29**(9): 871-884.
- Chen W.H., et coll. (2011). "An evaluation on improvement of pulverized biomass property for solid fuel through torrefaction." Applied Energy **88**: 3636–3644.
- Chen W.H., et coll. (2012). "Torrefied biomass in a drop tube furnace to evaluate their utility in blast furnace." Bioresource Technology **8**: 111-433.
- Chen W.H., et coll. (2009). "An evaluation on rice husks and pulverized coal blends using a drop tube furnace and a thermogravimetric analyzer for application to a blast furnace." Energy **34**: 1458-1466.

- Chiappini M., et coll. (2009). By-product allocation, a case study: blast-furnace slag. Proc. 3rd Int. Seminar on Society and materials, Freiburg, Germany.
- Commission Européenne (2008). "Arrêté du 31 mars 2008, relatif à la vérification et à la quantification des émissions déclarées dans le cadre du système d'échange de quotas d'émission de gaz à effet de serre pour la période 2008-2012."
- Dahmen N., et coll. (2012). "The bioliq® bioslurry gasification process for the production of biosynfuels, organic chemicals, and energy." Energy, Sustainability and Society **3**(2).
- Daniel Ballerini (2006). Les biocarburants: état des lieux, perspectives et enjeux du développement.
- Daniel J.S., et coll. (1998). "On the climate forcing of carbon monoxide." Journal of Geophysical Research: Atmospheres **103**(D11): 13249–13260.
- Daniel M. Kammen (2005). Review of Technologies for the Production and Use of Charcoal.
- Danloy G. (2008). Modelling of the blast furnace internal state with MOGADOR. 4th Ulcos seminar.
- Danloy G., et coll. (2001). A blast furnace model to optimize the burden distribution. Ironmaking Proceedings.
- Das S., et coll. (2002). "Non-coking coal to coke: use of biomass based blending material." Energy **27**: 405-414.
- de Lassat de Pressigny Y., et coll. (1995). Notice de présentation et d'utilisation du Modèle Mathématique du Haut Fourneau - Version PC, IRSID.
- Deglise X., et coll. (2004). "Bois énergie." Techniques de l'Ingénieur **BE 8 535**.
- Demirbas (2000). "Mechanisms of liquefaction and pyrolysis reactions of biomass." Energy Conversion & Management **41**: 633-646.
- Demirbaş (1999). "Properties of charcoal derived from hazelnut shell and the production of briquettes using pyrolytic oil." Energy **24**(2): 141-150.
- Demirbaş (2001). "Carbonization ranking of selected biomass for charcoal, liquid and gaseous products." Energy conversion and management **42**: 1229-1238.
- Derrière N., et coll. (2006). La forêt française en 2005. L'IF, IFN.
- Di Blasi C. (2008). "Modeling chemical and physical processes of wood and biomass pyrolysis." Progress in Energy and Combustion Science **34**: 47-90.
- Di Blasi C., et coll. (1999). "Product Distribution from Pyrolysis of Wood and Agricultural Residues." Industrial & Engineering Chemistry Research **38**: 2216-2224.
- Diebold J.P. (2000). A review of the chemical and physical mechanisms of the storage stability of fast pyrolysis bio-oils. Lakewood, Colorado.
- Diez M.A., et coll. (2009). Biomass derived products as modifiers of the rheological properties of coking coals. 1st Spanish National Conference on Advances in Materials Recycling and Eco - Energy, Madrid.
- Dong X. F., et coll. (2009). "Modelling of Multiphase Flow in Ironmaking Blast Furnace." Industrial & Engineering Chemistry Research **48**(1): 214-226.
- DRAAF (2012). Évaluation de la ressource bois énergie disponible en Lorraine. La Lorraine, terre d'énergies, Nancy.
- Du S.W., et coll. (2006). "Numerical prediction and practical improvement of pulverized coal combustion in blast furnace." International Communications in Heat and Mass Transfer **33**(3): 327-334.
- Dupont K., et coll. (2011). "Kinetic modelling of steam gasification of various woody biomass chars: Influence of inorganic elements." Bioresource Technology **102**: 9743-9748.
- Dynamotive (2009). Dynamotive BioOil - Information Booklet 2009.
- Dynamotive (2012). Dynamotive BioOil - Information Booklet 2012.
- ECN (2012). "Phyllis Database."
- EdF (1985). Cahier de l'AFSIA n°1 - Compte rendu des premières journées scientifiques de l'AFSIA. Nancy, Association Française de séchage dans l'Industrie et l'Agriculture.

- Engström F. (1999). Overview of the power generation of biomass. Gasification Technologies Conference 1999, San Francisco, California.
- ENSAIA (2010). La biomasse, une ressource énergétique pour la fonderie? Nancy.
- Ergun S. (1962). "Kinetics of the reactions of carbon dioxide and steam with coke." US government Printing Office.
- Erol M., et coll. (2010). "Calorific value estimation of biomass from their proximate analyses data." Renewable energy **35**: 170-173.
- Etudiants EMN (2010). Projet 2A: Groupe de travail sur les bio-huiles, Ecoles de Mines de Nancy.
- FAO (1963). Utilisation du charbon de bois dans les hauts-fourneaux.
- FAO (1983). Techniques simples de carbonisation. Rome.
- FAO (1985). "Industrial charcoal making."
- FAO (1990). Energy conservation in the mechanical forest industries. Rome.
- FAO (2008). Development of a sustainable charcoal industry. Zagreb, Croatie.
- FCBA (2010). <http://www.fcba.info.fr/>.
- Feilmayr C., et coll. (2004). "Reduction Behavior of Hematite to Magnetite under Fluidized Bed Conditions." ISIJ International **44**(7): 1125-1133.
- Fick G., et coll. (2013). "Using biomass for pig iron production: a technical, environmental and economical assessment." Waste and Biomass Valorization, in press.
- Flint P.J., et coll. (1992). "A fundamental study of raceway size in two dimensions." Metallurgical transactions B **23B**: 267-283.
- Francesco Cherubini (2010). "Crop residues as raw materials for biorefinery systems – A LCA case study." Applied Energy **87**(1): 47-57.
- Fraud B., et coll. (2012). ONF Energie et Forêts et Bois de l'Est: l'offre de fourniture des producteurs en plaquette forestières. La Lorraine, terre d'énergie, Nancy.
- Frigerio S., et coll. (2008). "Estimation of gas phase mixing in packed beds." Combustion and Flame **153**: 137-148.
- FSC (2012). "www.fsc-france.fr."
- Ginisty C., et coll. (2007). Biomasse forestière disponible pour de nouveaux débouchés énergétiques et industriels, Direction générale de la forêt et des affaires rurales - DGFAR - CEMAGREF.
- GIPEBLOR, et coll. (2006). "Approche de la valorisation actuelle des produits connexes de la filière bois forêt en Lorraine - Situation actuelle et perspectives." from <http://www.gipeblor.com/donnees/cms/pdf/TELECHARGEMENT/9-approche-valorisation-des-produits-connexes.pdf>.
- Godin B., et coll. (2010). "Détermination de la cellulose, des hémicelluloses, de la lignine et des cendres dans diverses cultures lignocellulosiques dédiées à la production de bioéthanol de deuxième génération." Biotechnology, Agronomy, Society and Environment **14**: 549-560.
- Gomez C., et coll. (2009). "Influence of Secondary Reactions on the Heat of Pyrolysis of Biomass." Industrial & Engineering Chemistry Research **48**: 10222-10233.
- Granström K. (2003). "Emissions of monoterpenes and VOCs during drying of sawdust in a spouted bed." Forest products journal **53**(10): 48-55.
- Gravalos I., et coll. (2008). "Energetic Study on Animal Fats and Vegetable Oils Using Combustion Bomb Calorimeter." Journal of Agricultural Machinery Science **4**(1): 69-74.
- Grigore M. (2007). Factors influencing coke gasification with carbon dioxide, University of New South Wales.
- Grigore M., et coll. (2006). "Influence of mineral matter on coke reactivity with carbon dioxide." ISIJ International **46**(4): 503-512.
- Grønli M. (2002). Industrial production of charcoal, INTEF Energy Research.

- Gu M., et coll. (2010). "Three-dimensional simulation of the pulverized coal combustion inside blast furnace tuyere." Applied Mathematical Modelling **34**: 3536-3546.
- Guest G., et coll. (2011). "Life Cycle Assessment of Biomass-based Combined Heat and Power Plants." Journal of Industrial Ecology **15**(6): 908-921.
- Guivarch A. (2001). Valeur fertilisante à court terme du phosphore des boues de stations d'épuration urbaines. Nancy, INPL.
- Guo B., et coll. (2005). "Three-dimensional simulation of flow and combustion for pulverised coal injection." ISIJ International **45**(9): 1272-1281.
- Guo Y.C., et coll. (2003). "Numerical studies of pulverized coal combustion in a tubular coal combustor with slanted oxygen jet." Fuel **82**: 893-907.
- Gupta (2003). "Woodchar as a sustainable reductant for ironmaking in the 21st century." Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review **24**(3-4): 203.
- Gupta G.S., et coll. (2006). "Comparison of blast furnace raceway size with theory." ISIJ International **46**(2): 195-201.
- Gupta R. C., et coll. (2001). "Composite pre-reduced pellet quality as affected by reductant reactivity." ISIJ International **41**(2): 9-12.
- Hamelinck C (2008). "Technical specification: greenhouse gas calculator for biofuel."
- Hammond J., et coll. (2011). "Prospective life cycle carbon abatement for pyrolysis biochar systems in the UK." Energy Policy **39**: 2646-2655.
- Hanrot F., et coll. (2009). CO2 mitigation for steelmaking using charcoal and plastics wastes as reducing agents and secondary raw materials. 1st Spanish National Conference on Advances in Materials Recycling and Eco - Energy, Madrid.
- Harris D.J., et coll. (1989). Intrinsic reactivity of char and coke. Symposium on the fundamentals of gasification, Dallas, TX, USA.
- Hasler P., et coll. (1999). "Gas cleaning for IC engine applications from fixed bed biomass gasification." Biomass and Bioenergy **16**: 385-395.
- He F., et coll. (2006). "Investigation on calorific requirement of biomass pyrolysis using TG-DSC." Energy conversion and management **47**(15-16): 2461-2469.
- Helle H., et coll. (2009). "Mathematical Optimization of Ironmaking with Biomass as Auxiliary Reductant in the Blast Furnace." ISIJ International **49**(9): 1316-1324.
- Henrich E., et coll. (2009). "Cost estimate for biosynfuel production via biosyncrude gasification." Biofuels, Bioproducts and Biorefinery **3**: 28 - 41.
- Heydenrych M.D. (2001). Modelling of rotary kilns. Enschede, Netherlands, Université de Twente.
- Hillier J., et coll. (2010). "Improved Method for the Determination of Kinetic Parameters from Non-isothermal Thermogravimetric Analysis (TGA) Data." Energy & Fuels **24**: 2841-2847.
- Horne P.A., et coll. (1996). "Influence of temperature on the products from the flash pyrolysis of biomass." Fuel **9**: 1051-1059.
- Hutny W.P., et coll. (1991). "Fundamentals of coal combustion during injection into a blast furnace." Progress in Energy and Combustion Science **17**(4): 373-395.
- IEA (2007). Sectoral approaches to greenhouse gas mitigation - Exploring Issues for Heavy Industry. Paris, International Energy Agency.
- IFN (2009). La forêt française, les résultats issus des campagnes d'inventaires 2005, 2006 et 2007.
- IFN, et coll. (2004). Evaluation du potentiel Bois Energie.
- Iosif A.M. (2009). Modélisation physico-chimique de la filière classique de production d'acier pour l'analyse de l'Inventaire de Cycle de Vie. Science et Ingénierie des Matériaux. Nancy, France, INPL.
- Iwanaga Y., et coll. (1989). "Mathematical Model Analysis for Oxidation of Coke at High Temperature." ISIJ International **29**(1): 43-48.

- Jess A., et coll. (2010). "Influence of mass transfer on thermogravimetric analysis of combustion and gasification reactivity of coke." Fuel **89**: 1541-1548.
- Joint Society on Iron and Steel Basic Research (1987). Blast Furnace Phenomena and Modelling. London.
- Jolliet O., et coll. (2003). "IMPACT 2002+: A new life cycle impact assessment methodology." International Journal of Life Cycle Assessment **8**(6): 324-330.
- Jolliet O., et coll. (2005). Analyse du cycle de vie - Comprendre et réaliser un écobilan. Lausanne.
- Kammen D.M., et coll. (2005). Review of Technologies for the Production and Use of Charcoal, Renewable and Appropriate Energy Laboratory.
- Kawakami M., et coll. (2004). "Reaction kinetics of coke and some carbonaceous materials with CO₂ and coke strength after reaction." Steel Research International **75**(2): 93-98.
- Kawakami M., et coll. (2004). "Micro Pore Structure and Reaction Rate of Coke, Wood Charcoal and Graphite with CO₂." ISIJ International **44**(12): 2018-2022.
- Khouya A., et coll. (2009). "Détermination des courbes caractéristiques de séchage de trois espèces de bois." Revue des Energies Renouvelables **12**(1): 87-98.
- Kiel J.H.A., et coll. (2008). BO₂-technology for biomass upgrading into solid fuel – pilot-scale testing and market implementation. 16th European Biomass Conference & Exhibition, Valencia, Spain.
- Kiel J. (2011). ECN's torrefaction-based BO₂-technology: from pilot to demo. Central European Biomass Conference, Graz, Austria.
- Kleinschmidt C. (2011). Overview of international developments in torrefaction. Central European Biomass Conference 2011, Graz, Austria.
- Könemann J.W., et coll. (2007). OLGA tar removal - 4 MWt commercial demonstration biomass gasification in France. Gasification technology Conference 2007, San Francisco.
- Koufopoulos C.A., et coll. (1991). "Modelling of the pyrolysis of biomass particles. Studies on kinetics, thermal and heat transfer effects." The Canadian Journal of Chemical Engineering **69**(4): 907-915.
- Lal R. (2005). "World crop residues production and implications of its use as a biofuel." Environment International **31**: 575- 584.
- Landälv I. Pulp Mills - The optimum location for biorefineries. Gasification Technologies Conferend 2009, Colorado Springs.
- Laurendeau N.M. (1979). "Heterogeneous kinetics of coal char gasification and combustion." Progress in Energy and Combustion Science A: 221-270.
- Le Guen L., et coll. (2011). "Drying and Heating Modelling of Granular Flow: Application to the Mix-Asphalt Processes." Journal of Applied Fluid Mechanics **4**(2): 71-80.
- Leclerc M.C. (2003). Canne de maïs ensilée, L'institut de l'élevage.
- Lepez O. (2011). "Données ETIA."
- Li J., et coll. (2007). "The Reduction of Wustite with High Oxygen Enrichment and High Injection of Hydrogenous Fuel." ISIJ International **47**(8): 1097-1101.
- Lipinsky E.S., et coll. (2002). "Enhanced Wood Fuels via Torrefaction." Fuel Chemistry Division Preprints **47**(1): 408-410.
- Lovel R., et coll. (2007). "Iron ore sintering with charcoal." Mineral Processing and Extractive Metallurgy **116**(2): 85-92.
- Lu L., et coll. (2001). "Coal char reactivity and structural evolution during combustion— Factors influencing blast furnace pulverized coal injection operation." Metallurgical and Materials Transactions B **32**(5): 811-820.
- Lucena D.A., et coll. (2008). "Aglomeración de Moinha de Carvão Vegetal e sua Possível Aplicação em Alto-Forno e Geração de Energia." Tecnologia em Metalurgia e Materiais **4**(4): 1-6.

- Machado J. G. M. S., et coll. (2010). "Reactivity and Conversion Behaviour of Brazilian and Imported Coals, Charcoal and Blends in view of their Injection into Blast Furnaces." Steel Research International **81**(1): 9-16.
- Macphee J.A., et coll. (2009). "Possible CO₂ mitigation via addition of charcoal to coking coal blends." Fuel Processing Technology **90**: 16-20.
- Månsson (2008). "Volatile organic compounds emitted from hardwood drying as a function of processing parameters." International Journal of Environmental Science and Technology **5**(2): 141-148.
- Manyà J.J., et coll. (2003). "Kinetics of Biomass Pyrolysis: a Reformulated Three-Parallel-Reactions Model." Industrial & Engineering Chemistry Research **42**(3): 434-441.
- Marias F. (2003). "A model of a rotary kiln incinerator including processes occurring within the solid and the gaseous phases." Computers and Chemical Engineering **27**: 813-825.
- Marias F., et coll. (2005). "Modelling of a rotary kiln for the pyrolysis of aluminium waste." Chemical Engineering Science **60**: 4609-4622.
- Maschio G. (1992). "Pyrolysis, a promising route for biomass utilization." Bioresource Technology **42**: 219-231.
- Masero J. (2010). Déchets des industries agroalimentaires - une bonne gestion des déchets organiques. Agriste Primeur. **245**.
- Mathieson J.G., et coll. (2011). Potential for the use of biomass in the iron and steel industrie. Chemeca 2011, Sydney, Australia.
- Mathieson J.G., et coll. (2005). Toward an understanding of coal combustion in blast furnace tuyere injection. International Symposium on Utilisation of coal and biomass, Newcastle, Australie.
- Matsumura T., et coll. (2008). "Carbonization behaviour of woody biomass and resulting metallurgical coke properties." ISIJ International **48**(5): 572-577.
- Mauviel G., et coll. (2009). Procédés de Gazéification et de Pyrolyse de la Biomasse. Conversion Thermochimique de la Biomasse, Nancy, France.
- McDonald A. G., et coll. (2002). "Assessment of air emissions from industrial kiln drying of Pinus radiata wood." European Journal of Wood and Wood Products **60**(3): 181-190.
- Ménard Y. (2003). Modelisation de l'incinération sur grille d'ordures ménagères et approche thermodynamique du comportement des métaux lourds. Science et Ingénierie des Matériaux. Nancy, INPL.
- Mesa-Perez J.M., et coll. (2007). The bioware - Unicamp partnership in the development of technologies for the pyrolysis of biomass, Bioware Tecnologia.
- Mills K (2011). The estimation of slag properties. Department of Materials, Imperial College, London.
- Ministère de l'agriculture (2012). "DISAR."
- Ministère de l'écologie (2010). Site Gouvernemental du développement durable.
- Ministère de l'économie de l'industrie et de l'emploi (2008). Le bois en chiffres, 2008.
- Minitec (2012). Equipment Profile - Mini Blast Furnace.
- Miura M., et coll. (2004). "Rapid pyrolysis of wood block by microwave heating." Journal of Analytical and Applied Pyrolysis **71**: 187-199.
- Mohan D., et coll. (2006). "Pyrolysis of Wood/Biomass for Bio-oil: A Critical Review." Energy & Fuels **20**: 848-889.
- Moletta R. (2008). "Méthanisation de la biomasse." Techniques de l'Ingénieur Bio **5 100**.
- Nadeau J.P., et coll. (1995). Séchage: des processus physiques aux procédés industriels. Paris, Lavoisier.
- Neufeld P.D., et coll. (1972). "Empirical Equations to Calculate 16 of the Transport Collision Integrals $\Omega(l, s)^*$ for the Lennard-Jones (12-6) Potential." Journal of Chemical Physics **57**.
- Ngô C., et coll. (2011). "La biomasse." Omniscience.

- Nijskens P. (2007). Fiche technique: le miscanthus, Valbiom.
- Nogami H., et coll. (2004). "Exergy Analysis of Charcoal Charging Operation of Blast Furnace." ISIJ International **44**: 1646-1652.
- Nogami H., et coll. (2004). "Raceway design for the innovative blast furnace." ISIJ International **44**(12): 2150-2158.
- Norgate T.E., et coll. (2006). "Assessing the environmental impact of metal production processes." Journal of Cleaner Production **15**: 838-848.
- Norgate T.E., et coll. (2009). "Environmental and Economic Aspects of Charcoal Use in Steelmaking." ISIJ International **49**(4): 587-595.
- Numazawa S. (2000). Etude de faisabilité d'une usine de fabrication de charbon de bois en procédé sous pression pour la région du Paragominas. **PhD**.
- Ooi T.C., et coll. (2011). "The effect of charcoal combustion on iron-ore sintering performance and emission of persistent organic pollutants." Combustion and Flame **158**(5): 979-987.
- Otwell L.P., et coll. (2000). "HAPs release from wood drying." Environmental Science and Technology **34**(11): 2280-2283.
- Pach M., et coll. (2002). Torrefied Biomass a Substitute for Wood and Charcoal. 6th Asia-Pacific International Symposium on Combustion and Energy Utilization, Kuala Lumpur.
- Pang B.Y., et coll. (1996). "Dependence of the intrinsic reactivity of metallurgical cokes to carbon dioxide on extent of reaction." Thirteenth Annual International Pittsburg Coal Conference Proceedings **1**: 506-511.
- Park W.C., et coll. (2010). "Experimental and theoretical investigation of heat and mass transfer processes during pyrolysis." Combustion and Flame **157**: 481-494.
- Patisson F., et coll. (2000). "Coal pyrolysis in a rotary Kiln: Part II. Overall Model of the Furnace." Metallurgical and Materials Transactions B **31B**: 391-402.
- PEFC (2010).
- Pelaez-Samaniego M.R., et coll. (2008). "Improvements of Brazilian carbonization industry as part of the creation of a global biomass economy." Renewable and Sustainable Energy Reviews **12**: 1063-1086.
- Pennise D. M., et coll. (2001). "Emissions of greenhouse gases and other airborne pollutants from charcoal making in Kenya and Brazil." Journal of Geophysical Research **106**(24): 143-155.
- Piketty M., et coll. (2009). "Assessing land availability to produce biomass for energy: the case of Brazilian charcoal for steel making." Biomass & Bioenergy **33**: 180-190.
- Poos (1991). "Possibilities and Problems of the Injection of High Pulverized Coal Rates in the Blast Furnace." Stahl und Eisen **111**(8): 69-75.
- Prakash N., et coll. (2008). "Kinetic Modeling in Biomass Pyrolysis – A Review." Journal of Applied Sciences Research **4**(12): 1627-1636.
- Prevot G. (2010). Valorisation Energétique Des Déchets De Biomasse D'origine Végétale, ENVALYS.
- Prins M.J., et coll. (2006). "Torrefaction of wood: Part 1. Weight loss kinetics." Journal of Analytical and Applied Pyrolysis **77**: 28-34.
- PROSPECTIVE (2010). "Le marché des engrais minéraux: état des lieux, perspectives et pistes d'action, du Ministère de l'alimentation, de l'agriculture et de la pêche."
- Radmanesh R., et coll. (2006). "Biomass gasification in a bubbling fluidized bed reactor: experiments and modeling, environmental and energy engineering." Environmental and Energy Engineering **52**(12): 4258-4272.
- Raffelt K., et coll. (2006). "The BTL2 Process of Biomass Utilization Entrained-Flow Gasification of Pyrolyzed Biomass Slurries." Applied Biochemistry and Biotechnology **129**: 153 - 164.

- Rajneesh S., et coll. (2004). "Prediction of raceway size in blast furnace from two dimensional experimental correlations." ISIJ International **44**(8): 1298-1307.
- Ranz W.E., et coll. (1952). "Evaporation from drops - Part I & II." Chemical engineering Progress **48**(3): 141-147.
- Ranzani Da Costa A. (2011). La réduction du minerai de fer par l'hydrogène: étude cinétique, phénomène de collage et modélisation. Nancy, Université de Lorraine.
- Rasi S., et coll. (2007). "Trace compounds of biogas from different biogas production plants." Energy **32**(8): 1375-1380.
- Rasul M.G., et coll. (2007). "Modelling and analysis of blast furnace performance for efficient utilization of energy." Applied Thermal Engineering **27**: 78-88.
- Reina J., et coll. (1998). "Kinetic Study of the Pyrolysis of Waste Wood." Industrial & Engineering Chemistry Research **37**(11): 4290-4295.
- Renaud (2011). Innovations dans la gestion des marchés: les contrats d'approvisionnement. Forêt-bois: quelles ressources pour quels produits? Nancy.
- Repellin V., et coll. (2010a). "Energy requirement for fine grinding of torrefied wood." Biomass and Bioenergy **34**(7): 923-930.
- Repellin V., et coll. (2010b). "Modelling anhydrous weight loss of wood chips during torrefaction in a pilot kiln." Biomass and Bioenergy **34**: 602-609.
- Ribbenhed M., et coll. (2007). "CO₂ emission reduction costs for iron ore-based steelmaking in Sweden." Journal of Cleaner Production **16**: 125-134.
- Roberts K.G., et coll. (2010). "Life Cycle Assessment of Biochar Systems: Estimating the Energetic, Economic, and Climate Change Potential." Environmental Science and Technology **44**(2): 827-833.
- Rousset P., et coll. (2006). "Choix d'un modèle de pyrolyse ménagée du bois à l'échelle de la microparticule en vue de la modélisation macroscopique." Annals of Forest Science **63**(2): 1-17.
- Ryu C., et coll. (2007). "Waste pyrolysis and generation of storable char." International journal of energy research **31**: 177-191.
- Saddawi A., et coll. (2009). "Kinetics of the Thermal Decomposition of Biomass." Energy & Fuels **24**: 1274-1282.
- Sadhukhan A.K., et coll. (2008). "Modelling and experimental studies on pyrolysis of biomass particles." Journal of Analytical and Applied Pyrolysis **81**: 183-192.
- SAIL (2008). "Coke ovens - sinter - Blast Furnace - Basic Oxygen Furnace route."
- Sakurovs R. (2010). Renewables in the furnace, CSIRO.
- Sami M., et coll. (2001). "Co-firing of coal and biomass fuel blends." Progress in energy and combustion science **27**(2): 171-214.
- Schultmann F., et coll. (2004). "Flowsheeting-based simulation of recycling concepts in the metal industry." Journal of Cleaner Production **12**: 737-751.
- SG PAM (2009-2011). "Données internes SG PAM."
- Shafizadeh F., et coll. (1977). Thermal deterioration of wood. ACS Symposium Series.
- Shah N., et coll. (1992). "Wood-to-charcoal conversion in a partial-combustion kiln: An experimental study to understand and upgrade the process." Fuel **71**: 955-962.
- Shaw I. (2008). ArcelorMittal's Energy Strategy. Energy 2100. Toronto, Canada.
- Shen Y.S., et coll. (2011). "Three-dimensional modelling of in-furnace coal/coke combustion in a blast furnace." Fuel **90**(2): 728-738.
- Siemens (2013). Turbines à vapeur pré-étudiées - Toute la gamme jusqu'à 12 MW.
- Smith K. R., et coll. (1999). Greenhouse gases from small-scale combustion in developing countries: Charcoal-making kilns in Thailand, U.S. Environmental Protection Agency.
- Söderman J., et coll. (2009). "Future potential for biomass use in blast furnace ironmaking." Computer Aided Chemical Engineering **26**: 567-571.

- Sofialidis D., et coll. (2005). "Modelling low-temperature carbonisation of solid fuels in a heated rotary kiln for clean fuel production." Fuel **84**: 2211-2221.
- Sohn H.Y. (1978). "The law of additive reaction times in fluid-solid reactions." Metallurgical transactions **9B**: 89-96.
- Solinen, et coll. (2012). Environmental Product Declaration - Methodological Guide for Construction Products (version 3). Paris.
- Sourie J.C. (2006). Les pailles de céréales, ressources, valorisations, obstacles à leur mobilisation. Chimie verte: questions à la recherche, Paris.
- Srinivasan N.S., et coll. (1977). "Studies on the reduction of Hematite by Carbon." Metallurgical transactions B **8B**: 175-178.
- Stahl K., et coll. (1999). Progress report: Varnamo biomass gasification plant. Gasification Technologies Conference 1999, San Francisco, California.
- Stewart G.W. (2004). Bio-oil Commercialization Plan, Cole Hill Associates.
- Story S.R., et coll. (2000). "Kinetics of Oxidation of Carbonaceous Materials by CO₂ and H₂O between 1300 °C and 1500 °C." Metallurgical and materials transactions B **31**(1): 43-54.
- Strezov V., et coll. (2007). "Fundamental aspects of biomass carbonisation." Journal of Analytical and Applied Pyrolysis **79**: 91-100.
- Stupak I., et coll. (2007). "Sustainable utilisation of forest biomass for energy - Possibilities and problems: Policy, legislation, certification, and recommendations and guidelines in the Nordic, Baltic, and other European countries." Biomass & Bioenergy **31**: 666-684.
- Sule I.O. (2012). Torrefaction Behaviour of Agricultural Biomass. Applied Science in Engineering. Guelph, University of Guelph.
- Suopajarvi H., et coll. (2012). "Effects of biomass use in integrated steel plant - Gate-to-gate life cycle inventory method." ISIJ International **52**(5): 779-787.
- Takahashi K., et coll. (1996). "Burden Descending behaviour with renewable of deadman in a two dimensional cold model of blast furnace." ISIJ International **36**(11): 1354-1359.
- Takeda K., et coll. (1997). "Integrated mathematical model of pulverised coal combustion in blast furnace." ISIJ International **37**(5): 432-440.
- Teodoro da Costa R., et coll. (2006). "Charcoal, renewable energy source for steelmaking process." La Revue de Métallurgie-CIT: 203-209.
- Tichanek F. (2008). "Contribution to determination of coal grindability using hardgrove index method." Geoscience Engineering **1**: 27-32.
- Turkdogan E.T., et coll. (1971). "Gaseous reduction of iron oxides: part I. Reduction of hematite in hydrogen." Metallurgical transactions **2**: 3175-3188.
- U.S. EPA (1995). Compilation of Air Pollution Emission Factors. Research Triangle Park, N.C., U.S. Environmental Protection Agency. **1**.
- UNECE, et coll. (2011). State of Europe's Forests 2011: the MCPFE report on sustainable forest management in Europe. Aas, Norway.
- UNIFA "Exporter les pailles, conséquences pour la fertilisation."
- Unifa (2009). "Exporter les pailles, conséquences pour la fertilisation." Ferti-pratiques.
- United Nations Centre for Human Settlements (1993). "Application of Biomass Energy Technologies."
- UOP, et coll. (2008). Proven pyrolysis oil technology for high quality fuels with a reduced carbon footprint.
- US DoA (1999). Air Drying of Lumber. Madison, WI, U.S. Department of Agriculture, Forest Service, Forest Products Laboratory.
- Van Caneghem J., et coll. (2010). "Improving eco-efficiency in the steel industry: the ArcelorMittal Gent case." Journal of Cleaner Production **18**: 807-814.
- Vassilev S.V., et coll. (2010). "An overview of the chemical composition of biomass." Fuel Processing Technology **89**: 913-933.

- Verhoeff F., et coll. (2011). ECN Torrefaction technology heading for demonstration. European Biomass Conference and Exhibition, Berlin, Germany.
- Ward A.J., et coll. (2008). "Optimisation of the anaerobic digestion of agricultural resources." Bioresource Technology **99**: 7928-7940.
- Werner U., et coll. (1989). Biogas plants in animal husbandry. Eschborn, GTZ.
- Wilke C.R., et coll. (1955). "Estimation of Diffusion Coefficients for Gases and Vapors." Industrial and Engineering Chemistry **47**(6): 1253-1257.
- Wing K., et coll. (2010). Direct injection of biofuel in blast furnace ironmaking. AISTech 2010.
- Wing Ng K., et coll. (2010). Direct injection of biofuel in blast furnace ironmaking. AISTech 2010.
- Wing Ng K., et coll. (2012). "Combustibility of Charcoal for Direct Injection in Blast Furnace Ironmaking." Association for Iron & Steel Technology.
- Woolf D., et coll. (2010). "Sustainable biochar to mitigate global climate change." Nature communications **1**.
- Worldsteel Association (2008). "Fact sheet - Energy."
- Wurzenberger J.C., et coll. (2002). "Thermal conversion of biomass: Comprehensive reactor and particle modeling." AIChE Journal **48**(10): 2398-2411.
- Yaman S., et coll. (2001). "Fuel briquettes from biomass-lignite blends." Fuel Processing Technology **72**(1): 1-8.
- Yamaoka H., et coll. (2003). "Prediction Model of Coke Strength after Gasification Reaction." ISIJ International **43**(3): 338-347.
- Yang H., et coll. (2007). "Characteristics of hemicellulose, cellulose and lignin pyrolysis." Fuel **86**(12-13): 1781-1788.
- Yin C., et coll. (2010). "Co-firing straw with coal in a swirl-stabilized dual-feed burner: Modelling and experimental validation." Bioresource Technology **101**: 4169-4178.
- Yu K.O., et coll. (1981). "Mathematical simulation of direct reduction." Metallurgical transactions **12B**: 111-120.
- Zaïmi S.A., et coll. (2000). "Sophisticated Multi-phase Multi-flow Modeling of the Blast Furnace." ISIJ International **40**: 322-331.
- Zheng A., et coll. (2012). "Effect of torrefaction temperature on product distribution from two-staged pyrolysis of biomass." Energy & Fuels **26**: 2968-2974.

IX. Table des figures

Figure 1 – Processus de production des tuyaux de fonte, par la filière d'élaboration de fonte par première fusion	5
Figure 2 – Schéma du principe de fonctionnement de la chaîne d'agglomération.....	6
Figure 3 – Représentation d'une unité de cokerie et de ses principales zones (SAIL 2008).	8
Figure 4- Schéma des zones physiques d'un haut fourneau et des principaux entrants et sortants	9
Figure 5 – Schéma des différentes zones thermiques du haut fourneau et principales réactions associées.....	10
Figure 6 – a. Vitesse de gazéification de coke, de charbon de bois et de graphite avec CO ₂	17
Figure 7 : Structure de la cellulose	28
Figure 8 : Principaux composants de l'hémicellulose	28
Figure 9 : Exemple d'une partie de structure de lignine de boulot.....	29
Figure 10 : Sécheur à tambour rotatif	32
Figure 11 : Sécheur à bande en fonctionnement à contre-courant	33
Figure 12 : courbe caractéristique de séchage de bois de hêtre (en vapeur surchauffée) (EdF 1985)	34
Figure 13 : Diagramme de Van Krevelen pour différents types de combustibles, l'évolution de la composition d'une biomasse au cours d'une pyrolyse est représentée par la flèche rouge.	36
Figure 14 : Détail des pores d'un charbon de bois montrant des dépôts de carbone graphitique sur leur surface (Miura M. et coll. 2004).	37
Figure 15 – Schéma du principe de fonctionnement des trois types de fours à carbonisation... ..	37
Figure 16 : Exemple de fours traditionnels, une meule en terre à gauche et un four dit en « nid d'abeille » à droite (FAO 2008).....	38
Figure 17 : Schéma d'un four Missouri (FAO 2008)	38
Figure 18 : Couple de fours VMR en fonctionnement batch : les gaz de pyrolyse de l'un servent à chauffer l'autre (Chaabane A. et coll. 2010).....	38
Figure 19 : Four vertical continu, procédé Lambiotte (FAO 1985)	39
Figure 20 : Diagramme de Van Krevelen de la composition élémentaire des biochars de bois de pin, baldingère faux-roseau et de déchets communs (Ryu C. et coll. 2007)	40
Figure 21 : Amélioration de la broyabilité avec la torréfaction (Boerrigter H. et coll. 2006)....	44
Figure 22 : Evolution du rendement massique en fonction de la température/durée de torréfaction de peuplier (Prins M.J. et coll. 2006)	45
Figure 23: Différentes étapes de la torréfaction de biomasse (Bergman P.C.A. et coll. 2005)..	47
Figure 24 : Schéma du procédé Lurgi « twin-screw mixing reactor » pour la production de bio-slurry (Raffelt K. et coll. 2006).....	52
Figure 25 : Exemple d'un réacteur de gazéification à lit fluidisé.....	53
Figure 26 : Flux de matière et étapes de la digestion anaérobie de la matière organique (Moletta R. 2008)	55
Figure 27 : Répartition surfacique des peuplements forestiers en fonction de la classe d'accessibilité et par interrégion (Ginisty C. et coll. 2007).....	59
Figure 28 : Schéma des compartiments de l'arbre (IFN et coll. 2004)	61
Figure 29 – Brassage des particules de biomasse (points gris) par les releveurs du tambour, dissociant les particules de biomasses en deux fractions : une partie dans le fond du réacteur formant un lit, la seconde s'écoulant depuis les releveurs.	73
Figure 30 – Tranche élémentaire du réacteur rotatif pour le calcul des bilans massiques et énergétiques	74
Figure 31 – Trois exemples de mécanismes cinétiques de décomposition de la biomasse en une étape avec 1, 2 ou 3 réactions en parallèle.....	76

Figure 32 – Mécanisme cinétique de décomposition de la biomasse en trois étapes proposé par (Branca C. et coll. 2003).....	77
Figure 33 – Mécanisme cinétique de décomposition de la biomasse en deux étapes proposé par (Branca C. et coll. 2003).....	77
Figure 34 –Analyse thermique différentielle de la décomposition des trois principaux composants de la biomasse (Cellulose, Hémicellulose et Lignine).....	79
Figure 35 – Principe technologique du sécheur à bande	83
Figure 36 – Flux et volume de contrôle considérés dans le lit de biomasse.....	84
Figure 37 – Vitesse de séchage réduite en fonction de l’humidité réduite pour du bois de hêtre (Khouya A. et coll. 2009).	85
Figure 38 – Présentation de l’unité de traitement globale	88
Figure 39 – Principales zones physiques du haut fourneau.....	93
Figure 40 – Décomposition de la zone de préparation, 15 blocs hiérarchiques dont les flux entrants et sortants de charges solides et gazeuses sont reliés pour modéliser un réacteur global à écoulement piston à contre-courant.	94
Figure 41 – Contenu d’un bloc unitaire de la zone de préparation.....	94
Figure 42 – Cotes d’un haut fourneau de SG PAM à Pont-à-Mousson (NB : échelle non respectée)	95
Figure 43 – Structure Aspen Plus de l’opération de réduction réalisé dans un sous-bloc.....	96
Figure 44 – Diagramme de Chaudron	97
Figure 45 – Enthalpies des réactions de réduction des différents oxydes par CO (R1, R2 et R3)	98
Figure 46 – Schéma du modèle cinétique de réduction de boulettes d’hématite élaboré par Ranzani Da Costa (2011) : a – évolution de la morphologie au cours de la transformation à l’échelle de la boulette, b – Mécanismes des réactions à l’échelle des grains et à l’échelle des cristallites.	99
Figure 47 – Diagramme d’équilibre de Boudouard.....	101
Figure 48 – Enthalpie (en bleu) et énergie de Gibbs (en rouge) de la réaction de gaz à l’eau en fonction de la température (base de données thermodynamique du logiciel COACH).....	103
Figure 49 – Schéma des principaux éléments de construction d’un haut fourneau sur Aspen Plus.....	105
Figure 50 – Vue en coupe des différents éléments constituant la zone d’une tuyère. La zone décrite dans le modèle est représentée en rouge.	107
Figure 51 – Schéma de la zone tourbillonnaire (Burteaux M. 1991)	110
Figure 52 – Courbes de températures des gaz (en bleu) et des solides/liquides (en rouge) calculées par le modèle. Le point 0 m correspond au gueulard, et le point à 20,6 m les tuyères.....	124
Figure 53 – Evolution des fractions molaires des différents oxydes de fer au cours de la descente des charges dans le haut fourneau.....	124
Figure 54 – Evolution de la concentration en CO le long du haut fourneau (en rouge), ainsi que des concentrations à l’équilibre pour les réactions de Boudouard (en bleu) et de réduction de la wüstite (en vert).	125
Figure 55 - Arbre des processus retenus et représentation des limites du système (représentées en pointillés bleus).	138
Figure 56 – Répartition des émissions de gaz à effet de serre sur l’ensemble du système, par poste et pour les 6 scénarios. Méthode de calcul utilisée : CML 2001.....	148
Figure 57 – Répartition des émissions de gaz à effet de serre sur l’ensemble du système, par poste et pour les 6 scénarios. Méthode de calcul utilisée : Impact 2002+.....	148
Figure 58 – Total des émissions de GES (hors CO ₂ biogénique) pour les 6 scénarios (gauche) et la réduction des émissions correspondante pour les 5 cas de substitution de coke (par rapport au cas 100 % coke).....	150

Figure 59 – Répartition des besoins en énergies non-renouvelables par poste pour chaque scénario, calculée à partir des méthodes CML 2001 (gauche) et Impact 2002+ (droite)	152
Figure 60 – Répartition du potentiel de formation d’ozone par oxydation photochimique par poste et pour chaque scénario, calculée à partir des méthodes CML (gauche) et Impact 2002+ (droite)	153
Figure 61 – Répartition du potentiel d’appauvrissement de la couche d’ozone par poste et pour chaque scénario, calculé à partir des méthodes CML 2001 (gauche) et Impact 2002+ (droite)	154
Figure 62 – Répartition du potentiel d’acidification par poste et pour chaque scénario (méthode CML 2001)	155
Figure 63 – Répartition du potentiel d’acidification terrestre (gauche) et aquatique (droite) par poste et pour chaque scénario (méthode Impact 2002+)	155
Figure 64 – Répartition du potentiel d’eutrophisation par poste et pour les méthodes CML 2001 (gauche) et Impact 2002+ (droite)	156
Figure 65 – Répartition du potentiel d’écotoxicité terrestre par poste et pour chaque scénario (méthodes CML 2001 à gauche et Impact 2002+ à droite)	157
Figure 66 – Répartition du potentiel d’écotoxicité aquatique par poste et pour chaque scénario (méthode CML 2001, pour l’eau douce à gauche et pour l’eau de mer à droite)	157
Figure 67 – Répartition du potentiel d’écotoxicité aquatique par poste et pour chaque scénario (méthode Impact 2002+).....	158
Figure 68 – Répartition de l’impact sur la toxicité humaine par poste et pour chaque scénario (méthode CML 2001)	159
Figure 69 – Répartition des émissions de substances non-cancérogènes par poste et pour chaque scénario (méthode Impact 2002+)	159
Figure 70 – Répartition des émissions de substances cancérogènes par poste et pour chaque scénario (méthode Impact 2002+)	160
Figure 71 – Répartition de l’occupation de sols par poste et pour chaque scénario (méthode Impact 2002+).....	160
Figure 72 – Caractérisation des dommages (normalisés pour l’Europe de l’Ouest) des 6 scénarios, à partir de la méthode Impact 2002+	162
Figure 73 – Diagramme d’équilibre de Boudouard.....	202
Figure 74 – Décomposition des différentes étapes d’un essai de gazéification (courbe de gazéification de coke à 1200 °C et avec 50 % de N ₂ , et 50 % de CO ₂).....	205
Figure 75 – Courbe $\ln(RC) = f(CO_2)$ pour déterminer l’ordre de la réaction.....	205
Figure 76 – Courbe $\ln(km) = f(T)$ permettant de déterminer les paramètres de la cinétique chimique pour le coke (en bleu) et pour le charbon de bois (en vert)	206
Figure 77 – Schéma de construction du maillage de la cavité et de la tuyère sur Fluent.	211
Figure 78 – Valeur du rapport ε/k sur une coupe verticale de la cavité, pour une température de 2030 °C.	212
Figure 79 – Courbes de températures des gaz (en bleu) et des solides/liquides (en rouge) calculées par le modèle. Le point 0 m correspond au gueulard, et le point à 20,6 m aux tuyères.....	216
Figure 80 – Evolution des fractions molaires des différents oxydes de fer au cours de la descente des charges dans le haut fourneau.....	217
Figure 81 – Evolution de la concentration en CO le long du haut fourneau (en rouge), ainsi que des concentrations à l’équilibre pour les réactions de Boudouard (en bleu) et de réduction de la wüstite (en vert).	217
Figure 82 – Courbes de températures des gaz (en bleu) et des solides/liquides (en rouge) calculées par le modèle. Le point 0 m correspond au gueulard, et le point à 20,6 m aux tuyères.....	218

Figure 83 – Evolution des fractions molaires des différents oxydes de fer au cours de la descente des charges dans le haut fourneau.....	218
Figure 84 – Evolution de la concentration en CO le long du haut fourneau (en rouge), ainsi que des concentrations à l'équilibre pour les réactions de Boudouard (en bleu) et de réduction de la wüstite (en vert).	219
Figure 85 – Courbes de températures des gaz (en bleu) et des solides/liquides (en rouge) calculées par le modèle. Le point à 0 m correspond au gueulard, et le point à 20,6 m aux tuyères.....	219
Figure 86 – Evolution des fractions molaires des différents oxydes de fer au cours de la descente des charges dans le haut fourneau.....	220
Figure 87 – Evolution de la concentration en CO le long du haut fourneau (en rouge), ainsi que des concentrations à l'équilibre pour les réactions de Boudouard (en bleu) et de réduction de la wüstite (en vert).	220
Figure 88 – Courbes de températures des gaz (en bleu) et des solides/liquides (en rouge) calculées par le modèle. Le point 0 m correspond au gueulard, et le point à 20,6 m aux tuyères.....	221
Figure 89 – Evolution des fractions molaires des différents oxydes de fer au cours de la descente des charges dans le haut fourneau.....	221
Figure 90 – Evolution de la concentration en CO le long du haut fourneau (en rouge), ainsi que des concentrations à l'équilibre pour les réactions de Boudouard (en bleu) et de réduction de la wüstite (en vert).	222
Figure 91 – Emissions de GES totales pour tous les scénarios, exprimé pour une tonne de fonte liquide.	229

X. Annexes

Annexe A - Caractérisation de la résistance mécanique d'un coke

(Cette annexe correspond à une partie de la bibliographie du rapport de projet des élèves Grégoire Goffe et Amos-Lumière Kinkouama en 2^e année de l'école des Mines de Nancy pendant l'année 2010-2011)

Résistance mécanique

La plupart des essais mécaniques mesurent une dégradation granulométrique du coke après un certain nombre de révolutions dans un tambour, mais les normes varient en fonction des pays.

Europe

En Europe, l'essai le plus couramment employé pour caractériser la résistance mécanique d'un coke métallurgique est l'essai de cohésion en tambour mis au point par l'IRSID¹ (norme NF M 03-046). Le tambour utilisé a 1 m de longueur et 1 m de diamètre, il est garni de 4 cornières de 100 mm de hauteur et tourne à 25 tours min⁻¹. L'échantillon testé est constitué de 50 kg de coke de dimension supérieure à 20 mm dont la distribution granulométrique est représentative du lot à caractériser. La granulométrie est mesurée :

- après 100 tours pour déterminer les indices MICUM² : M40 fraction supérieure à 40 mm, M20 fraction supérieure à 20 mm, et M10 fraction inférieure à 10 mm;
- après 500 tours pour déterminer les indices IRSID : I40 fraction supérieure à 40 mm, I20 fraction supérieure à 20 mm, et I10 fraction inférieure à 10 mm.

Japon

Au Japon le test aux normes est appelé JIS K 2 152. Il s'agit là encore d'un test en tambour. Mais les Japonnais sont aussi les premiers à avoir intégré dans leurs tests la réactivité chimique du coke face au CO₂. Ils ont alors développé des techniques et des protocoles que les Américains adapteront un peu plus tard en créant une norme.

États-Unis/Royaume-Uni

Aux États-Unis et au Royaume-Uni, il existe 2 tests :

- un test en tambour, le "Tumbler Test"³,
- un test de dégradation par chute, appelé "Drop Shatter Test"⁴.

Le "Tumbler Test" se réalise avec un échantillon de granulométrie comprise entre 75 mm et 50 mm. En ce qui concerne le "Drop Shatter Test", il existe deux procédures selon si l'échantillon contient moins de 50 % de coke à plus de 100 mm après retrait du coke de diamètre inférieur à 50 mm ou non.

International

Au niveau international, les tests "CSR" (Coke Strength after Reaction with CO₂) et "CRI" (Coke Reactivity Index) semblent dominer. Ces tests sont basés sur un procédé développé par Nippon Steel Corporation⁵ dans les années 1970. Ils permettent l'obtention d'un indicateur de performance global du coke et sont, à présent, largement utilisés à travers le monde [5].

CRI :

Il nécessite :

- 200 g de coke sec entre 19 mm et 21 mm ;
- du CO₂, avec un débit de 5 L mn⁻¹ (0; 18 m³ mn⁻¹) ;
- une exposition de 2 heures à 1100 °C

Le CRI est alors la perte de masse ramenée à la masse de l'échantillon.
Un coke métallurgique a un CRI compris entre 20 et 25 %.

CSR :

Le coke est alors refroidi et inséré dans un tambour en forme de I pour 30 minutes à 20 tours min^{-1} . Le CSR est alors donné par le pourcentage massique de coke de diamètre supérieur à 9,52 mm. Un coke standard a un CSR compris entre 55 à 60 %.

1. Institut de Recherches de la Sidérurgie.
2. Mission Interalliée de Contrôle des Usines et des Mines.
3. Norme ASTM D 3402 (34 \$).
4. Norme ASTM D 3038 (40 \$).
5. À l'origine élaborés par l'industrie japonaise (Nippon Steel Corporation), les Américains ont fait de ces tests une norme ASTM qui a maintenant une renommée mondiale. Test ASTM D5341.

Annexe B - Biomasses définies par la législation européenne (Commission Européenne 2008)

Groupe 1 : Plantes et parties de plantes
<ul style="list-style-type: none"> - paille, - foin et herbe, - feuilles, bois, racines, souches, écorce, - cultures, par exemple, maïs et triticales.
Groupe 2 : Déchets, produits et sous-produits issus de la biomasse
<ul style="list-style-type: none"> - déchets de bois industriel (déchets provenant du travail et des opérations de traitement du bois et déchets provenant des activités de l'industrie du bois), - bois usagé (produits usagés en bois, matériaux en bois), produits et sous-produits des opérations de traitement du bois, - déchets à base de bois provenant de l'industrie papetière, comme la liqueur noire (contenant uniquement du carbone issu de la biomasse), - tallol brut, tallol et poix provenant de la production de pâte à papier, - résidus forestiers, - lignine provenant de la transformation de plantes contenant de la lignocellulose, - nourriture pour animaux et pour poissons, denrées alimentaires, graisses, huiles, suif, - résidus primaires issus de la production d'aliments et de boissons, - huiles et graisses végétales, - lisier, - résidus de plantes agricoles, - boues d'épuration, - biogaz issu de la digestion, de la fermentation ou de la gazéification de la biomasse, - boues portuaires et autres boues et sédiments provenant de masses d'eau, - gaz de décharge, - charbon de bois.
Groupe 3 : Fractions issues de la biomasse dans les matières mixtes
<ul style="list-style-type: none"> - fraction issue de la biomasse dans les objets flottants provenant de la gestion des masses d'eau, - fraction issue de la biomasse dans les résidus mixtes provenant de la production d'aliments et de boissons, - fraction issue de la biomasse dans les matériaux composites contenant du bois, - fraction issue de la biomasse dans les déchets textiles, - fraction issue de la biomasse dans le papier, le carton, le carton contrecollé, - fraction issue de la biomasse dans les déchets municipaux et industriels, - fraction issue de la biomasse dans la liqueur noire contenant du carbone d'origine fossile, - fraction issue de la biomasse dans les résidus issus du traitement des déchets ménagers et industriels, - fraction de l'éthyl-tertio-butyl-éther (ETBE) issue de la biomasse, - fraction du butanol issue de la biomasse.
Groupe 4 : Combustibles dont les composants et les produits intermédiaires sont tous issus de la biomasse, notamment
<ul style="list-style-type: none"> - bioéthanol, - biodiesel, - bioéthanol estérifié, - biométhanol, - biodiméthyléther, - bio-huile (mazout produit par pyrolyse), biogaz.

Annexe C – Impact financier de la valorisation énergétique de la paille

Valoriser la paille énergétiquement diminuerait la quantité de paille épanchée, et ainsi la qualité des sols. Un apport en nutriments supplémentaire est alors nécessaire. Voici un calcul rapide du coût de revient de la paille pour les exploitants s'ils venaient à revendre la totalité de leur paille. Selon la CAL (Coopérative Agricole Lorraine), en moyenne pour toutes les cultures, 85 €t⁻¹ sont dépensés en engrais et produits phyto-sanitaires. Selon Cherubini (2010), pour le cas du blé, le retrait des résidus agricoles entraînerait une hausse des besoins en fertilisants de 12 % (de 356 kg de N,P et K par hectare et par an avec résidus, à 397 kg ha⁻¹ an⁻¹ sans résidus). En prenant un rendement de 1,3 t_{grain} t⁻¹_{blé}, la valorisation énergétique des résidus causerait aux agriculteurs une perte d'environ 11 €t⁻¹ grains (85 €t⁻¹ grains * 0,12), soit 8,5 €t⁻¹ paille. Ce qui fixe la limite minimale du prix de la paille.

Hamelinck (2008) donne des ordres de grandeurs typiques, meilleures valeurs ou pratiquées (T, B ou P) de l'injection de fertilisants en Europe. Selon PROSPECTIVE (2010), les besoins en azote sont les plus importants ; les fertilisations en phosphore et potassium sont plus faibles et peuvent être reportées à des années antérieures sans causer de gros dommages à la productivité, leur cours reste faible et les fluctuations sont de faible amplitude par rapport à celles de l'azote.

La production d'engrais azoté est effectuée à partir d'air et de gaz naturel, d'où la dépendance du cours des engrais avec le cours du pétrole (ADA 2012).

Annexe D – Rendement en résidus (paille) d’une exploitation de blé

Il est difficile d’avoir des chiffres très précis concernant le rendement en paille des exploitations. On peut tout de même noter que le rapport de la production totale de paille sur la production de grains est généralement supérieur à l’unité, compris entre 1,5 et 2,5. Quelques valeurs de la littérature sont renseignées dans le Tableau 98.

Tableau 98 : Rapport entre les rendements en grain et en paille selon différentes sources

Réf.	(FCBA 2010)	(Lal R. 2005)	(Francesco Cherubini 2010)	(Agreste 2010)	(UNIFA)	(ADEME et coll. 1998)
En grain [$t_{\text{grain}} \text{ ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$]	-	2,7	4,34	6-7	-	6,7
En paille [$t_{\text{MS}} \text{ ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$]	3,5	4	6,944	-	-	4-6
[$t_{\text{MS paille}} t_{\text{grain}}^{-1}$]	-	1,48	2,29	-	0,5-0,75	0,6-0,9

Bien que la production massique totale de paille soit généralement plus importante que la production de grain, il faut ajouter qu’en France, la paille est généralement coupée à 10 ou 20 cm du sol. Ce qui implique que près de 50 % de la paille produite reste sur le sol et n’est pas exploitable énergétiquement. Les documents (ADEME et coll. 1998; Unifa 2009) le rappellent, ce qui explique la différence entre les chiffres des colonnes de droite et des colonnes de gauche du tableau ci-dessus.

On prendra alors comme valeur environ $0,5-0,9 t_{\text{MS paille}} t_{\text{grains}}^{-1}$, ou $4-6 t_{\text{MS paille}} \text{ ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$.

Annexe E – Expression du rendement de carbonisation

Antal et coll. (2000) définissent différents rendements de carbonisation : le « Charcoal yield » (y_{char}) et le « Fixed-carbon yield » (y_{fC}) :

$$y_{char} = \frac{m_{char}}{m_{bio}}$$

où

m_{char} est la masse sèche de charbon produite

m_{bio} est la masse sèche de biomasse introduite

Teneur en matières volatiles (% VM) :

$$\% VM = 100 \times \frac{(m_{char} - m_{cc})}{m_{char}}$$

où

m_{cc} est la masse sèche de charbon restante d'après « l'analyse immédiate » (proximate analysis)

Teneur en cendres (% char ash) :

$$\% char_ash = 100 \times \frac{m_{ash}}{m_{char}}$$

où

m_{ash} est la masse de cendre après combustion du carbone

Teneur en carbone fixe (% fC) :

$$\% fC = 100 - \% VM - \% char_ash$$

Fixed-carbon yield (y_{fC}) :

$$y_{fC} = y_{char} \times \frac{\% fC}{(100 - \% feed_ash)}$$

$\% feed_ash$ est la teneur en cendre de la biomasse.

Annexe F - Première estimation du taux de remplacement de biomasses torréfiées à différentes températures

Le logiciel MMHF est un modèle mathématique fondé sur des bilans de masse et d'énergie, et des équilibres thermodynamiques traduisant des hypothèses de fonctionnement. Il a été détaillé dans la section « bibliographie modélisation HF ». SG PAM dispose de ce logiciel et son utilisation a permis une première estimation des taux de remplacement de coke pour l'injection de fines de biomasse aux tuyères. Pour ces calculs, dont les résultats sont donnés dans le Tableau 99, nous sommes partis du fonctionnement standard d'un haut fourneau de SG PAM, avec injection de PCI, auquel nous avons ajouté une injection de produit biomasse. Pour chaque type de biomasse, la quantité de charbon fossile injectée et de coke chargé ont été déterminés afin de conserver une température de flamme identique au cas standard. A partir de ces quantités, le taux de remplacement a été calculé par la formule 97. Ce calcul a été effectué pour deux types de biomasses traitées dont les compositions étaient connues, une biomasse torréfiée (à 270 °C) et une biomasse carbonisée (à 550 °C). La modélisation du haut fourneau sous Aspen Plus a abouti à une nouvelle détermination de ces valeurs en prenant en compte les aspects cinétiques liés à la consommation des combustibles par combustion ou gazéification et à la réduction des oxydes de fer, aspects non pris en compte dans MMHF.

Les calculs avec MMHF ont été réalisés avec l'aide de Dominique Barbier, responsable des hauts fourneaux de SG PAM à Pont-à-Mousson.

Protocole de calcul :

- Une première simulation de référence est réalisée à partir des données de fonctionnement normal d'un haut fourneau de PàM (injection de charbon fossile à hauteur de $115 \text{ kg t}^{-1}_{\text{fonte}}$), les 13 autres paramètres à fixer étant connus.
- Une simulation est alors réalisée en remplaçant une partie du charbon fossile par 100 % de biomasse (par exemple $10 \text{ kg}_{\text{biomasse}} \text{ t}^{-1}_{\text{fonte}} + 105 \text{ kg}_{\text{charbon}} \text{ t}^{-1}_{\text{fonte}}$)
- La température adiabatique de flamme calculée lors de la seconde simulation est comparée à la température de référence (dans notre cas 2118 °C). Si la température est inférieure, on augmente la part de charbon fossile, si elle est supérieure, on la diminue.
- On recommence la simulation jusqu'à obtenir la température de référence → fonctionnement thermique normal.
- Le taux de remplacement est calculé la formule suivante :

$$TR_{\text{biomasse}} = \frac{m_{\text{coke,eq}} - m_{\text{coke,eq,ref}}}{m_{\text{biomasse}}}$$

avec

$$m_{\text{coke,eq,ref}} = m_{\text{coke,ref}} + \frac{m_{\text{PCI,ref}}}{TR_{\text{PCI}}}$$

$$m_{\text{coke,eq}} = m_{\text{coke}} + \frac{m_{\text{charbon}}}{TR_{\text{PCI}}}$$

97

Hypothèses :

- Température adiabatique de flamme constante (le changement de charge n'implique pas de changement de régime → la composition du laitier et donc le besoin énergétique pour le faire entrer en fusion n'est pas modifié),
- Rendement CO/CO₂ ne varie pas lors de l'injection de biomasse,

- Rendement H₂/H₂O ne varie pas,
- Taux de remplacement du coke par le charbon fossile de 0,85

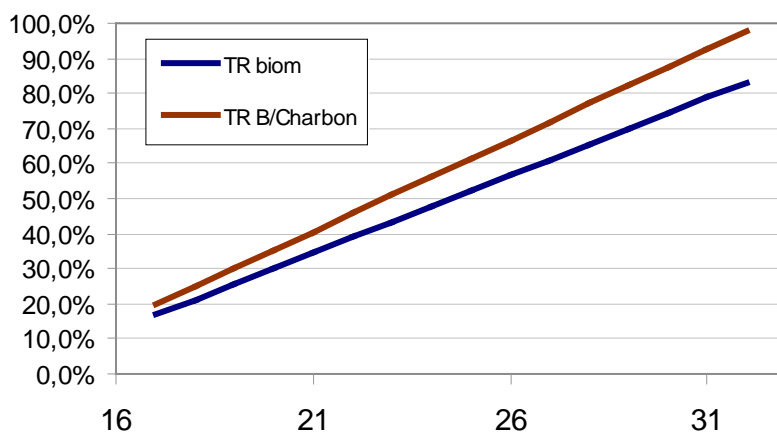
Analyses élémentaires des échantillons utilisés pour les calculs :

	Unités	Charbon fossile	Biomasse torréfiée 270 °C	Biomasse torréfiée 550 °C
C	[%]	84,8	55,7	79,9
H	[%]	4,3	5,51	3,8
O	[%]	4,9	36,14	13,28
N	[%]	2,2	0,39	0,5
S	[%]	0,3	0,01	0,04
humidité	[%]	1,1	3,0	3,0
PCI	[GJ t ⁻¹]	32,4	21,6	29,77

Tableau 99 – Récapitulatif et résultats des simulations sur le logiciel MMHF

Simulation	Unités	1	2	3	4	5
Température	[°C]	-	270	270	550	550
Coke	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	401,3	412,3	423,8	402,4	404,8
Charbon	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	115,0	95	75	105	85
Biomasse	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	0,0	16	31	10	30
T flamme	[°C]	2118	2118	2118	2118	2118
M _{coke,eq}	[kg t ⁻¹ _{fonte}]	499,0	493,1	487,5	491,7	477,0
TR _{charbon}	[-]	0,85	0,85	0,85	0,85	0,85
TR _{biomasse}	[-]	-	0,37	0,37	0,73	0,73
TR _{biomasse/charbon}	[-]	-	0,44	0,44	0,86	0,86

Courbes d'évolution du taux de remplacement en fonction du pouvoir calorifique (en GJ t⁻¹), en considérant que l'évolution est linéaire (il serait nécessaire de réaliser d'autres essais avec d'autres échantillons intermédiaires)



Annexe G – Application du modèle cinétique multi-échelles de Ranzani Da Costa à notre étude

L'expression des différents processus cinétiques est explicitée dans le tableau suivant.

Tableau 100 – Synthèse des valeurs des temps caractéristiques de chaque type de régime présent dans chacune des trois réactions

	Hématite → Magnétite	Magnétite → Wüstite	Wüstite → Fer
Transfert externe	$\tau_{ext1} = \frac{\tilde{\rho}_{Fe_3O_4,ini} d_p}{18 k_g c_t (x_{H_2,\infty} - x_{H_2,eq(1)})}$	$\tau_{ext2} = \frac{8 \tilde{\rho}_{Fe_3O_4,ini} d_p}{57 k_g c_t (x_{H_2,\infty} - x_{H_2,eq(2)})}$	$\tau_{ext3} = \frac{\tilde{\rho}_{Fe_3O_4,ini} d_p}{6 k_g c_t (x_{H_2,\infty} - x_{H_2,eq(3)})}$
Diffusion intergranulaire	$\tau_{diff,interg(1)} = \frac{\tilde{\rho}_{Fe_3O_4,ini} (d_p)^2}{72 (D_{H_2,eff})_{int,erg1} c_t (x_{H_2,\infty} - x_{H_2,eq(1)})}$	$\tau_{diff,interg(2)} = \frac{2 \tilde{\rho}_{Fe_3O_4,ini} (d_p)^2}{57 (D_{H_2,eff})_{interg2} c_t (x_{H_2,\infty} - x_{H_2,eq(2)})}$	n'intervient pas
Diffusion intragranulaire	n'intervient pas	$\tau_{diff,intrag(2)} = \frac{2 \tilde{\rho}_{Fe_3O_4,ini} (d_{grain}^o)^2}{57 (D_{H_2,eff})_{intrag2} c_t (x_{H_2,\infty} - x_{H_2,eq(2)})}$	n'intervient pas
Diffusion intercrystallite	n'intervient pas	n'intervient pas	$\tau_{diff,interc(3)} = \frac{\tilde{\rho}_{Fe_3O_4,ini} (d_p)^2}{24 (D_{H_2,eff})_{interc3} c_t (x_{H_2,\infty} - x_{H_2,eq(3)})}$
Diffusion intracrystallite (phase solide)	n'intervient pas	n'intervient pas	$\tau_{diff,intrac3} = \frac{\tilde{\rho}_{Fe_3O_4} d_{crist,ini}^2}{24 D_{sol} (c_{Ox,eq} - c_{Ox,\infty})}$
Réaction chimique	$\tau_{chim1} = \frac{\tilde{\rho}_{Fe_3O_4} d_{grain}^o}{6 k_1 c_t (x_{H_2,\infty} - x_{H_2,eq(1)})}$	$\tau_{chim2} = \frac{\tilde{\rho}_{Fe_3O_4} d_{grain}^o}{2 k_2 c_t (x_{H_2,\infty} - x_{H_2,eq(2)})}$	$\tau_{chim3} = \frac{\tilde{\rho}_{Fe_3O_4} d_{crist}^o}{2 k_3 c_t (x_{H_2,\infty} - x_{H_2,eq(3)})}$

Chaque cinétique s'exprime en fonction de divers paramètres, présentés pour chaque cinétiques dans le Tableau 101, et dont certains ne sont pas connus.

Tableau 101 – Liste des paramètres nécessaires au calcul des différentes cinétiques

Cinétiques	Paramètres connus	Paramètres inconnus
Transfert externe	$d_p, x_{i,inf}, c_t, \rho$	$k_g, x_{i,eq}$
Diffusion intergranulaire	$d_p, x_{i,inf}, c_t, \rho$	$D_{i,eff}, x_{i,eq}$
Diffusion intragranulaire	$d_p, x_{i,inf}, c_t, \rho$	$D_{i,eff}, x_{i,eq}$
Diffusion intercrystallite	$d_p, x_{i,inf}, c_t, \rho$	$D_{i,eff}, x_{i,eq}$
Diffusion intracrystallite	$d_p, x_{i,inf}, c_t, \rho$	$D_{sol}, C_{Ox,eq}$
Chimique	$d_p, x_{i,inf}, c_t, \rho$	k_1

Les paramètres inconnus sont au nombre de trois types. D'abord les paramètres de diffusivité, concernant la diffusivité interne et externe ($k_g, D_{i,eff}, D_{sol}$). Ensuite Il faut déterminer les concentrations à l'équilibre des différentes espèces mises en jeu ($x_{i,eq}, C_{Ox,eq}$). Enfin les cinétiques chimiques doivent être évaluées (k_1).

La concentration totale gazeuse est calculée pour un gaz parfait :

$$c_t = \frac{P}{RT} \quad 98$$

Calcul des coefficients de transfert

Le coefficient de transfert externe k_g est déterminé à partir du nombre de Sherwood, lui-même issu de la corrélation de Ranz Marshall (99).

$$Sh = \frac{k_g d_p}{D_{CO,N2}} = 2 + 0,6 Re^{0,5} Sc^{0,33} \quad 99$$

Les diffusivités effectives utilisées pour les transferts internes sont calculées à partir de la diffusivité des réactifs ou produits dans le mélange gazeux et de la diffusivité de Knudsen.

$$D_{i,eff} = \frac{\bar{\varepsilon}}{\bar{\Gamma}} \left(\frac{1}{D_{i,m}} + \frac{1}{D_{Kn}} \right)^{-1} \quad 100$$

$$D_{kn,i} = \frac{\bar{d}_{pores}}{3} \sqrt{\frac{8 \cdot R \cdot T}{\pi \cdot M M_i}} \quad 101$$

Pour le calcul de la diffusivité, il est nécessaire de connaître la composition du gaz dans lequel les atomes de CO ou de H₂ migrent. Puisque le gaz présent dans le fourneau est un mélange de, principalement, N₂, CO, CO₂, H₂ et H₂O, il est difficile de déterminer les coefficients de diffusion réels. Pour cela, nous avons utilisé la formule 102 issues de (Wilke C.R. et coll. 1955). Cette formule permet de calculer la diffusivité d'une molécule d'un gaz A dans un gaz B à partir de données tabulées σ et ε . Cette formule permet de calculer les diffusivités dans des gaz purs, N₂ et CO₂ pour la diffusion de CO, et N₂ et H₂O pour H₂. Les valeurs les plus faibles étant ensuite utilisées pour le reste des calculs.

$$D_{AB} = \frac{T^{1.5} \left[3.03 - \left(\frac{0.98}{M_{AB}^{0.5}} \right) \right] 10^{-3}}{P M_{AB}^{0.5} \sigma_{AB}^2 \Omega_D} \quad 102$$

avec :

$$M_{AB} = 2 \left(\frac{1}{M_A} + \frac{1}{M_B} \right)^{-1}$$

M_A, M_B = masse molaire des molécules A et B

T = Température, en K

P = pression, en bar

σ_{AB} = « paramètre de collision », exprimé en 10⁻¹⁰ m, calculé à partir de σ_A et σ_B (103), le Tableau 102 en donne les valeurs pour chaque gaz,

Ω_D = Integral de collision, sans dimension, calculé à partir de la formule 104 (Wilke C.R. et coll. 1955) (Neufeld P.D. et coll. 1972)

$$\sigma_{AB} = \frac{\sigma_A + \sigma_B}{2} \quad 103$$

$$\Omega_D = \frac{1.06036}{(T^*)^{0.1561}} + \frac{0.193}{\exp(0.47635 \cdot T^*)} + \frac{1.03587}{\exp(1.52996 \cdot T^*)} + \frac{1.76474}{\exp(3.89411 \cdot T^*)} \quad 104$$

Avec

$$T^* = \frac{\kappa T}{\varepsilon_{AB}} \quad \text{et} \quad \frac{\varepsilon_{AB}}{\kappa} = \left(\frac{\varepsilon_A \varepsilon_B}{\kappa \kappa} \right)^{0.5}$$

Tableau 102 : Valeurs de σ et ε pour tous les gaz considérés

	σ [10 ⁻¹⁰ m]	$\frac{\varepsilon}{\kappa}$ [K]
N ₂	3,798	71,4
CO	3,69	91,7
CO ₂	3,941	195,2
H ₂ O	2,641	809,1
H ₂	2,827	59,7
O ₂	3,467	106,7

$$D_{sol} = 3,72 \cdot 10^{-6} \exp\left(\frac{-97600}{RT}\right) \text{ pour } T \leq 912 \text{ } ^\circ\text{C}$$

$$D_{sol} = 5,75 \cdot 10^{-4} \exp\left(\frac{-168847}{RT}\right) \text{ pour } T > 912 \text{ } ^\circ\text{C}$$

105

Equilibre thermodynamiques

La contribution des équilibres thermodynamiques de chaque réaction est prise en compte dans les différentes expressions de cinétique par le calcul des fractions molaires à l'équilibre ($x_{H_2,eq(i)}$ et $x_{CO,eq(i)}$). Leurs expressions sont données par les formules 106, provenant du travail de Ranzani (2011). Les constantes d'équilibres proviennent de la base de données COACH d'où sont issus les diagrammes de la Figure 44.

$$K_{eq(j)} = \frac{(x_{CO_2,eq(j)})^m}{(x_{CO,eq(j)})^n} \quad K_{eq(j')} = \frac{(x_{H_2O,eq(j')})^m}{(x_{H_2,eq(j')})^n}$$

106

$$x_{i,eq(1)} = \frac{1-x_{I,\infty}}{1+K_{eq(1)}} \quad x_{i,eq(2)} = \frac{1-x_{I,\infty}}{1+(K_{eq(2)})^{\frac{19}{16}}} \quad x_{i,eq(3)} = \frac{1-x_{I,\infty}}{1+K_{eq(3)}}$$

Avec

$$x_{I,\infty} = 1 - x_{H_2,\infty} - x_{H_2O,\infty} \quad \text{ou} \quad x_{I,\infty} = 1 - x_{CO,\infty} - x_{CO_2,\infty}$$

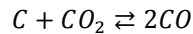
Pour l'équilibre de la concentration en oxygène, $C_{ox,eq}$, nous utilisons l'expression fournie par Ranzani (équation 47).

$$C_{ox,eq} = 2,916 \cdot 10^{-10} T^4 - 1,710 \cdot 10^{-6} T^3 + 3,780 \cdot 10^{-3} T^2 - 3,706 T + 1354$$

107

Annexe H – Modèle cinétique semi-empirique de la gazéification du coke et du charbon de bois

Cette étude a pour but la détermination d'un modèle « simple » de la cinétique de gazéification du coke et du charbon de bois utilisés en hauts fourneaux. La réaction étudiée est la réaction de Boudouard, ou réaction de régénération dans le cas du haut fourneau (équation 46).



108

La thermodynamique de la réaction est contrôlée par l'équilibre de Boudouard (Figure 73), qui favorise la production de CO à partir de hautes températures (> 900 °C), et au contraire, empêche la réaction directe pour des températures inférieures.

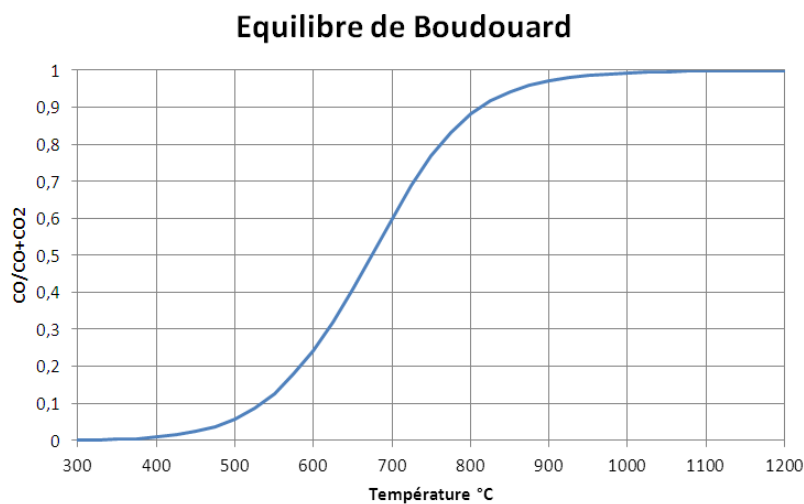


Figure 73 – Diagramme d'équilibre de Boudouard

Modèle utilisé

Ce type de réaction, entre un gaz et un solide poreux se déroule généralement en trois principales étapes :

- une étape de diffusion externe (le transport du gaz à travers la couche limite externe entourant le solide),
- une diffusion interne (le transport au sein des pores),
- la réaction chimique proprement dite et l'élimination des produits de la réaction (Ergun S. 1962; Story S.R. et coll. 2000; Grigore M. 2007; Jess A. et coll. 2010).

Chacune de ces étapes peut être l'étape contrôlant la vitesse globale de la réaction. De ce fait, il est fréquent de diviser la gazéification du coke en trois régimes, contrôlés par trois des étapes précédentes.

Le premier régime est contrôlé par la cinétique chimique à « basse » température (régime I). Dans ce cas la cinétique chimique est plus lente que les cinétiques de diffusion. Un modèle simple de cinétique chimique consiste à utiliser une loi d'Arrhenius (équation 109). E_a est l'énergie d'activation (en $J mol^{-1}$), $k_{m,0}$ le facteur de fréquence (en $m^3 kg^{-1} s^{-1}$). On peut alors relier la vitesse de réaction à la loi d'Arrhenius et à la thermodynamique par la relation 110, où le coefficient α représente l'ordre de la réaction.

$$k_m = k_{m,0} \exp\left(\frac{-Ea}{RT}\right) \quad 109$$

$$\frac{dX_C}{dt} = k_m(1 - X_C) \cdot M_C(C_{CO_2}^\alpha - C_{CO_2,eq}^\alpha) \quad 110$$

Avec $X_C = \left(\frac{m_{C,0} - m_C}{m_{C,0}}\right)$, l'avancement de la réaction

A des températures plus élevées, la diffusion dans la structure poreuse du solide devient le régime limitant (régime II). Iwanaga et coll. (1989) expliquent par exemple, qu'à des températures comprises entre 1150 et 1700 °C, la gazéification du coke (CO₂ ou H₂O) est limité par la diffusion au sein du coke. Story et coll. (2000) ont quant à eux mis en évidence ce contrôle de la cinétique par diffusion moléculaire dans les pores, en comparant les vitesses des réactions de gazéification à 1500 °C sous atmosphères d'Ar et d'He.

Afin de modéliser ce phénomène, Jess et coll. (Jess A. et coll. 2010) suggèrent la prise en compte d'un facteur η_{pore} calculé à partir du nombre de Thiele Φ (85). Ce dernier est un nombre adimensionnel caractérisant le rapport entre les cinétiques de réaction chimique et du transport des réactifs.

$$\eta_{pore} = \frac{\tanh(\phi)}{\phi}, \quad \text{avec} \quad \phi = L \sqrt{\frac{k_m \rho_s}{D_{O_2,eff}}} \quad 111$$

Enfin pour des températures plus élevées, le transfert gazeux externe au travers de la couche limite de la particule de solide devient le régime limitant (régime III). Ce régime est modélisé par la même loi cinétique de transport externe que celle utilisée lors de la réduction des oxydes de fer, donnée par l'expression 112. En remplaçant le coefficient $h_{conv,mat}$, coefficient de transfert de masse, par son expression, la vitesse de réaction fait alors intervenir le diamètre de la particule d , sa densité ρ_s , la diffusivité D_{CO_2} et le nombre de Sherwood Sh . Les densités initiales du coke et du charbon de bois standards utilisés chez SG à Pont-à-Mousson et à Barra Mansa ont été mesurées à l'aide d'un pycnomètre, elles sont listées dans le Tableau 103. La diffusivité est calculée à partir de tables. Enfin le nombre de Sherwood est calculé de la même manière que le nombre de Nusselt par l'expression 114.

$$k_{ext} = 6 \frac{h_{conv,mat}}{d \rho_s} \quad \text{avec} \quad h_{conv,mat} = \frac{Sh D_{CO_2}}{d} \quad 112$$

$$k_{ext} = 6 \frac{Sh D_{CO_2}}{d} \cdot \frac{1}{d \rho_s} \quad 113$$

Tableau 103 – Densités moyennes du coke et du charbon de bois, mesurées au pycnomètre

	Densité [kg m ⁻³]
Coke	1050
Charbon de bois	750

$$Sh = 2,0 + 0,39 Re_p^{1/2} Pr^{1/3} \quad 114$$

La vitesse apparente s'écrit :

$$R_C = \frac{dX_C}{dt} = \frac{1}{m_{C,0}} \frac{dm_C}{dt}$$

Le modèle global a été construit à partir des données précédentes pour former l'expression 48, modèle de cinétique en régime mixte. Le dernier terme (X_C^β) a été ajouté afin de fitter le mieux possible le modèle aux expériences.

$$\frac{dX_C}{dt} = \frac{1}{\left(\frac{1}{\eta_{pore}k_m} + \frac{1}{k_{ext}}\right)} (1 - X_C) \cdot M_C (C_{CO_2}^\alpha - C_{CO_2,eq}^\alpha) \cdot X_C^\beta \quad 115$$

Afin de prendre en compte la perte de matière lors de la gazéification, deux mécanismes ont été pris en compte : lorsque la cinétique limitante est la cinétique chimique, on considère que le morceau de coke ou de charbon de bois est consommé de manière homogène (sa densité diminue, équation 116), lorsque les cinétiques de transferts contrôlent la cinétique globale, la densité reste constante et le diamètre diminue (équation 117).

$$\rho_s = \rho_0(1 - X_C) \quad \text{et} \quad d_s = d_0 \quad 116$$

$$d_s = d_0(1 - X_C)^{1/3} \quad \text{et} \quad \rho_s = \rho_0 \quad 117$$

Protocole expérimental

Afin de compléter le modèle, quatre paramètres doivent être déterminés : les paramètres de cinétiques chimiques (E_a et k_0), α et β . Pour cela, des échantillons de coke et de charbon de bois ont été gazéifiés dans une thermobalance SETARAM (TG 96) à plusieurs températures (entre 800 et 1200 °C) et plusieurs types d'atmosphères (sous mélange N₂/CO₂ ou N₂/CO/CO₂). La liste des différents essais expérimentaux se trouve dans le Tableau 108.

Pour chaque essai un échantillon de forme sphérique et de masse comprise entre 0,6 et 1,9 g a été préparé. Les échantillons ont ensuite été séchés dans une étuve à 120 °C pendant 2 h. Ces échantillons ont ensuite été pesés et leurs diamètres mesurés.

Le protocole de gazéification des échantillons s'est déroulé en plusieurs paliers. Dans un premier temps, on chauffe rapidement (15 à 20 K min⁻¹) pour atteindre la température souhaitée sous une atmosphère de N₂ pur. Ensuite on maintient un palier à température constante sous N₂ afin de s'assurer que l'intégralité des matières volatiles s'est échappée (en particulier pour le charbon de bois). Ensuite le mélange N₂/CO₂ ou N₂/CO₂/CO est injecté avec un débit de 1 L min⁻¹. La température et l'atmosphère sont alors maintenues constantes pendant une durée de 4 h (pour les premiers essais, lors des essais suivant les durées furent allongées afin d'observer la gazéification sur une durée plus longue, et dans plusieurs cas, afin d'obtenir une gazéification complète). Enfin l'injection de CO et de CO₂ est coupée et l'échantillon est refroidi jusqu'à 25 °C. Les échantillons gazéifiés partiellement ou entièrement (cendres résiduelles) ont ensuite été conservés.

Tableau 104 – Liste des expériences effectuées et des conditions opératoires pour le coke et le charbon de bois (P=1 atm)

Essai	Température [°C]	N ₂ [%]	CO ₂ [%]	CO [%]
1	850/800	50	50	0
2	900	50	50	0
3	1000	50	50	0
4	1100	50	50	0
5	1200	50	50	0
6	900	50	25	25
7	1000	50	25	25
8	1200	50	25	25
9	1000	50	10	40
10	1200	50	10	40

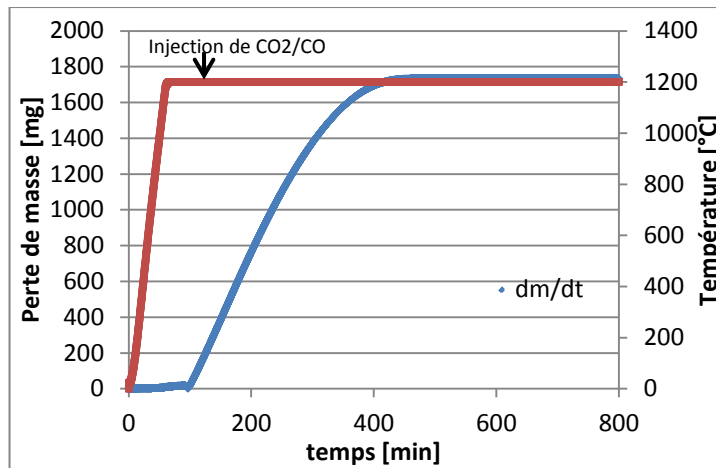


Figure 74 – Décomposition des différentes étapes d’un essai de gazéification (courbe de gazéification de coke à 1200 °C et avec 50 % de N₂, et 50 % de CO₂)

Le coefficient α devrait être théoriquement obtenu en traçant la courbe $\ln R_C = f(\ln(C_{CO_2}))$ à température constante, dont le coefficient directeur devrait être α . Cependant, comme on peut le voir sur la Figure 75, aucun coefficient réaliste ne peut en être tiré (variations de 1 à plus de 4). De ce fait, les coefficients ont été choisis arbitrairement à partir de données de la littérature ($\alpha = 0,66$ pour le coke, $\alpha = 1$ pour le charbon de bois).

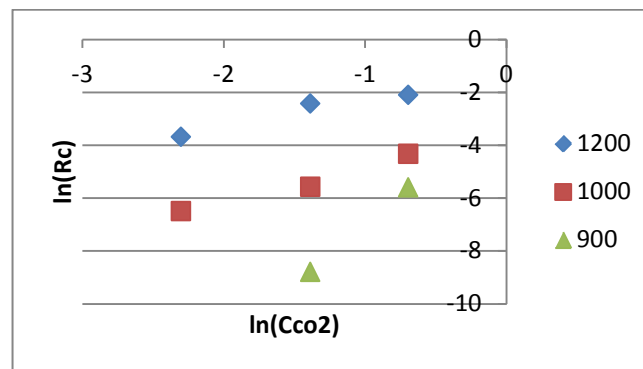


Figure 75 – Courbe $\ln(R_C) = f(C_{CO_2})$ pour déterminer l’ordre de la réaction

Le coefficient α a été fixé (à 0,15) de manière à « fitter » au mieux l’allure des courbes de gazéification, pour le coke aussi bien que pour le charbon de bois.

Enfin les paramètres de la cinétique chimique ont été déterminés en calculant la valeur de k_m pour chaque température de manière à reproduire au mieux les courbes expérimentales (valeurs listées dans le Tableau 105). Les valeurs de $\ln(k_m)$ ont ensuite été tracées en fonction de $1/T$. Une régression linéaire de cette courbe permet alors d’obtenir les paramètres recherchés E_a et k_0 par identification avec l’équation 118. Les paramètres calculés sont listés dans le Tableau 106. Les valeurs obtenues sont globalement du même ordre que les valeurs issues de la littérature (Tableau 107).

Tableau 105 – Valeur calculées de k_m en fonction de la température

Coke	1200 °C	1100 °C	1000 °C	900 °C	850 °C
k_m	0,0043	0,00105	0,000182	0,000035	0,000028
$\ln(k_m)$	-5,45	-6,86	-8,61	-10,26	-10,48
Charbon de bois	1200 °C	1100 °C	1000 °C	900 °C	800 °C
k_m	0,09	0,022	0,006	0,00165	0,000093
$\ln(k_m)$	-2,4	-3,82	-5,12	-6,41	-9,28

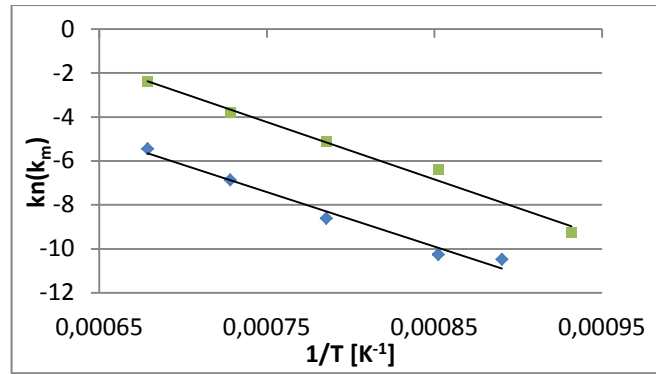


Figure 76 – Courbe $\ln(k_m) = f\left(\frac{1}{T}\right)$ permettant de déterminer les paramètres de la cinétique chimique pour le coke (en bleu) et pour le charbon de bois (en vert)

$$\ln(k_m) = \frac{E_a}{RT} + \ln(k_0) \quad 118$$

Tableau 106 – Valeur calculées de k_m en fonction de la température

	k_0 [m ³ kg ⁻¹ s ⁻¹]	E_a [kJ mol ⁻¹]
Coke	1,42 10 ⁵	208,2
Charbon de bois	4,6 10 ⁶	216,9

Tableau 107 - Energies d'activation de la littérature

Auteur	Echantillon	Température [°C]	E_a kJ mol ⁻¹	Remarque
Harris et coll.(1989) Simulation of transport phenomena	Coke + CO ₂	780-890	216-239 251	Energie d'activation réelle
Yamaoka et coll. (2003)			230,5	
Iwanaga Y., Takatani K.,(1989)		1150-1700	185,4	Energie d'activation apparente
Grigore (2007)	Coke + CO ₂	770-931	222-266	Energie d'activation apparente
Kawakami et coll. (Kawakami M. et coll. 2004)	Coke + CO ₂	600-900	200	Energie d'activation réelle
Blake, issu de (Laurendeau N.M. 1979)	Coke + CO ₂	850-900	239	Energie d'activation réelle
Pang et coll.(Pang B.Y. et coll. 1996)	Coke + CO ₂	900	215-240	Energie d'activation réelle

Annexe I – Détermination expérimentale des paramètres cinétiques de pyrolyse du charbon de bois

Cette étude a pour but de déterminer les paramètres cinétique d'un modèle « simple » pour la pyrolyse du charbon de bois utilisé en hauts fourneaux.

Le modèle choisi est de la forme ci-dessous :

$$CdB \xrightarrow{k_{pyro}} MV \quad \text{avec} \quad k_{pyro} = k_0 \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) \quad 119$$

Les courbes issues des expériences de gazéification de charbon de bois (Annexe H) ont été utilisées ici. En effet, il est possible d'exploiter les données concernant les rampes de chauffage du charbon de bois sous azote pour déterminer les paramètres cinétique. Hillier et coll. (2010) mentionnent une méthode de calcul de E_a et de k_0 à partir d'essais thermogravimétriques à vitesse de chauffe constante. A cette fin, il est nécessaire de tracer l'évolution de l'expression 120 en fonction de $1/T$ (où X est l'avancement et C la vitesse de chauffe). En considérant le premier terme du membre de droite de l'équation comme approximativement constant, l'énergie d'activation E_a peut être déterminé à partir de la pente calculée. De même, le facteur de fréquence peut être déterminé à partir du terme constant.

$$\ln\left(\frac{-\ln(1-X)}{T^2}\right) = \ln\left(\frac{k_0 R}{C E_a} \left(1 - \frac{2RT}{E_a}\right)\right) - \frac{E_a}{RT} = b + \frac{a}{T} \quad 120$$

La fonction a été tracée pour différents essais expérimentaux, à différentes vitesses de chauffe et jusqu'à différentes températures finales (voir Annexe H sur la gazéification). En approchant les courbes obtenues par des droites (en prenant $\left(1 - \frac{2RT}{E_a}\right) = \text{constante}$), les coefficients a et b des courbes ont été listés dans le Tableau 108 pour les différents cas.

Tableau 108 – Liste des expériences effectuées et des conditions opératoires pour le coke et le charbon de bois (P=1 atm)

Essai	Vitesse de chauffe [°C min ⁻¹]	Température finale [°C]	a [K]	b -	E _a kJ mol ⁻¹	k ₀ * s ⁻¹
1	12	900	-1195	-13,05	9,9	0,0010
2	12	1000	-2330	-11,15	19,4	0,0134
3	15	1000	-2214	-11,18	18,4	0,0154
4	19	1200	-2636	-11,03	21,9	0,0271
5	15	1200	-2346	-11,12	19,5	0,0174
6	15	900	-2285	-10,97	19,0	0,0197
7	15	900	-2047	-11,61	17,0	0,0093

*Pour le calcul de k_0 , le terme $\left(1 - \frac{2RT}{E_a}\right)$ a été simplifié et pris égale à 0,5

Les moyennes des valeurs de E_a et de k_0 ont ensuite été utilisées comme valeur finales de E_a et k_0 (respectivement 19,2 kJ mol⁻¹ et 0,017 s⁻¹).

Annexe J – Expressions des enthalpies des gaz et solides en fonction de la température

Les enthalpies sont données en J mol^{-1} . Ces expressions proviennent de la base de données Thermodata du logiciel COACH, sauf pour le carbone, qui provient de la base de données interne du logiciel Aspen Plus. Les enthalpies de formation sont listées dans le Tableau 109.

$$H_{N_2} = H_{f,N_2}^0 - 4,970 \cdot 10^{-7} T^3 + 3,980 \cdot 10^{-3} T^2 + 26,145 T - 8123,8$$

$$H_{O_2} = H_{f,O_2}^0 - 3,678 \cdot 10^{-7} T^3 + 3,625 \cdot 10^{-3} T^2 + 28,267 T - 8805,4$$

$$H_{CO} = H_{f,CO}^0 - 5,364 \cdot 10^{-7} T^3 + 4,162 \cdot 10^{-3} T^2 + 26,344 T - 8212,3$$

$$H_{CO_2} = H_{f,CO_2}^0 - 1,646 \cdot 10^{-6} T^3 + 1,140 \cdot 10^{-2} T^2 + 35,451 T - 11753,7$$

$$H_{H_2O} = H_{f,H_2O}^0 - 8,729 \cdot 10^{-7} T^3 + 8,671 \cdot 10^{-3} T^2 + 26,874 T - 8682,2$$

$$H_{H_2} = H_{f,H_2}^0 + 3,436 \cdot 10^{-8} T^3 + 1,593 \cdot 10^{-3} T^2 + 27,293 T - 8230,3$$

$$H_{CH_4} = H_{f,CH_4}^0 - 4,133 \cdot 10^{-6} T^3 + 3,145 \cdot 10^{-2} T^2 + 19,828 T - 8792,7$$

$$H_{HCN} = H_{f,HCN}^0 - 1,341 \cdot 10^{-6} T^3 + 1,056 \cdot 10^{-2} T^2 + 32,614 T - 10739,1$$

$$H_{NH_3} = H_{f,NH_3}^0 - 2,194 \cdot 10^{-6} T^3 + 1,847 \cdot 10^{-2} T^2 + 25,754 T - 9324,7$$

Si $T < 526,85 \text{ }^\circ\text{C}$

$$H_C(T) = H_{f,C}^0 + 4,185 \left(3,84 \cdot 10^{-9} T^4 - 1,472 \cdot 10^{-5} T^3 + 2,307 \cdot 10^{-2} T^2 - 12,909 T + 4376,2 - \frac{9,04 \cdot 10^5}{T} + \frac{7,23 \cdot 10^7}{T^2} \right)$$

Si $526,85 < T < 1726,85 \text{ }^\circ\text{C}$

$$H_C(T) = H_{f,C}^0 + 4,185 \left(8,70 \cdot 10^{-11} T^4 - 7,04 \cdot 10^{-7} T^3 + 2,21 \cdot 10^{-3} T^2 + 2,660 T - 1558,9 + \frac{9,596 \cdot 10^4}{T} + \frac{3,450 \cdot 10^7}{T^2} \right)$$

Si $T > 1726,85 \text{ }^\circ\text{C}$

$$H_C(T) = H_{f,C}^0 + 4,185 \left(-1,618 \cdot 10^{-9} T^3 + 4,08 \cdot 10^{-5} T^2 + 5,849 T - 3646,0 + \frac{3,10 \cdot 10^5}{T} + \frac{2,856 \cdot 10^8}{T^2} \right)$$

Tableau 109 – Liste des enthalpies de formation

	$H_{f,i}^0$ [J mol ⁻¹]
N ₂	0
O ₂	0
CO	-110 580
CO ₂	-393 510
H ₂ O	-241 800
H ₂	0
C	0
CH ₄	-74 900
HCN	135 143
NH ₃	-45 898

Annexe K – Expression des titres molaires à l'équilibre thermodynamique pour l'équilibre de Boudouard

Puisque l'équilibre de Boudouard (46) est une réaction réversible en fonction de la température, il faut considérer la réaction en sens direct (gazéification du carbone) et indirect (dismutation de CO). Le sens est indiqué par le signe de l'enthalpie libre de réaction $\Delta_r G$, à partir de laquelle on peut exprimer la constante d'équilibre K_{eq} . La valeur de l'enthalpie libre est issue de la base de données Thermodata du logiciel COACH.



$$\Delta_r G(T) = \Delta_r G^0(T) + RT \ln \left(\frac{P_{CO}^2}{P_{CO_2} P_0} \right)$$

$$K_{eq} = \exp \left(\frac{-\Delta_r G^0(T)}{RT} \right) = \frac{x_{CO,eq}^2 P_t}{x_{CO_2,eq} P_0} \quad 122$$

$$\Delta_r G^0(T) = 1,75657 T + 171802 \text{ [J mol}^{-1}\text{]}$$

Dans notre cas, la réaction ne se déroule pas à pression atmosphérique (P_0). De plus, puisque la réaction directe produit plus de mole d'espèces gazeuse qu'elle n'en consomme, il est nécessaire de considérer la présence d'inertes dans l'atmosphère (N_2 , O_2 , H_2 , H_2O) afin d'évaluer les titres molaires à l'équilibre.

$$x_{CO} + x_{CO_2} + x_I = 1 = x_{CO,eq} + x_{CO_2,eq} + x_{I,eq} \quad \text{avec} \quad x_I = x_{N_2} + x_{O_2} + x_{H_2O} + x_{H_2}$$

$$K_{eq} = \frac{x_{CO,eq}^2 P_t}{x_{CO_2,eq} P_0} \Rightarrow K'_{eq} = \frac{K_{eq} P_0}{P_t} = \frac{x_{CO,eq}^2}{x_{CO_2,eq}}$$

$$n_{CO} - n_{CO,eq} = 2(n_{CO_2} - n_{CO_2,eq}) \quad \text{et} \quad n_{CO,eq} + n_{CO_2,eq} + n_{I,eq} = n_{t,eq} = n_{t0} + \Delta n$$

$$x_{CO,eq} = \frac{n_{CO} + 2\Delta n}{n_{t,eq}} = \frac{n_{CO}}{n_{t0}} \frac{n_{t0}}{n_{t,eq}} + 2\alpha = x_{CO} \frac{n_{t0}}{n_{t,eq}} + 2\alpha$$

$$x_{CO_2,eq} = \frac{n_{CO_2} - \Delta n}{n_{t,eq}} = \frac{n_{CO_2}}{n_{t0}} \frac{n_{t0}}{n_{t,eq}} - \alpha = x_{CO_2} \frac{n_{t0}}{n_{t,eq}} - \alpha$$

$$\text{En prenant } \alpha = \frac{\Delta n}{n_{t0}} \text{ et } \beta = 1 - \alpha = \frac{n_{t,eq}}{n_{t0}}$$

On obtient

$$\beta x_{CO,eq} = x_{CO} + 2\alpha$$

$$\beta x_{CO_2,eq} = x_{CO_2} - \alpha$$

Et

$$K'_{eq} x_{CO_2,eq} = x_{CO,eq}^2$$

$$\alpha = \frac{x_{CO,eq} - x_{CO}}{2 + x_{CO,eq}}$$

$$K'_{eq} (x_{CO_2} - \alpha) = x_{CO,eq}^2 (1 - \alpha)$$

$$K'_{eq} (x_{CO_2} (2 + x_{CO,eq}) - (x_{CO,eq} - x_{CO})) = x_{CO,eq}^2 (2 + x_{CO,eq})$$

On obtient ensuite l'équation du second degré en $x_{CO,eq}$:

$$x_{CO,eq}^2 \frac{(2-x_{CO})}{K'_{eq}} + x_{CO,eq}(1-x_{CO2}) - (x_{CO} + 2x_{CO2}) = 0$$

$$\Delta = (1+x_{CO2})^2 + 4 \frac{(2-x_{CO})}{K'_{eq}} (x_{CO} - 2x_{CO2})$$

On en déduit les expressions de $x_{CO,eq}$ et $x_{CO2,eq}$:

$$x_{CO,eq} = K'_{eq} \frac{-(1+x_{CO2}) + \sqrt{(1+x_{CO2})^2 + 4 \frac{(2-x_{CO})}{K'_{eq}} (x_{CO} + 2x_{CO2})}}{2(2-x_{CO})}$$

$$x_{CO2,eq} = K'_{eq} \left(\frac{-(1+x_{CO2}) + \sqrt{(1+x_{CO2})^2 + 4 \frac{(2-x_{CO})}{K'_{eq}} (x_{CO} + 2x_{CO2})}}{2(2-x_{CO})} \right)^2$$

Annexe L – Modélisation aérodynamique des cavités à l'aide de Fluent

Afin de déterminer le temps de séjour dans les cavités des gaz et particules solides injectés aux tuyères, un modèle simple a été mis au point à l'aide du logiciel Fluent (un logiciel de CFD disponible de l'IJL). Un maillage a été dans un premier temps construit avec le logiciel Gambit, puis exporté sur Fluent pour la partie calcul. La cavité a été modélisée sous la forme d'une sphère d'un mètre de diamètre, à la base de laquelle pénètre un tube (la tuyère) de 0,1 m de diamètre (voir Figure 77). La cavité et la tuyère sont considérées comme des zones de faible densité (fraction de vide = 1). Une couche de solide poreux (image du lit de coke) de 0,05 m entoure l'ensemble de la cavité. Elle permet d'agir sur les pertes de charges entre l'entrée du gaz (entrée de la tuyère) et la sortie (surface extérieure). On fixe une fraction de vide de 0,36 et la résistance visqueuse de manière à obtenir les pertes de charge observées au haut fourneau.

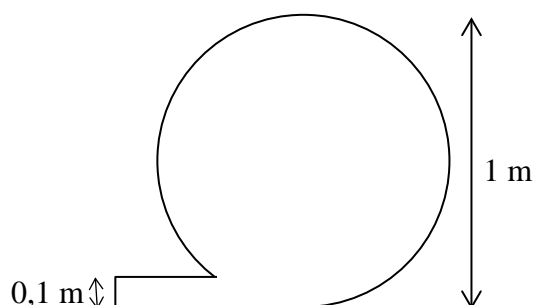


Figure 77 – Schéma de construction du maillage de la cavité et de la tuyère sur Fluent.

Le gaz injecté est un mélange d'air et de méthane, plusieurs fractions de méthane ont été utilisées afin d'obtenir plusieurs températures finales, listées dans le Tableau 110. La température initiale du gaz est de 1200 °C, et son débit de 1,42 kg s⁻¹ (correspondant à une injection classique chez SG PAM). Pour chaque calcul, la valeur du rapport ε/k a été calculée (valeur moyennée sur le volume total de la cavité), également listée dans le tableau suivant.

Tableau 110 – Différents calculs effectués et résultats associés

Fraction molaire CH ₄ [%]	Température de cavité [°C]	ε/k [s ⁻¹]	Temps séjour [ms]
2,5	2030	395	49
3	2130	411	45
3,5	2350	425	42
4,5	2650	453	39

La valeur moyenne ne représente cependant pas fidèlement les phénomènes de mélange qui se déroulent dans la cavité. La visualisation graphique du rapport ε/k sur une coupe verticale (plan de symétrie) de la cavité permet de remarquer que l'essentiel du mélange s'effectue au niveau du point de sortie de l'injection (proche du nez de la tuyère). La Figure 78 montre cette observation, en utilisant une échelle logarithmique, la zone au nez de la tuyère atteignant des valeurs supérieures à 3000 s⁻¹ alors que le reste de la cavité est inférieur à 60 s⁻¹.

Enfin, nous avons créé 50 particules sans masse disposées régulièrement en entrée de tuyère, et leur temps de séjour respectif a été calculé. Une moyenne des temps de séjour des particules a été effectuée pour chaque calcul (Tableau 110). Une valeur de 45 ms a été retenue pour être utilisée dans le modèle Aspen.

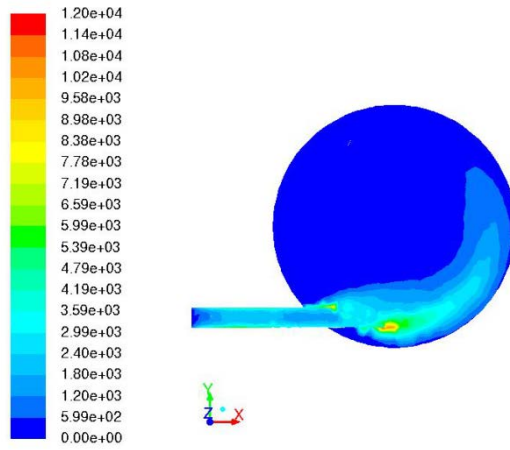


Figure 78 – Valeur du rapport ε/k sur une coupe verticale de la cavité, pour une température de 2030 °C.

Annexe M - Inventaire des émissions et des besoins pour le procédé de traitement de la biomasse

Entrants	Unités	Torréfaction	Carbonisation
Bois	[kg]	1	1
Air	[Nm ³]	17,3	26,0
Eau	[kg]	2	2
Electricité	[MJ]	1	1
CH ₄	[Nm ³]	0	0

Sortants	Unités	Torréfaction	Carbonisation
Biomasse traitée	[kg]	0,348	0,154
Eau sale	[kg]	2	2
H ₂ O	[g]	527,25	617,65
O ₂	[kg]	4,99	7,46
N ₂	[kg]	16,92	25,64
CO	[g]	0,00	0,00
CO ₂	[g]	267,17	546,63
H ₂	[g]	0,00	0,00
HCN	[mg]	0,00	0,00
NH ₃	[mg]	0,00	0,00
CH ₄	[mg]	0,01	0,01
D-LIM-01	[μg]	0,93	0,93
Alpha-Pinene	[μg]	10,68	10,73
Beta-Pinene	[μg]	3,29	3,30
3-Carene	[μg]	2,08	2,09
C ₃ H ₆ O (acétone)	[μg]	2,30	2,31
CH ₂ O	[μg]	0,68	0,69
C ₃ H ₆ O (Ethanol)	[μg]	0,41	0,41
1-HEX-01	[μg]	0,44	0,44
C ₂ H ₂	[μg]	0,00	0,00
C ₂ H ₄	[μg]	0,00	0,00
C ₃ H ₆ O	[μg]	0,00	0,00
Poussières	[g]	1,27	0,72

Annexe N – Composition des charges du haut fourneau (SG PAM 2009-2011)

Composition des combustibles

	<u>Coke</u>	<u>PCI</u>	<u>CdB</u>	<u>Charbon pulvérisé</u>	<u>Biomasse torréfiée pulvérisée</u>
Analyse [% sec]					
Humidité	4	1,15	7,5	7,5	5,5
C-fixe	88,97	80	73,4	73,4	32,4
MV	1,63	14,4	23,0	23,0	66,1
Cendres	9,4	5,6	3,6	3,6	1,5
Analyse élémentaire [% sec]					
C	88,97	84,8	79,1	79,1	56,6
H	0,3	4,26	3,9	3,9	5,6
N	0,8	2,2	0,16	0,16	0,14
S	0,5	0,22	0	0	0
O	0	4,9	13,2	13,2	36,1
Compo. des cendres [% cendres]					
CaO	3,54	7,57			
SiO ₂	46,9	41,02			
Al ₂ O ₃	30,73	27,65			
MgO	3,27	3,27			
P	0,53	0,2			
MnO	0,09	0,01			
Si	0	0			
TiO ₂	0,8	0			
Fe ₂ O ₃	6,6	5,55			
Fe ₃ O ₄	0	0			
Na ₂ O	1,39	0,48			
K ₂ O	2,11	1,38			
Zn	0	0			

Composition des charges minérales

<u>[%]</u>	<u>Aggloméré</u>	<u>Minerai</u>	<u>Refusions</u>	<u>Gueusets</u>	<u>Fondants</u>
Humidité	0,61	1,3	1,1	0,0	0,0
C	0,0	0,0	4,04	4,2	0,0
S	0,0	0,0	0,16	0,09	0,02
CaO	8,9	0,05	6,6	0,0	9,9
SiO ₂	5,8	2,54	9,3	0,0	0,0
Al ₂ O ₃	0,75	1,15	1,1	0,0	1,02
MgO	0,75	0,03	0,55	0,0	0,0
P	0,03	0,07	0,08	0,07	0,0
MnO	0,29	0,06	0,27	0,14	0,05
Si	0,0	0,0	1,6	2,30	0,0
TiO ₂	0,03	0,0	0,0	0,0	0,0
Fe	0,0	0,0	75,3	93,2	80,2
Fe ₂ O ₃	76,0	94,8	0,0	0,0	0,0
Fe ₃ O ₄	6,86	0,0	0,0	0,0	0,0
FeO	0,0	0,0	0,0	0,0	8,87
Na ₂ O	0,0	0,01	0,0	0,0	0,0
K ₂ O	0,02	0,01	0,0	0,0	0,0
Zn	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0

Annexe O – Résultats du modèle du haut fourneau pour les cas alternatifs

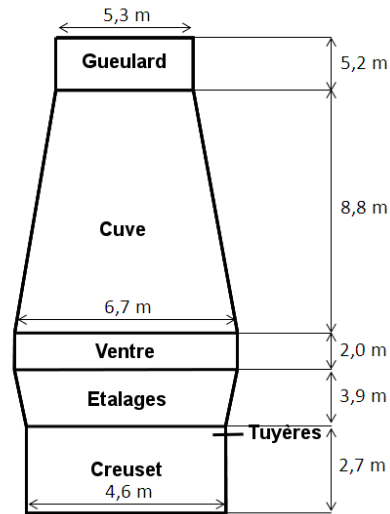


Figure 79 – Cotes d’un haut fourneau de SG PAM à Pont-à-Mousson (NB : échelle non respectée)

Cas 2 - 100 % Coke

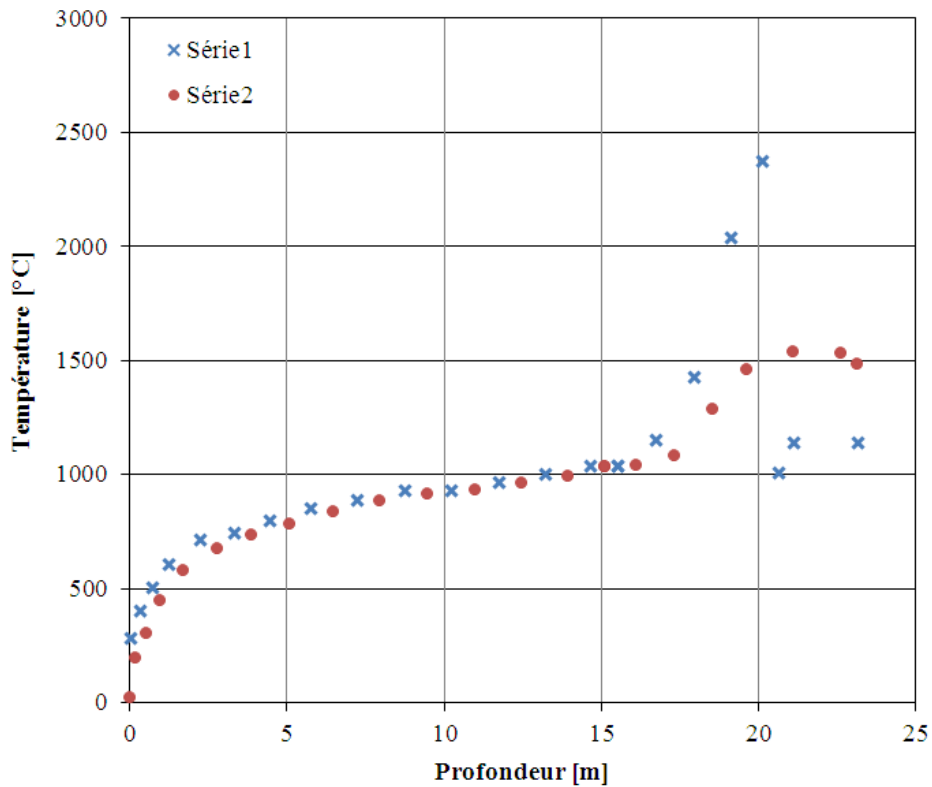


Figure 80 – Courbes de températures des gaz (en bleu) et des solides/liquides (en rouge) calculées par le modèle. Le point 0 m correspond au gueulard, et le point à 20,6 m aux tuyères.

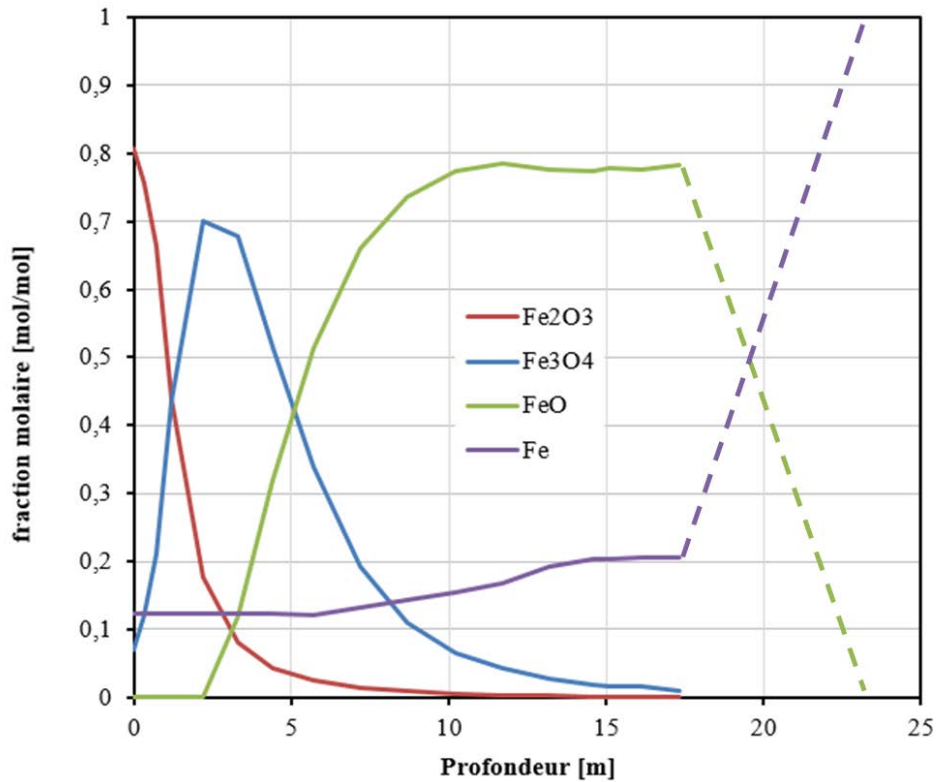


Figure 81 – Evolution des fractions molaires des différents oxydes de fer au cours de la descente des charges dans le haut fourneau.

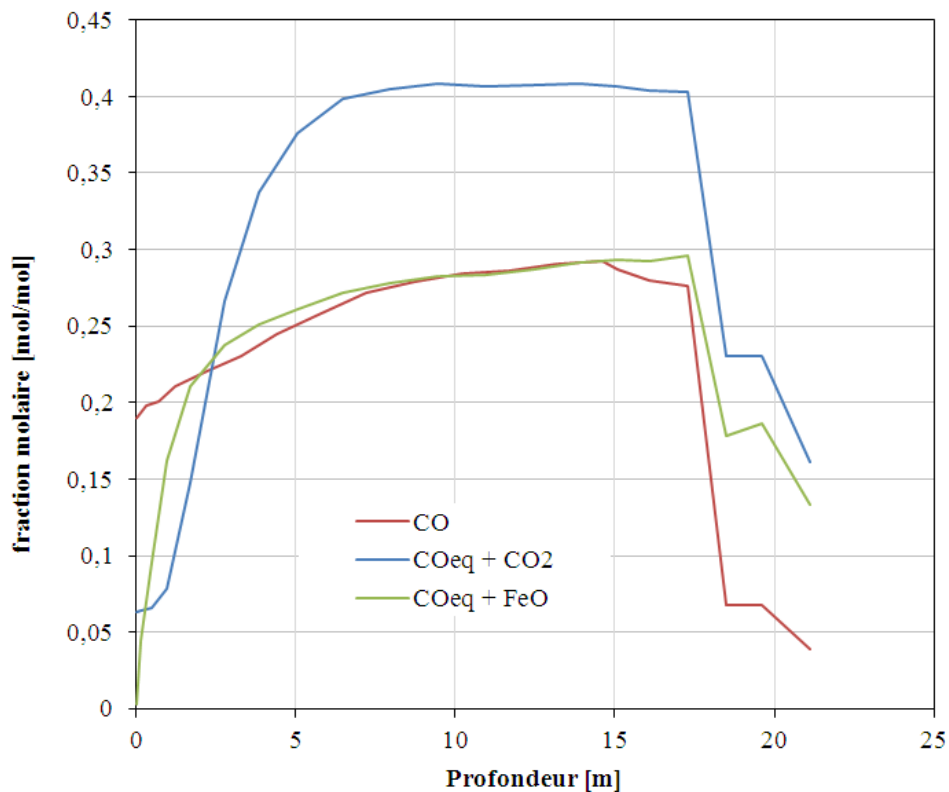


Figure 82 – Evolution de la concentration en CO le long du haut fourneau (en rouge), ainsi que des concentrations à l'équilibre pour les réactions de Boudouard (en bleu) et de réduction de la wüstite (en vert).

Cas 3 - 80 % Coke – 20 % Charbon de bois chargé au gueulard

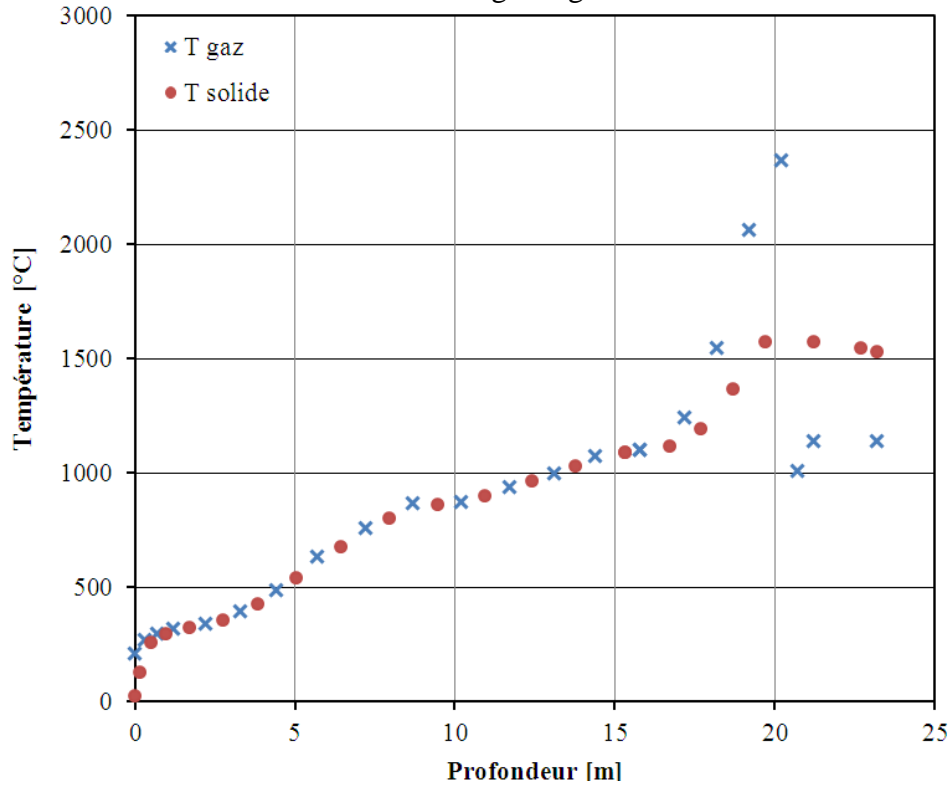


Figure 83 – Courbes de températures des gaz (en bleu) et des solides/liquides (en rouge) calculées par le modèle. Le point 0 m correspond au gueulard, et le point à 20,6 m aux tuyères.

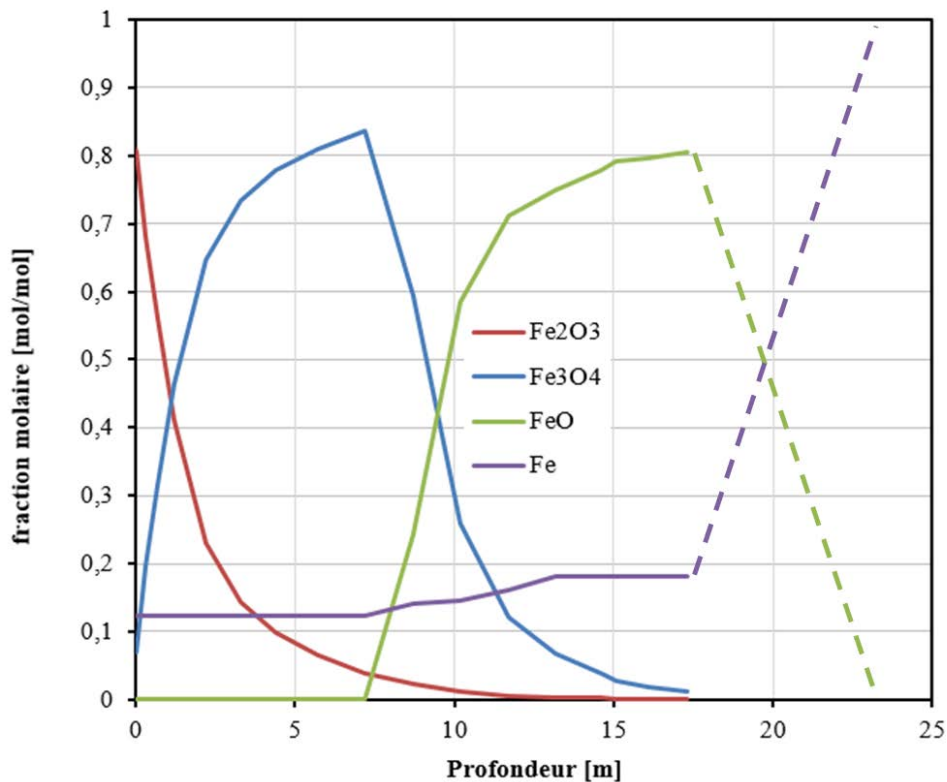


Figure 84 – Evolution des fractions molaires des différents oxydes de fer au cours de la descente des charges dans le haut fourneau.

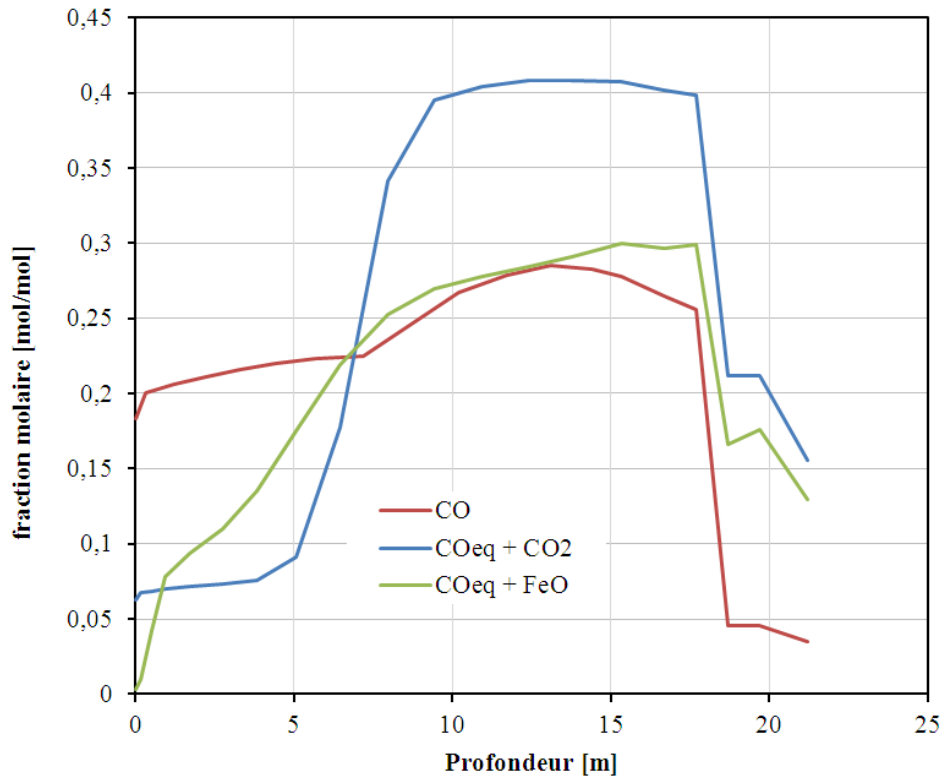


Figure 85 – Evolution de la concentration en CO le long du haut fourneau (en rouge), ainsi que des concentrations à l'équilibre pour les réactions de Boudouard (en bleu) et de réduction de la wüstite (en vert).

Cas 4 - 80 % Coke – 20 % biomasse carbonisée pulvérisée aux tuyères

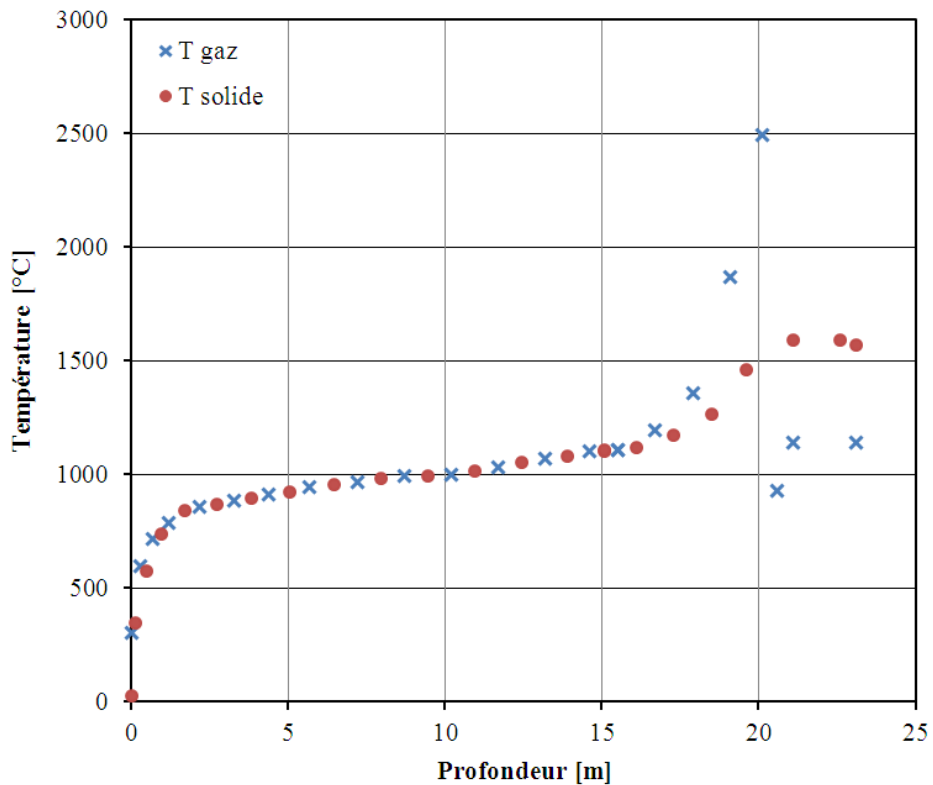


Figure 86 – Courbes de températures des gaz (en bleu) et des solides/liquides (en rouge) calculées par le modèle. Le point à 0 m correspond au gouillard, et le point à 20,6 m aux tuyères.

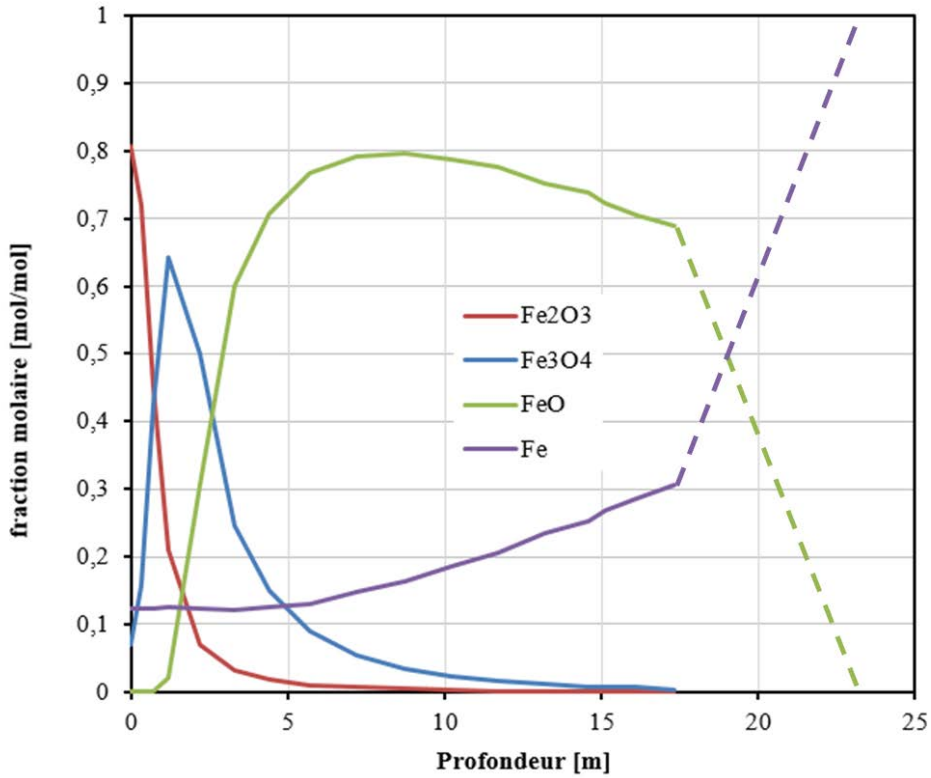


Figure 87 – Evolution des fractions molaires des différents oxydes de fer au cours de la descente des charges dans le haut fourneau.

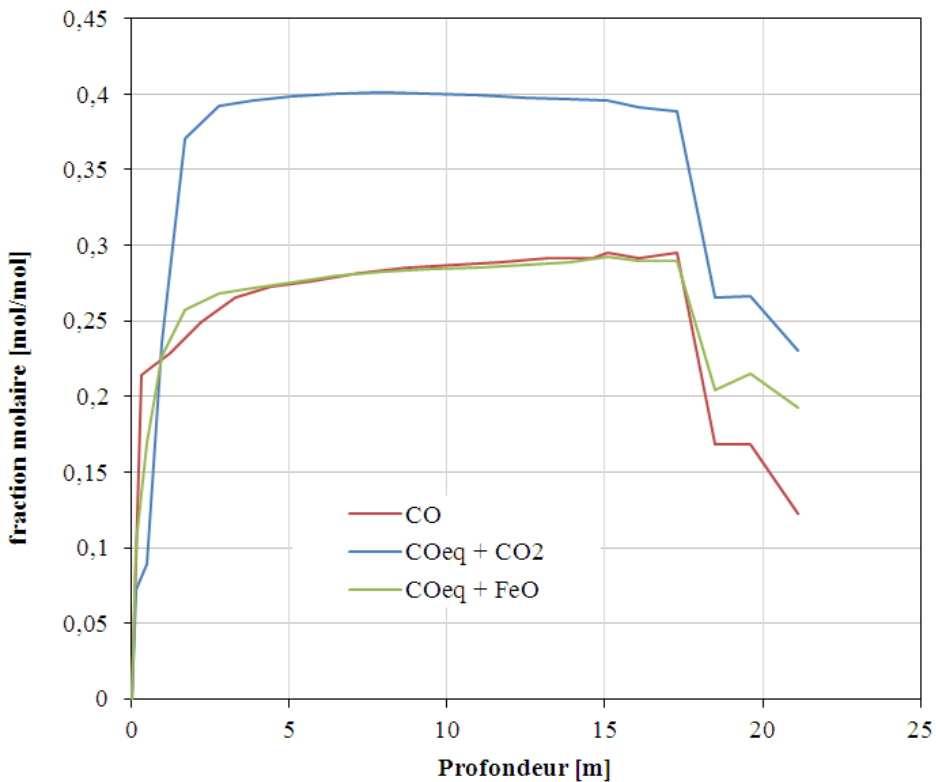


Figure 88 – Evolution de la concentration en CO le long du haut fourneau (en rouge), ainsi que des concentrations à l'équilibre pour les réactions de Boudouard (en bleu) et de réduction de la wüstite (en vert).

Cas 5 - 80 % Coke – 20 % biomasse torréfiée pulvérisée aux tuyères

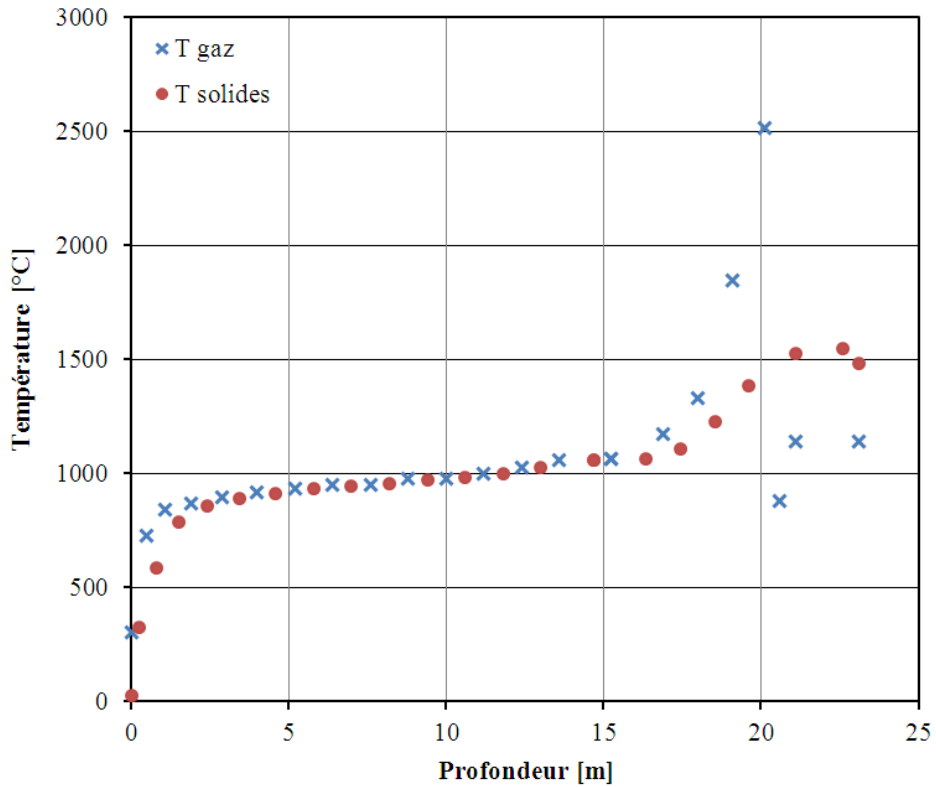


Figure 89 – Courbes de températures des gaz (en bleu) et des solides/liquides (en rouge) calculées par le modèle. Le point 0 m correspond au gueulard, et le point à 20,6 m aux tuyères.

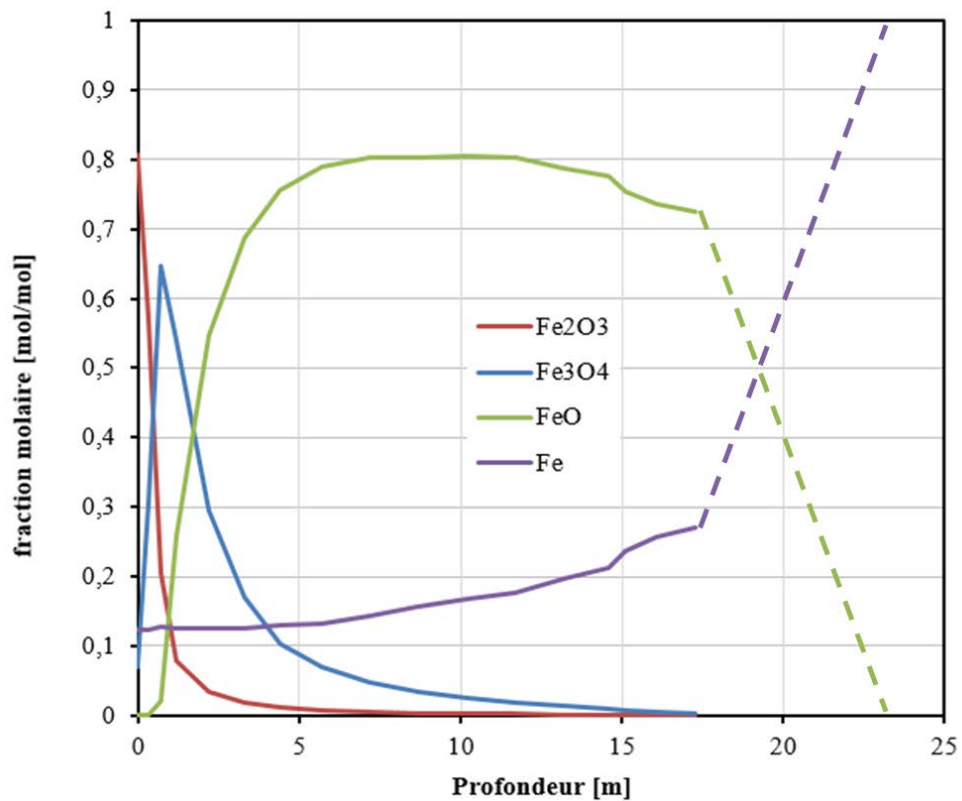


Figure 90 – Evolution des fractions molaires des différents oxydes de fer au cours de la descente des charges dans le haut fourneau.

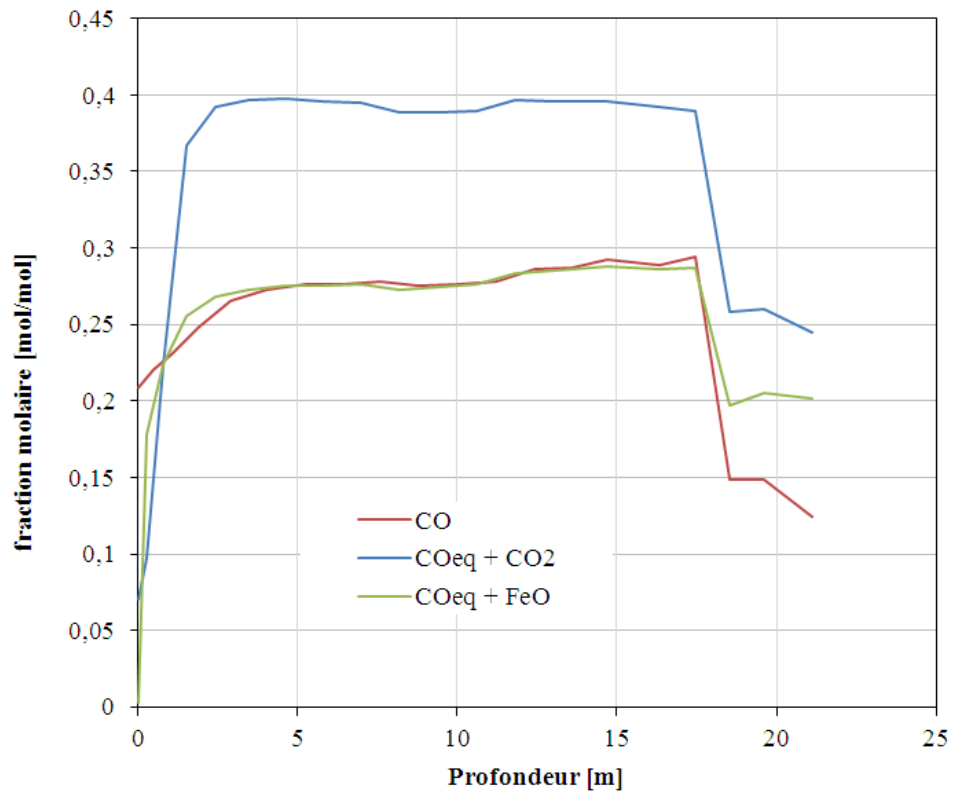


Figure 91 – Evolution de la concentration en CO le long du haut fourneau (en rouge), ainsi que des concentrations à l'équilibre pour les réactions de Boudouard (en bleu) et de réduction de la wüstite (en vert).

Annexe P – Inventaires des gaz de gueulard et des poussières issues du haut fourneau

Compositions du gaz de gueulard pour les différents cas étudiés

		Cas 1	Cas 2	Cas 3	Cas 4	Cas 5
CO	[kg t ⁻¹ fonte]	430,6	393,1	419,6	439,6	473,6
CO ₂	[kg t ⁻¹ fonte]	634,0	683,8	653,2	631,2	655,6
N ₂	[kg t ⁻¹ fonte]	1166,6	1166,7	1164,4	1160,2	1160,9
O ₂	[kg t ⁻¹ fonte]	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
H ₂ O	[kg t ⁻¹ fonte]	60,9	36,3	61,0	67,5	116,2
H ₂	[kg t ⁻¹ fonte]	2,6	1,4	6,76	2,7	3,8
CH ₄	[kg t ⁻¹ fonte]	0,0	0,0	0,037	0,0	0,0
Cl ₂	[kg t ⁻¹ fonte]	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
SO ₂	[kg t ⁻¹ fonte]	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
Goudrons	[kg t ⁻¹ fonte]	0,0	0,0	8,6	0,0	0,0

Composition des poussières émises au gueulard

		Cas 1	Cas 2	Cas 3	Cas 4	Cas 5
C	[g t ⁻¹ fonte]	1329,8	1329,8	1329,8	1329,8	1329,8
Fe ₂ O ₃	[g t ⁻¹ fonte]	913,7	913,7	913,7	913,8	913,8
CaO	[g t ⁻¹ fonte]	112,8	112,8	135,3	112,8	112,8
MgO	[g t ⁻¹ fonte]	15,6	15,6	60,7	15,6	15,6
SiO ₂	[g t ⁻¹ fonte]	233,8	233,8	459,3	233,8	233,8
Al ₂ O ₃	[g t ⁻¹ fonte]	76,5	76,5	234,4	76,5	76,5
K ₂ O	[g t ⁻¹ fonte]	9,6	9,6	9,6	9,6	9,6
TiO ₂	[g t ⁻¹ fonte]	29,9	29,9	29,9	29,9	29,9

Composition des fumées issues des cowpers du haut fourneau pour chacun des cas

		Cas 1	Cas 2	Cas 3	Cas 4	Cas 5
CO	[g t ⁻¹ fonte]	10,6	18,5	6,0	10,2	8,7
CO ₂	[kg t ⁻¹ fonte]	508,7	525,5	473,1	509,8	497,2
N ₂	[kg t ⁻¹ fonte]	851,7	853,8	859,6	848,5	823,7
O ₂	[kg t ⁻¹ fonte]	6,5	2,3	17,6	7,0	9,2
H ₂ O	[kg t ⁻¹ fonte]	41,0	34,1	51,3	42,6	60,8
H ₂	[μg t ⁻¹ fonte]	63,4	89,3	48,3	63,5	78,6
NO	[g t ⁻¹ fonte]	189,1	112,0	310,9	194,2	220,3
N ₂ O	[μg t ⁻¹ fonte]	14,3	8,5	23,4	14,6	16,3
HCl	[g t ⁻¹ fonte]	37,5	38,7	34,6	37,4	34,5
NO ₂	[μg t ⁻¹ fonte]	257,4	90,2	692,1	273,0	356,8

Utilisation du gaz de gueulard aux cowpers

		Cas 1	Cas 2	Cas 3	Cas 4	Cas 5
PCI	[MJ Nm ⁻³]	2,74	2,66	2,89	2,78	2,90
fraction énergétique GG*	[%]	89,4	82,2	90,0	90,7	90,1
fraction GG utilisée aux cowpers**	[%]	37,9	38,9	35,2	37,8	34,7

* Correspond au rapport de l'énergie du gaz de gueulard utilisé aux cowpers sur l'énergie totale utilisée aux cowpers (gaz gueulard + gaz naturel). Cette fraction énergétique est calculée de manière à assurer une température finale de combustion du gaz de gueulard + gaz naturel égale à 1175 °C, et ce pour obtenir une température de vent de 1141 °C.

** Le reste du gaz de gueulard est utilisé en aval dans l'usine de production de tuyaux. La fraction calculée correspond à la quantité minimale nécessaire afin de chauffer le vent, une température de gaz d'échappement de 200 °C en sortie de cowpers étant obtenue.

Annexe Q – ICV du processus de fabrication de tuyaux

Tableau 111 - Tableaux d'entrées et de sorties du processus global de fabrication de tuyaux à partir de la fonte liquide

Entrées	Unité	Valeur
Noir de carbone	[kg]	0,732
Résine époxy	[kg]	1,375
Ferrosilicium	[kg]	0,381
Feuillards électrozingués	[kg]	0,094
Ferraille	[kg]	25,98
Castine	[kg]	6,78
Fonte liquide	[kg]	390
Magnésium	[kg]	0,181
Gaz naturel	MJ	765
Coke de pétrole	[kg]	0,020
Electricité	MJ	410
Résine formo-phénolique	[kg]	0,229
Sable	[kg]	0,112
Zinc	[kg]	2,53
Eau	[kg]	2531

Sorties	Unité	Valeur
Tuyau	[-]	1
CO ₂	[kg]	43,1
CO	[kg]	0,011
Poussières	[kg]	0,075
Déchets fonte	[kg]	26,1
NO _x	[kg]	0,181
Boues	[kg]	27,93
SO _x	[kg]	0,188
COV	[kg]	0,114
Eau sale	[kg]	2531
Emissions de zinc à l'air (métaux lourds)	[kg]	0,001
Déchets zinc	[kg]	1,017

Les processus de production ou d'extraction ainsi que le transport des entrants ont également été pris en compte. Ils ont été sélectionnés dans la base de données Ecoinvent v2.0. Pour les étapes de transport, les paramètres utilisés ont été listés dans le Tableau 112.

Tableau 112 - Distances associées au transport des entrants (données en km)

Entrées	Route	Bateau
Noir de carbone	500	0
Résine époxy	430	0
Ferrosilicium	550	0
Feuillards électrozingués	100	0
Ferraille	30	0
Castine	65	0
Fonte liquide	0	0
Magnésium	500	5000
Gaz naturel	0	0
Coke de pétrole	500	0
Electricité	0	0
Résine formo-phénolique	430	0
Sable	65	0
Zinc	260	0
Eau	0	0

Annexe R – Allocations pour le haut fourneau

Il s'agit ici d'évaluer les méthodes envisageables pour la répartition des impacts entre la fonte et le laitier produit dans le haut fourneau. Le cas considéré ici est le cas de référence (marche du fourneau avec 80 % de coke, la charge étant complétée par du charbon fossile injecté aux tuyères) ; pour chaque tonne de fonte, 295 kg de laitier sont alors produits.

Aucun produit similaire au laitier ne peut être fabriqué par un autre procédé, et il n'est pas physiquement possible de dissocier la production de laitier de la production de fonte puisqu'elles sont toutes deux issues du haut fourneau. Il est donc nécessaire d'utiliser une méthode d'allocation. Jolliet et coll. préconisent l'emploi, tant que possible, de méthodes d'allocation basées sur des critères physiques. Deux méthodes sont alors envisageables : une méthode par variations marginales, et une méthode basée sur une propriété reflétant la causalité physique.

Une allocation par la méthode des variations marginales consiste à faire varier les entrées du processus afin de faire varier la proportion entre le produit et le coproduit. On peut ainsi en déduire la part à associer à l'un et à l'autre des produits. Dans le cas du haut fourneau, il est possible de faire varier la composition des entrants (plus ou moins d'aggloméré/plus ou moins de minerai de fer) afin de faire varier la quantité de laitier produite, la consommation en coke en est alors modifiée, et les émissions de CO₂ également. Pour simplifier le calcul, trois cas mesurés chez SG PAM (Tableau 113) ont été exploités, un cas de référence (le cas utilisé pour les calculs de la partie modélisation et ACV) et deux cas supplémentaires, à partir desquels les variations d'émissions de CO₂ et de production de laitier sont calculés.

Tableau 113 – Paramètres d'entrée et sorties du haut fourneau pour trois cas de SG PAM. Les paramètres d'entrée sont issus de mesures SG PAM. La quantité de CO₂ émise et la quantité de laitier produite sont ici issus de calculs basiques basés sur un bilan de matière.

		Cas de référence	1	2
Entrées				
Coke	[kg t ⁻¹ fonte]	353,0	392,0	408,0
Aggloméré	[kg t ⁻¹ fonte]	1294,0	1357,0	1535,0
Minerai de fer	[kg t ⁻¹ fonte]	99,0	58,0	0,0
Refusions	[kg t ⁻¹ fonte]	132,0	108,0	41,0
Fondant	[kg t ⁻¹ fonte]	85,0	82,0	96,0
PCI	[kg t ⁻¹ fonte]	108,0	62,0	102,0
O ₂ (vent)	[kg t ⁻¹ fonte]	348,0	348,0	348,0
Sorties				
CO ₂ émis	[kg t ⁻¹ fonte]	1248,6	1225,5	1397,0
Fonte liquide	[kg t ⁻¹ fonte]	1000	1000	1000
Laitier	[kg t ⁻¹ fonte]	294,9	287,1	343,6
Variation laitier / ref.	[-]	0	-0,027	0,17
Variation CO ₂ / ref.	[-]	0	-0,018	0,12

En prenant x_f et x_l les fractions d'attribution des émissions respectivement à la fonte et au laitier, on a :

$$x_f + x_l = 1$$

Après variation des entrées pour faire varier le ratio laitier/fonte (cas 1 et 2) :

$$\frac{dm_f}{m_f} x_f + \frac{dm_l}{m_l} x_l = \frac{dm_{CO2}}{m_{CO2}}$$

Pour le cas 1 : $-0,027x_l = -0,018$

Pour le cas 2 : $0,17x_l = 0,12$

Ce qui donne en moyenne $x_l = 0,71$ et $x_f = 0,29$.

La seconde méthode s'appuie sur le rapport d'une propriété physique des produits/coproduits. Dans notre cas, seule une allocation massique est adaptée (les produits n'ont pas de valeur énergétique), il s'agit alors de pondérer l'attribution des impacts par la fraction massique des produits : 77 % pour la fonte, 23 % pour le laitier. Ce résultat donne des ordres de grandeurs inverses des précédents.

Dans le cadre d'un système industriel, une allocation économique peut être préférable. Dans ce cas, il est nécessaire de disposer de données économiques concernant les produits. Généralement, deux principales applications sont attribuées au laitier « produit », à savoir pour l'utilisation en ballast (cas de laitier séché à l'air libre) ou pour valorisation en cimenterie (cas de laitier séché rapidement pour former des granulés). Le premier type de laitier correspond au coproduit des fourneaux de SG PAM. Si une allocation économique est considérée, une estimation des prix de la fonte et du type de laitier (respectivement 300 et 6 €t⁻¹) permet d'établir que 99,5 % de la valeur économique des produits (solides) du haut fourneau est attribuée à la fonte, la part du laitier est donc négligeable.

Annexe S – Principaux résultats d’ACV pour une tonne de fonte

Les limites et la fonction du système n’étant pas modifiées, les résultats de l’ACV exprimés pour une tonne de fonte liquide sont proportionnels aux résultats donnés dans le manuscrit, un rapport 0,389 est utilisé. Celui-ci correspond à la quantité de fonte nécessaire à la production d’un tuyau 400x6000. La Figure 92 et le Tableau 114 représentent ces différents résultats.

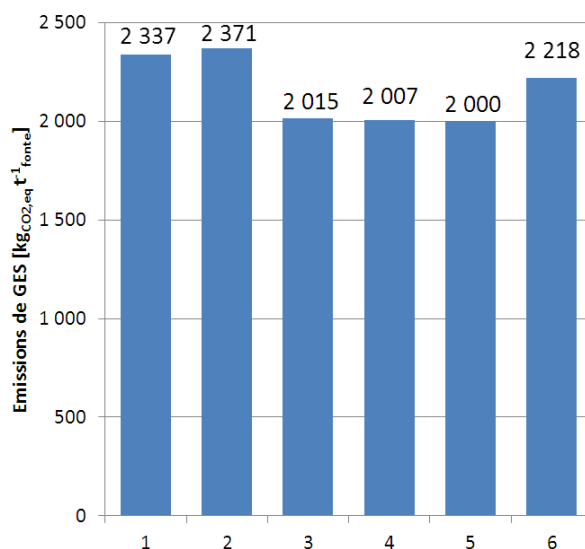


Figure 92 – Emissions de GES totales pour tous les scénarios, exprimées pour une tonne de fonte liquide.

Tableau 114 – Tableau de répartition des émissions de GES (anthropogéniques) par poste et par scénario, exprimées pour une tonne de fonte liquide. (valeurs exprimées en kg_{CO_{2,eq}} t⁻¹ fonte)

	Total	Agglomération	Cokerie	Extraction	Fabrication de tuyau	Haut fourneau	Torchères	Plantation	Traitement	Transport
1	2337,1	302,5	45,0	247,5	229,5	553,4	854,3	0,0	0,0	104,9
2	2370,8	302,5	56,3	248,2	229,5	570,5	858,0	0,0	0,0	105,8
3	2015,3	302,5	45,0	206,4	229,5	398,2	708,9	6,1	12,1	108,4
4	2006,8	302,5	45,0	206,2	229,5	432,5	667,4	5,7	11,5	108,1
5	2000,1	302,5	45,0	206,4	229,5	406,2	692,0	4,2	8,5	107,0
6	2218,0	315,6	56,3	232,0	229,5	570,5	858,0	3,0	6,4	108,0

Si on considère le système fonctionnel « production d’une tonne de fonte liquide » sans prise en compte des étapes aval (fabrication du tuyau), les émissions totales de GES associées à chaque scénario sont données dans le tableau suivant :

Tableau 115 – Emissions de GES (anthropogéniques) pour chaque scénario, la part liée au poste de production du tuyau n’étant pas prise en compte. (valeurs exprimées en kg_{CO_{2,eq}} t⁻¹ fonte)

1	2	3	4	5	6
2107,7	2141,4	1785,8	1777,3	1770,7	2107,7

Annexe T – Tableaux de résultats d’ACV

Emissions de gaz à effet de serre exprimées en [kg_{CO2eq} tuyau⁻¹] (méthode CML)

	Total	Agglomération	Cokerie	Extraction	Fabrication tuyau	Haut fourneau	Torchères	Plantation	Traitement	Transport
1	909,9	117,8	17,5	96,4	89,3	215,5	332,6	0,0	0,0	40,8
2	923,0	117,8	21,9	96,6	89,3	222,1	334,0	0,0	0,0	41,2
3	785,3	117,8	17,5	80,3	89,3	155,0	276,0	2,4	4,7	42,2
4	781,9	117,8	17,5	80,3	89,3	168,4	259,8	2,2	4,5	42,1
5	779,2	117,8	17,5	80,4	89,3	158,2	269,4	1,6	3,3	41,7
6	866,0	62,5	21,9	90,3	89,3	222,1	334,0	1,2	2,5	42,0

Emissions de gaz à effet de serre exprimées en [kg_{CO2eq} tuyau⁻¹] (méthode Impact 2002+)

	Total	Agglomération	Cokerie	Extraction	Fabrication tuyau	Haut fourneau	Torchères	Plantation	Traitement	Transport
1	886,2	138,6	17,6	51,6	89,9	215,4	332,6	0,0	0,0	40,4
2	902,7	138,6	21,9	54,9	89,9	222,1	334,0	0,0	0,0	41,2
3	771,9	138,6	17,6	46,1	89,9	155,0	276,0	2,4	4,5	41,8
4	768,6	138,6	17,6	46,1	89,9	168,4	259,8	2,2	4,3	41,7
5	765,9	138,6	17,6	46,1	89,9	158,1	269,4	1,6	3,2	41,3
6	845,2	79,3	21,9	52,7	89,9	222,1	334,0	1,2	2,4	41,6

Caractérisation des impacts (méthode CML 2001) exprimés en [%], la référence étant le cas 2 (100 % coke)

	1	2	3	4	5	6
Utilisation des ressources abiotiques	15,9	16,4	13,9	13,9	13,8	15,6
Acidification	5,8	6,1	6,2	5,9	5,9	5,3
Eutrophisation	4,1	4,3	4,6	4,2	4,2	3,9
Changement climatique	57,4	58,5	50,9	50,7	50,5	56,1
Destruction de l’ozone stratosphérique	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
Formation de photo-oxydants	12,4	14,1	12,5	12,4	12,4	14,4
Radiation ionisante	0,6	0,7	1,2	1,2	1,0	0,9

Caractérisation des impacts (méthode Impact 2002+) exprimés en [%], la référence étant le cas 2 (100 % coke)

	1	2	3	4	5	6
Ecotoxicité aquatique	6,2	6,6	6,4	6,3	6,2	6,7
Cancérogène	46,9	58,5	46,9	46,9	46,9	58,5
Changement climatique	5,1	5,2	4,6	4,5	4,5	5,0
Radiation ionisante	1,1	1,1	2,0	2,0	1,7	1,4
Occupation des sols	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
Extraction minéraux	5,3	5,4	5,6	5,6	5,5	5,5
Non-cancérogène	1,5	1,6	1,5	1,5	1,5	1,6
Extraction d’énergie (non renouvelable)	3,5	3,6	3,4	3,4	3,3	3,5

Destruction de l'ozone stratosphérique	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
Formation de photo-oxydants	4,8	5,8	4,8	4,8	4,8	6,2
Effets respiratoires	9,0	9,8	9,2	9,1	9,1	9,7
Acidification	1,9	2,0	2,1	2,0	2,0	1,8
Ecotoxicité terrestre	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4

Evaluation des dommages (méthode Impact 2002+) exprimés en [%], la référence étant le cas 2 (100 % coke)

	1	2	3	4	5	6
Santé humaine	38,2	41,2	39,2	38,5	38,5	40,8
Qualité des écosystèmes	1,5	1,6	1,6	1,6	1,5	1,5
Changement climatique	23,0	23,4	20,0	19,9	19,9	21,9
Ressources	18,0	18,5	16,8	16,8	16,5	18,1

Annexe U – Facteurs de caractérisation des dommages et de normalisation utilisés

Les tableaux suivants listent les facteurs de caractérisation des dommages et de normalisation de la méthode IMPACT 2002+ pour l'Europe de l'Ouest. Toutes ces valeurs sont issues de (Jolliet O. et coll. 2003)

Catégorie d'impact	Facteur de dommages	Unités
Cancérogènes	$1,45^{E-06}$	DALY $\text{kg}^{-1}_{\text{C2H4Cl}}$
Non-cancérogènes	$1,45^{E-06}$	DALY $\text{kg}^{-1}_{\text{C2H4Cl}}$
Effets respiratoires	$7,0^{E-04}$	DALY $\text{kg}^{-1}_{\text{PM2.5}}$
Appauvrissement de la couche d'ozone	$1,05^{E-03}$	DALY $\text{kg}^{-1}_{\text{CFC11}}$
Rayonnement ionisant	$2,10^{E-10}$	DALY $\text{kg}^{-1}_{\text{BqC14}}$
Ecotoxicité aquatique	$8,86^{E-05}$	PDF $\text{m}^2 \text{a} \text{kg}^{-1}_{\text{TEG}}$
Ecotoxicité terrestre	$8,86^{E-05}$	PDF $\text{m}^2 \text{a} \text{kg}^{-1}_{\text{TEG}}$
Acidification terrestre	1,04	PDF $\text{m}^2 \text{a} \text{kg}^{-1}_{\text{SO2}}$
Occupation des sols	1,09	PDF $\text{m}^2 \text{a} \text{m}^{-2}_{\text{arable}} \text{a}^{-1}$
Changement climatique	1	$\text{kg}_{\text{CO2}} \text{kg}^{-1}_{\text{CO2}}$
Utilisation minéraux	$5,10^{E-02}$	MJ $\text{kg}^{-1}_{\text{fer}}$
Utilisation ressources énergétiques	45,6	MJ $\text{kg}^{-1}_{\text{petrole brut}}$










Catégorie de dommage	Facteur de normalisation	Unités
Santé humaine	0,0077	DALY $\text{pers}^{-1} \text{a}^{-1}$
Qualité des écosystèmes	4650	PDF $\text{m}^2 \text{a} \text{pers}^{-1} \text{a}^{-1}$
Changement climatique	9950	$\text{kg}_{\text{CO2}} \text{pers}^{-1} \text{a}^{-1}$
Ressources	152000	MJ $\text{pers}^{-1} \text{a}^{-1}$

Annexe V – Présentation des principaux réacteurs d'Aspen Plus

Aspen Plus est un logiciel de la gamme de logiciels AspenTech. Il permet de réaliser des modélisations systémiques de procédés principalement chimiques, mais également physiques, sur la base de diagrammes de flux. Le principe est de connecter des réacteurs réalisant des réactions chimiques ou processus physiques avec des flux.

Trois types de flux peuvent être utilisés : des flux de matières, les flux de chaleurs et les flux de travail. Les flux de matières sont définis par un mélange de trois « phases » : une phase mixed (correspondant à des produits liquides ou gazeux), une phase « solide conventionnel » (mélange d'éléments solides) et une phase de solide « non conventionnel » (pour les solides ou composés non définis comme le charbon ou la biomasse). A chaque phase doivent être associés une quantité de matière, une composition, une température et une pression. Les flux de chaleurs et de travail sont plus simples puisqu'il suffit d'y associer une énergie.

Le logiciel Aspen dispose de nombreux types de réacteurs différents, nous n'aborderons que les réacteurs utilisés dans notre étude :

Nom	Schéma	Fonction
Mixer		Mélangeur de flux. Sans réglage complémentaire, il calcule la température de mélange de plusieurs flux de matières et adopte la pression la plus faible des flux entrants.
FSPLIT		Diviseur de flux. Il permet de diviser un flux en plusieurs flux de composition identique et pour un taux de séparation fixé par l'utilisateur.
Heater		Echangeur. Selon les réglages, il permet d'imposer une température ou d'ajouter un flux de chaleur à un flux de matière. Il peut également servir de mélangeur.
RYIELD		Réacteur. Convertit l'intégralité du flux de matière entrant en produits dont la composition est fixée par l'utilisateur.
RSTOIC		Réacteur stœchiométrique. Réalise une ou plusieurs réactions chimiques dont la stœchiométrie et le degré d'avancement sont fixés par l'utilisateur.
SEP		Séparateur de matière. Permet de séparer les différents éléments d'un flux de matières et de les diriger vers des flux de sorties différents.
Exchanger		Echangeur de chaleur. Réalise des échanges de chaleur entre deux flux de matière, un flux chaud et un flux froid. Différents réglages permettent de réaliser des échangeurs co-courant ou contre-courant. Plusieurs informations peuvent être fournies par l'utilisateur : le coefficient de transfert, la surface de contact, température de sortie de l'un des flux...
RGIBBS		Réacteur à équilibre de Gibbs. Il permet de calcul l'état (composition, température) de sortie d'un mélange de matières à l'équilibre de Gibbs et pour une gamme de produits possible donnée par l'utilisateur.
Pump		Permet de modifier la pression d'un flux de matière, calcule l'énergie électrique associée à la compression.

Une partie des données de l'utilisateur peut également être fixée au sein de chaque bloc par l'intermédiaire d'un calculateur programmé en Fortran ou bien piloté par un fichier Excel.

Résumé

Analyse environnementale de l'utilisation de biomasse pour la production de tuyaux en fonte

Les émissions élevées de CO₂ de la filière industrielle de fabrication des tuyaux en fonte résultent pour l'essentiel de l'emploi massif de carbone fossile, charbon et coke, comme combustible et agent réducteur dans les procédés. Substituer du carbone issu de biomasse au carbone fossile en vue de réduire ces émissions de CO₂, avec application au cas d'une usine lorraine, a été l'idée de départ de ce travail.

Différents types de biomasse ont été envisagés. Le bois et la paille seraient localement disponibles en quantité suffisante pour autoriser une substitution partielle de 20 % du coke. Cette biomasse doit cependant être traitée thermiquement (séchage et pyrolyse) avant de satisfaire les spécifications techniques imposées par les procédés métallurgiques (agglomération, cokerie, haut fourneau). Six scénarios d'usage de la biomasse au haut fourneau ou à l'agglomération ont été sélectionnés.

Pour les évaluer sur la base de leur mérite environnemental, nous avons réalisé une analyse de cycle de vie comparative en suivant une approche du type berceau à la porte.

Point original de notre étude, l'inventaire de cycle de vie est issu de modèles systémiques des principaux procédés, spécifiquement développés et intégrés à un logiciel de diagrammes de flux. Grâce à ces modèles et notamment celui du haut fourneau, on a pu déterminer les taux de remplacement du coke par trois types de biomasse (charbon de bois en blocs, charbon de bois pulvérisé, bois torréfié pulvérisé) et prédire les modifications de fonctionnement qu'entraînerait l'injection de biomasse.

Les résultats de l'analyse de cycle de vie montrent que l'injection de bois, carbonisé ou torréfié, sous forme pulvérisée aux tuyères du haut fourneau serait une solution intéressante d'un point de vue environnemental : baisse des émissions de gaz à effet de serre (-15 %) et des impacts sur la santé humaine et sur les écosystèmes. A l'heure actuelle cependant, le coût économique d'une telle solution demeure excessif.

Mots-clés : fonte, biomasse, ACV, CO₂, impacts environnementaux, modélisation

Abstract

Environmental assessment of biomass use for pig iron pipes production

High CO₂ emissions from the industrial production of pig iron pipes are mainly due to the massive use of fossil carbon, coal and coke, as a fuel and/or a reducing agent in the processes. The use of biogenic carbon as a substitute for fossil carbon in order to reduce the CO₂ emissions, in the case of an existing plant in Lorraine, was the starting point of our work.

Different types of biomass were investigated. Local resources for wood and straw would be sufficient for a partial substitution for 20% of the coke. However, this kind of biomass should first undergo a thermal pretreatment step (drying and pyrolysis) to fit the technical requirements for the metallurgical processes (sinter plant, coke oven and blast furnace). Four scenarios of using biomass in the blast furnace or at the sinter plant were selected.

To evaluate their environmental performances, we produced a comparative life cycle assessment, using a cradle-to-gate approach.

An original feature of our study lies in the use of systems modeling for the determination of the life cycle inventories of the main processes, which were modeled using a flowsheeting software. From these models, particularly the model of the blast furnace, we could evaluate the replacement ratio of three biomass types (charcoal lumps, charcoal fines and torrefied wood fines) for the coke and predict the influence of biomass injection in the blast furnace on its operation.

The results of the life cycle assessment show that the injection of pulverized, torrefied or carbonized, wood through the tuyeres of the blast furnace would be an attracting solution from an environmental point of view. It would reduce greenhouse gas emissions by 15%, as well as mitigate the impacts on human health and ecosystems. Yet, the costs associated to such a solution are currently too high.

Key-words: pig iron, biomass, LCA, CO₂, environmental impacts, modeling
