



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>



UNIVERSITE DE LORRAINE

ECOLE DOCTORALE EMMA

THESE

Pour l'obtention du titre de

DOCTEUR de L'UNIVERSITE DE LORRAINE

Spécialité : Mécanique et Energétique

Présentée par

Benjamin Cluet

Soutenue le 12 décembre 2014

Evaluation de la ségrégation de la biomasse dans un lit fluidisé et modélisation globale du procédé de gazéification

Composition du Jury :

Rapporteurs :

Raffaella Ocone Professeur, Université Heriot Watt, Edimbourg, Royaume-Uni

Khashayar Saleh Professeur, Université de Technologie de Compiègne, France

Examineurs :

Olivier Authier Ingénieur, EDF R&D, Chatou, France

Arnaud Delebarre Professeur, LEMTA, Nancy, France

Guillain Mauviel Maître de conférences, Université de Lorraine, Nancy, France

Sabine Rode Professeur, Université de Lorraine, Nancy, France

Yann Rogauze Professeur, Université de Lorraine, Epinal, France

Frédéric Topin Maître de conférences, Université de Aix-Marseille, France

Invités :

Thierry Gauthier IFPEN, Solaize, France

Laurent Van de steene CIRAD, Montpellier, France

Sommaire

Remerciements.....	7
Introduction	11
Chapitre I : Contexte, bibliographie et objectifs.....	13
I. Contexte énergétique	13
I.1 Monde.....	13
I.2 France	15
II. Biomasse-énergie	19
II.1 Définition et caractérisation de la biomasse	19
II.2 Voies de conversion thermochimique pour la cogénération.....	23
II.3 Gazéification en lit fluidisé bouillonnant (LFB)	25
III. Hydrodynamique d'un lit fluidisé.....	29
III.1 Régimes de fluidisation	29
III.2 Vitesse minimum de fluidisation (U_{mf}).....	36
III.3 Distributeur du gaz de fluidisation	39
III.4 Mélange et ségrégation de solides.....	42
III.5 Méthodes de mesure dans un LFB.....	50
IV. Modélisation d'un LFB de gazéification	55
IV.1 Hydrodynamique.....	55
IV.2 Réactions chimiques	66
Chapitre II : Matériels et méthodes	71
I. Maquette froide.....	71
I.1 Conception.....	71
I.2 Système d'alimentation en air	73
I.3 Distributeur d'air	75
I.4 Corps du réacteur.....	77
I.5 Instrumentation.....	80
I.6 Gamme de fonctionnement.....	80
II. Matériau de lit.....	81
II.1 Préparation	81
II.2 Masse volumique et porosité	84

II.3 Granulométrie	87
II.4 Forme	92
II.5 Vitesse minimum de fluidisation et classification de Geldart	95
III. Biomasses	98
III.1 Préparation.....	98
III.2 Masse volumique.....	99
III.3 Forme.....	100
III.4 Technique d'imprégnation à l'azote liquide	103
IV. Campagnes d'essais	106
IV.1 Principe.....	106
IV.2 Fluidisation de l'olivine	113
IV.3 Fluidisation de mélanges biomasse-olivine.....	115
V. Maquette chaude	121
Chapitre III : Résultats de l'étude hydrodynamique.....	123
I. Résultats expérimentaux.....	123
I.1 Fluidisation de l'olivine.....	123
I.2 Fluidisation de mélanges biomasse-olivine.....	129
II. Modélisation de l'hydrodynamique	145
II.1 Approche corrélative.....	145
II.2 Hypothèses	145
II.3 Données d'entrée et de sortie	145
II.4 Sélection des corrélations	147
II.5 Description de la méthode de calcul.....	152
III. Comparaison calculs-expériences	154
III.1 Fluidisation de l'olivine	154
III.2 Fluidisation de mélanges biomasse-olivine	156
IV. Synthèse	161
Chapitre IV : Modélisation globale.....	163
I. Hypothèses	164
I.1 Ecoulement gaz-solide.....	164
I.2 Ségrégation	164
I.3 Schémas cinétiques.....	164

I.4 Bilan de matière et d'énergie.....	166
I.5 Particules solides	166
II. Description du modèle.....	167
II.1 Ecoulement gaz-solide.....	167
II.2 Description de la ségrégation.....	169
II.3 Transferts de matière et d'énergie	170
II.4 Schémas cinétiques	171
III. Données d'entrée et de sortie.....	174
III.1 Données d'entrée	174
III.2 Données de sortie	175
IV. Comparaison des résultats du modèle aux résultats expérimentaux.....	176
IV.1 Simulation de la maquette froide	176
IV.2 Expérience en maquette chaude	178
IV.3 Comparaison des résultats du modèle aux données expérimentales	182
IV.4 Discussion	189
Conclusions et perspectives.....	191
Notations	195
Références	199
Table des figures.....	209
Table des tableaux	215
Annexes	217
Résumé.....	246

Remerciements

Ce travail a été réalisé en collaboration avec trois laboratoires de la fédération Jacques Villermaux de l'Université de Lorraine, le LEMTA, le LRGP et le LERMAB.

J'adresse mes remerciements au Professeur Arnaud Delebarre et à Guillain Mauviel pour m'avoir accompagné tout au long de cette thèse. Je tiens à remercier tout particulièrement Guillain Mauviel pour son soutien quotidien, la justesse et la pertinence de ses conseils et sa patience qui m'ont largement aidé à mener à bien ce travail.

Je remercie également Olivier Authier pour la qualité de son encadrement, pour sa disponibilité, pour les longues discussions constructives, pour son ouverture d'esprit et pour ses encouragements durant ces trois années.

Je souhaite remercier chaleureusement le Professeur Yann Rogaume et Guillain Mauviel pour leurs disponibilités et leurs accueils au sein des laboratoires du LERMAB et du LRGP.

Je souhaite remercier sincèrement Madame le Professeur Raffaella Ocone et le Professeur Khashayar Saleh, pour l'honneur qu'ils m'ont fait en acceptant d'être rapporteurs de mon travail de thèse.

Je souhaite remercier Madame le Professeur Sabine Rode d'avoir accepté de présider mon jury de thèse. J'associe à ces remerciements le Professeur Yann Rogaume, Messieurs Olivier Authier, Frédéric Topin, Thierry Gauthier et Laurent Van de steene qui m'ont fait l'honneur d'accepter de prendre part au jury.

Je remercie vivement l'équipe Greener : en premier lieu le Professeur Francis Billaud, pour son accueil dans son équipe et sa sympathie, mais également Anthony et Guillain, qui apportent de la joie de vivre et sont moteurs dans la bonne ambiance de l'équipe. Ludivine également qui m'a remonté le moral et encouragé dans les moments difficiles, de même que les thésards et postdocs avec qui j'ai pu partager beaucoup de bons moments : Riccardo, Yann, Jessica, Chloé, Binod, Jia, Thierry, Felipe, Christophe. Enfin, je tiens à remercier Georges et Michel pour leurs aides précieuses et leur savoir-faire.

Je remercie l'équipe de l'atelier mécanique du LRGP sans laquelle il m'aurait été impossible de fabriquer le système d'injection de biomasse.

Je remercie vivement l'équipe NRJ du LERMAB, en premier lieu Yann Rogaume, pour son accueil et ses échanges scientifiques très pertinents, mais également Pierre et Caroline pour leur sympathie et leur enthousiasme au transfert de compétences, mais également mes collègues de bureaux,

Benoît, Jérôme, Matthieu, Gilles, Melhyas, Aboubakar et Gaëtan, sans qui la bonne ambiance et la joie de travailler n'aurait pas été présente et enfin Linda, notre «maman» qui est toujours présente pour nous aider, nous soutenir, nous rassurer, nous dépêtrer des situations administratives ubuesques.

Je remercie l'équipe technique de l'ENSTIB pour son soutien et son accompagnement dans la réalisation des différentes installations nécessaires à l'aboutissement de cette thèse. Je pense en particulier à Stéphane pour son aide indispensable dans la réalisation du programme d'acquisition, mais également à Julien pour son aide pour les images tomographiques.

Je souhaite remercier chaleureusement l'ensemble des personnes qui m'ont permis d'arriver à terminer ce travail, en premier lieu je pense affectueusement à ma famille. Je remercie mes parents qui m'ont largement soutenu durant mes études afin que je puisse faire ce que je souhaitais. Je remercie mon frère et ma sœur pour leur soutien sans faille et leur joie de vivre. Je remercie ma compagne de m'avoir supporté et encouragé au cours de ces trois années ; je te remercie également pour ton aide sans faille pour relire, relire et encore relire ce manuscrit.

Je souhaite remercier l'ensemble des amis et de la famille qui ont fait le déplacement pour m'encourager lors de ma soutenance. Je pense en particulier à Bernard, Françoise, Yves, Mathieu, Claire, Romain, Benoît, Zineb, Baptiste, mais également à l'ensemble des personnes qui m'ont envoyé des encouragements mais qui n'ont pas pu faire le déplacement : Sabine, Claudine, Michèle, Adeline...

Je souhaite remercier l'ensemble des amis qui ont accepté de passer du temps avec moi pour pratiquer du VTT, de la plongée, du bateau, du ski, de la randonnée, de l'escalade, de la course à pied, du roller,... Sans ces activités je n'aurais pas pu terminer ce doctorat.

Je souhaite également rendre un hommage à Amélie qui nous a quittés prématurément et je pense particulièrement à Lionel et Nathan qui ont la dure tâche de continuer à vivre dans la joie, sans leur femme et leur maman.

Introduction

L'augmentation rapide de la demande mondiale en énergie impose une réflexion globale sur l'utilisation et la disponibilité de l'énergie. Actuellement la majorité des énergies consommées est d'origine fossile. L'utilisation de ces énergies entraîne une augmentation de la concentration des gaz à effet de serre impactant dangereusement le climat. Ces énergies fossiles ne sont pas inépuisables : à titre d'exemple, le stock de pétrole découvert nous permettrait de l'utiliser durant 40 années avec la consommation actuelle. Or notre consommation est en augmentation continue. Nous avons déjà consommé 1200 milliards de barils et les réserves connues s'élèvent à 1500 milliards de barils. Le « peak oil^a » devrait être atteint, pour les plus optimistes, en 2025.

Cette consommation massive d'énergie fossile n'est pas pérenne ; il est nécessaire de trouver des solutions alternatives au mode actuel. Ce changement se nomme la transition énergétique. L'objectif de cette transition énergétique est de transformer le mode actuel « tout fossile » vers un modèle principalement basé sur les énergies renouvelables, sur un mix énergétique plus diversifié, et sur des mesures d'efficacité énergétique.

Cette transition énergétique est actuellement examinée en France et M^{me} Royal, ministre de l'Écologie, du Développement durable et de l'Énergie, a présenté le 31 juillet 2014 au conseil des ministres un projet de loi relatif à la transition énergétique pour une croissance verte. Le projet de loi examiné par l'Assemblée Nationale fin 2014, a été validé par le sénat le 3 mars 2015. Cette réflexion sur la consommation et la production d'énergie en France est menée par les gouvernements depuis 2007 avec le Grenelle de l'environnement.

La transition énergétique passe par une diminution de la consommation d'énergie (bâtiment passif ou actif, mode de transports doux, ...), et un développement important des énergies renouvelables (hydraulique, biomasse, solaire, éolien, géothermique, déchets, renouvelables...). Cette transition énergétique ne peut être faite uniquement par des politiques, il est nécessaire d'impliquer les différents acteurs, notamment le monde de l'industrie et de la recherche. D'ailleurs, on constate que les grands Groupes français qui travaillent dans le domaine de l'énergie et l'environnement misent sur la diversification des sources énergétiques en ouvrant leurs métiers vers de nouvelles sources d'énergie, soit à l'étranger, soit en France. Afin d'aider le développement des énergies renouvelables, les différents gouvernements ont mobilisé des fonds permettant de financer des travaux de recherche et de développement dans ces filières.

^a Correspond au moment où la production de pétrole a atteint son maximum

C'est dans ce contexte qu'a été mis en place le projet ANR GAMECO, proposé par EDF, qui y voit là l'occasion de développer le marché des unités de petites tailles de production d'électricité notamment pour aller vers une production et une distribution sur le modèle des *Smart Grids*, tout autant que d'honorer ses engagements de garantie de fourniture d'électricité à ses usagers. EDF a constitué un consortium rassemblant des laboratoires universitaires (LRGP (Nancy), LEMTA (Nancy), LERMAB (Epinal), CEMTHI (Orléans)), dont les 3 premiers sont membres de la Fédération J. Villermaux, avec qui EDF a signé un contrat cadre de coopération. Les industriels NOVABIOM (Champhol) et EQTEC (Barcelona, Espagne) ont également été associés. Cette dernière société est le partenaire qu'a choisi EDF pour développer une technologie de gazéification de biomasse en lit fluidisé.

L'objectif du projet GAMECO est d'étoffer les connaissances scientifiques et technologiques nécessaires à la conception et à l'exploitation d'unités de gazéification de biomasse de petites puissances 1-12 MWe. Ce projet a plusieurs objectifs qui seront détaillés un peu plus loin dans ce mémoire. Cette thèse a pris place au sein d'une des tâches du projet, tâche dévolue au développement d'un modèle du lit fluidisé de gazéification prenant en compte la ségrégation et le mélange des particules de biomasse.

Pour cela, une étude bibliographique axée principalement sur l'hydrodynamique et la ségrégation a été réalisée. Cette étude a permis de mettre en avant les points qui devaient être approfondis. Pour ce faire, une maquette expérimentale a été conçue et développée. Cette phase de développement a représenté une large part du travail réalisé, étant donné que les laboratoires ne disposaient pas des moyens expérimentaux avant l'étude et qu'il nous a fallu développer ceux-ci sans support dédié de ressources humaines. Cette phase expérimentale a permis de produire des données originales sur l'hydrodynamique d'un lit fluidisé de sable et de biomasse, ainsi que sur la ségrégation des particules de biomasse au sein de ce lit. Ces informations ont ensuite été utilisées pour valider un modèle hydrodynamique qui permet de déterminer la proportion biomasse /sable le long de la hauteur du lit. Ces données de ségrégation ont alors été intégrées dans un modèle global du gazéifieur qui prend en compte les réactions de conversion thermo-chimique de la biomasse. Celui-ci est explicité et exploité dans le dernier chapitre de ce mémoire.

Chapitre I : Contexte, bibliographie et objectifs

I. Contexte énergétique

L'augmentation de la démographie et la croissance mondiale entraînent une augmentation de la consommation de matière et d'énergie. Les ressources énergétiques utilisées sont en grande partie issues de matériaux fossiles non renouvelables. Les énergies renouvelables (EnR) sont des sources d'énergies dont le renouvellement naturel est assez rapide pour qu'elles puissent être considérées comme inépuisables à l'échelle du temps humain (quelques dizaines d'années). Les modes de vie et de consommation évoluent afin de prendre en compte des aspects de durabilité et de soutenabilité. Cette évolution doit être anticipée et préparée. Pour cela de nombreuses études sont menées dans le monde dans différents domaines afin de promouvoir les technologies limitant l'impact sur l'environnement et la consommation de matières premières non renouvelables.

I.1 Monde

D'après les chiffres publiés en juillet 2014 par REN21¹ concernant les données de 2012 (Figure 1), les énergies renouvelables (EnR) représentent une part d'environ 19 % des énergies finales consommées dans le monde.

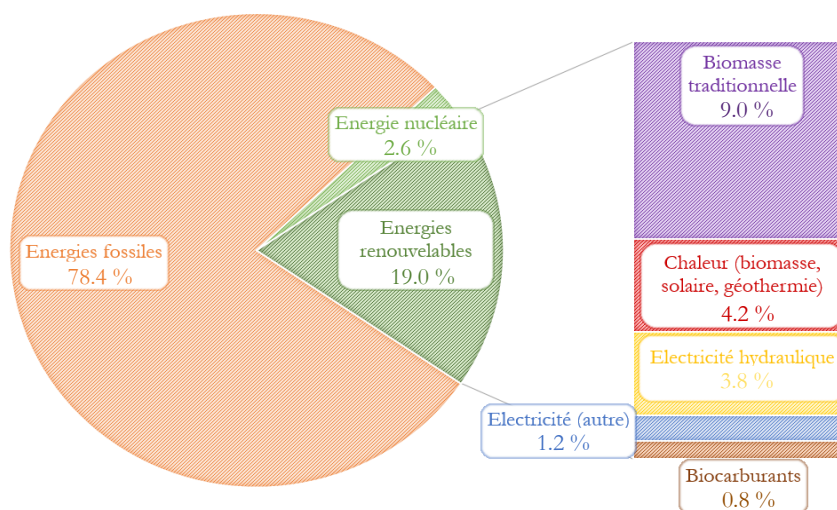


Figure 1 : répartition du mix énergétique mondial final

La biomasse représente la principale énergie renouvelable (EnR) en particulier grâce à la biomasse dite « traditionnelle ». L'énergie fournie par la biomasse traditionnelle provient de procédés de combustion à faible rendement et généralement polluants. Cette énergie est utilisée sous forme de

chaleur pour un usage domestique (cuisine, chauffage) et pour des petites installations industrielles et agricoles, principalement dans les pays en voie de développement. Par opposition, l'énergie fournie par la biomasse dite moderne provient de procédés énergétiquement efficaces (haut rendement et faible pollution) produisant de la chaleur, mais aussi de l'électricité et/ou des carburants (solides, liquides et gaz).

La biomasse traditionnelle représente 47.4 % de l'ensemble des EnR dans le monde, le reste des EnR se décompose en 22.1% pour la chaleur (biomasses non traditionnelles, solaire et géothermie), 20 % pour l'électricité hydraulique, 6.3 % pour les autres types d'électricité et 4.2 % pour les biocarburants. La croissance du nombre d'installations visant à produire de l'électricité dite renouvelable est très importante. Depuis 2004 la capacité de production a été multipliée par deux. Elle est passée de 800 GW en 2004, pour atteindre 1560 GW fin 2013¹. Cette augmentation est encore plus importante si l'énergie hydraulique n'est pas prise en compte. Dans ce cas, la capacité de production a été multipliée par 6.6 pour passer de 85 GW en 2004 à 560 GW fin 2013.

Cette évolution de production des EnR à l'échelle mondiale se retrouve également à l'échelle nationale.

I.2 France

I.2.1 Mix énergétique

Les données utilisées dans ce paragraphe proviennent du commissariat général au développement durable² sur la consommation d'énergie primaire en France en 2012 (Figure 2). En France, les énergies renouvelables représentent 8.8 % de la consommation en énergie primaire. Les énergies fossiles représentent environ 49.3 % de la consommation et le nucléaire 41.5%.

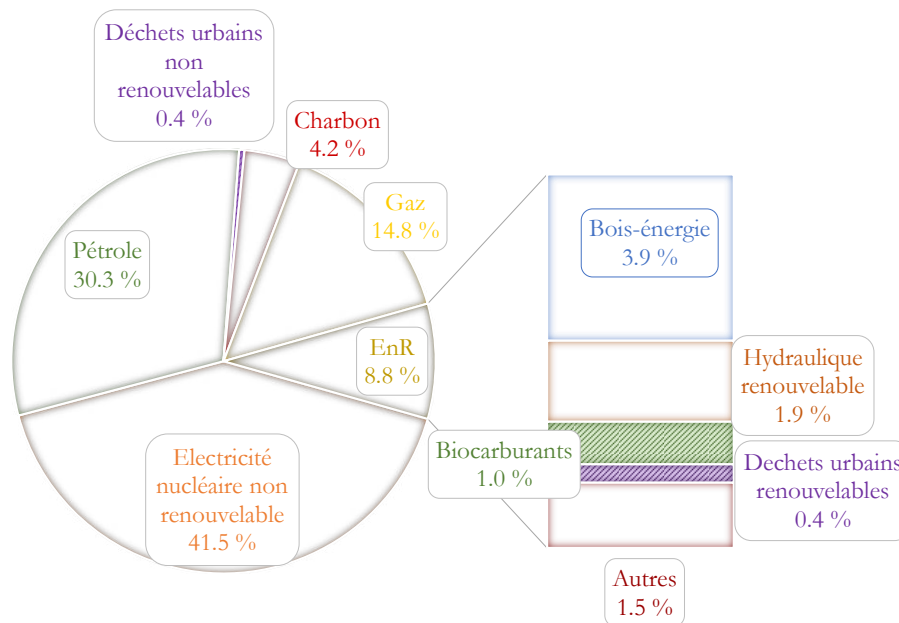


Figure 2 : répartition du mix énergétique français primaire

I.2.2 Production d'énergie renouvelable²

La production primaire d'EnRt (Energie Renouvelable thermique) a augmenté de 7 % par rapport à 2012.

La majorité des EnRt provient des biomasses solides (bois énergie et déchets urbains renouvelables) qui représentent 70 % de la production totale. Entre 2012 et 2013, la production d'EnRt provenant de ces biomasses solides a connu une augmentation de 8 %.

Le second poste de production concerne les biocarburants (14.3 %). En 2013 la production est resté globalement stable (-0.12 %), ce qui représente environ 6.8 % de la consommation totale de carburant.

Les pompes à chaleur représentent quant à elles environ 10% des Enrt en France.

La production primaire de biogaz est estimée à 0.454 Mtep, avec une progression de 17 % entre 2012 et 2013. Cette forte progression est due à l'ensemble des plans visant à développer cette filière (fonds chaleur, tarif de rachat de l'électricité, tarif injection biogaz dans le réseau, plan énergie méthanisation autonomie azote...). 78 % du biogaz produit est converti en électricité. Ce qui représente une production de 1.5 TWh en 2013. La production de biogaz devrait continuer de croître dans les années à venir car de nombreux projets sont en cours d'étude ou de construction.

Le solaire thermique représente une production d'environ 0.087 Mtep ce qui correspond à 0.5 % de l'ensemble des EnRt.

La géothermie traitée dans ce bilan est la géothermie « basse énergie » qui exploite des aquifères d'une profondeur supérieure à quelques centaines de mètres. Elle représente environ 1.1 % des EnRt.

Le diagramme suivant (Figure 3) synthétise les données présentées ci-dessus.

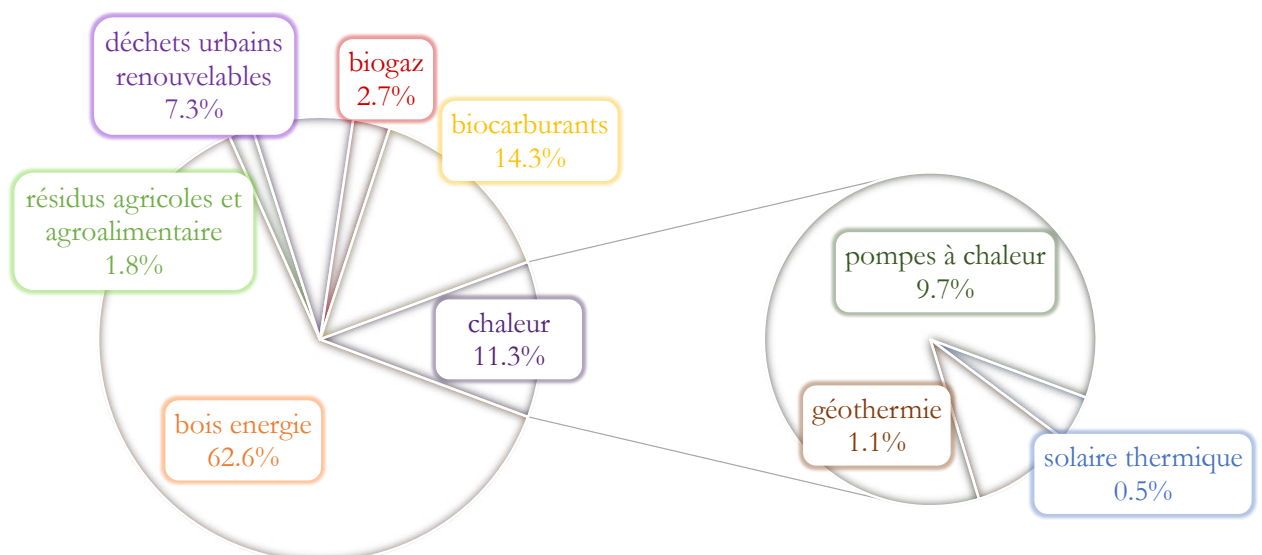


Figure 3 : répartition de la production d'énergie renouvelable thermique en France

I.2.3 Electricité

En 2013, 73 % de l'électricité produite en France est d'origine nucléaire, 17% d'origine EnR, et 9.4% provient de centrales thermiques classiques (y compris cogénération). La production d'électricité renouvelable vient en grande partie des barrages hydro-électriques qui couvrent 13.3% de la production totale. Ce bilan (Figure 4) ne prend en compte que les productions majeures d'électricité.

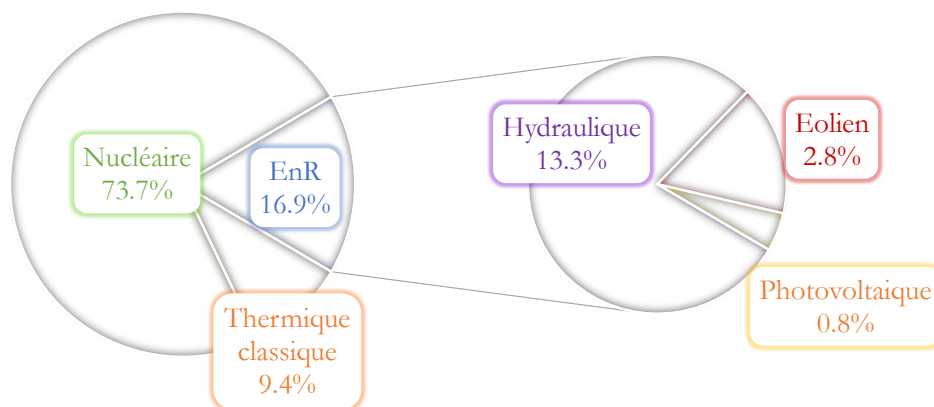


Figure 4 : le mix électrique français en 2013

Le baromètre 2013 des énergies renouvelables électriques en France publié par Observ'ER³ en mai 2014 présente le mix électrique provenant des EnR (Tableau 1).

Tableau 1 : mix énergétique électrique EnR en France et ses objectifs

Filière	Puissance installée	Objectif 2020	Faisabilité
Eolien	7971 MW (fin sept. 2013)	19000 MW (sur terre)	Très incertain
Hydraulique	25388 MW (fin 2012)	28300 MW	Très incertain
Energie marine	240 MW (fin 2012)	6800 MW (dont 6000 MW d'éolien en mer)	Inatteignable
Photovoltaïque	4478 MW (fin sept. 2013)	5400 MW	Atteignable dès 2015
Biomasse solide et déchets urbains renouvelables	303.7 MW (en 2012)	2382 MW	Très incertain suivant les réussites des CREb
Géothermie	17.2 MW (fin 2012)	80 MW	Peut être atteint
Solaire thermodynamique	1.01 MW	540 MW	Très incertain

Les objectifs fixés par le « plan d'action national en faveur des énergies renouvelables basé sur l'article 4 de la directive 2009/28/CE de l'Union européenne »⁴ seront difficilement atteints en 2020. D'après les tendances actuelles, la production d'électricité renouvelable pourrait atteindre entre 10.5 et 11.5 Mtep en 2020 ce qui représentera entre 21 et 22 % de la production électrique française soit 5

^b CRE : appels à projets lancés par la Commission de Régulation de l'Energie permettant de favoriser l'installation d'unités de production d'énergie.

points de moins que l'objectif de 27 %. Ces augmentations de productions d'électricité provenant d'EnR sont en grande partie le fruit des appels à projet lancés en France depuis 2009.

II. Biomasse-énergie

II.1 Définition et caractérisation de la biomasse

II.1.1 Définition

La biomasse est définie par l'article 19 de la loi n°2009-967 ⁵ comme *«la fraction biodégradable des produits, déchets et résidus provenant de l'agriculture, y compris les substances végétales et animales, issues de la terre et de la mer, de la sylviculture et des industries connexes ainsi que la fraction biodégradable des déchets industriels et ménagers»*.

Contrairement aux sources d'énergies fossiles, la biomasse est une énergie renouvelable. La production de biomasse provient de la photosynthèse. Lors de sa croissance, la plante consomme de l'eau de l'énergie solaire et du CO₂ contribuant ainsi à limiter le taux de CO₂ atmosphérique. L'utilisation de biomasse durablement gérée dans le cadre de la production d'énergie ne fait pas augmenter le taux de CO₂ dans l'atmosphère car on peut considérer que le CO₂ libéré est globalement capté par les biomasses en cours de croissance. On peut aussi considérer que le CO₂ émis puis séquestré contribue à la diminution du taux atmosphérique. La conversion en énergie peut se faire suivant plusieurs procédés, soit par combustion directe, soit à la suite d'une ou plusieurs étapes de transformation (séchage, torréfaction, pyrolyse, gazéification).

La biomasse est répartie en deux catégories la biomasse dite « humide » et la biomasse dite « sèche ».

- 1) La biomasse dite « humide » intègre l'ensemble des matériaux organiques contenant une part importante d'humidité, dont notamment les résidus organiques d'origine agricole (fumiers, lisiers...), urbaine (déchets verts, boues d'épuration,...) ou agro-alimentaire. Elle peut être convertie en énergie par des voies de décomposition biologique. La voie la plus courante est la méthanisation qui produit un biogaz, utilisé en énergie, et un digestat, utilisé pour l'amendement des sols agricoles.
- 2) La biomasse dite « sèche » comprend l'ensemble des biomasses de type ligneuses, du bois aux coproduits agricoles solides (pailles,...) en passant par les cultures énergétiques (miscanthus, ...). Cette biomasse peut également contenir une humidité importante (plus de 100% d'humidité sur sec suivant le taux de séchage). Ce type de biomasse peut être valorisé dans des procédés thermochimiques (combustion, gazéification,...)

Ce travail traitera uniquement des procédés thermochimiques de conversion de la biomasse et en particulier de sa gazéification. Comme présenté ci-dessus, ces réactions mettent en jeu de la biomasse sèche qui dans la plupart des cas, est du bois. Aussi, celui-ci sera utilisé comme référence pour cette étude bibliographique.

Les paragraphes suivants permettent de caractériser le bois selon plusieurs méthodes. Ce matériau est hygroscopique, il peut contenir des teneurs en eau très variables, de plus de 50 % en masse pour un bois vert, jusqu'à 10-15 % en masse pour un bois stocké sous abri. La caractérisation physico-chimique du matériau est effectuée pour du bois anhydre (c'est-à-dire sans eau).

II.1.2 Composition moléculaire

Le bois est un composé de trois polymères principaux⁶: la cellulose, l'hémicellulose et la lignine. On trouve également des extractibles (5-30% en masse) et des inorganiques (jusqu'à 1 % en masse). Ces inorganiques sont à l'origine des cendres lors des conversions thermochimiques.

La cellulose (Figure 5) représente entre 40 et 50 % en masse sèche du bois, ce polymère à haute masse molaire à un motif de cellobiose pour élément de base.

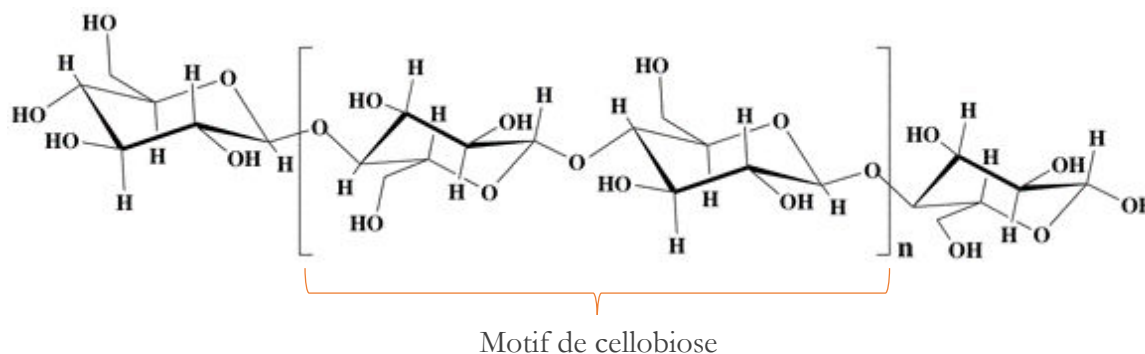


Figure 5 : cellulose

Les hémicelluloses (Figure 6) représentent entre 10 et 30 % en masse, et sont constituées de monomères de pentoses ou d'hexoses. Ces polymères ramifiés ont une faible masse molaire.

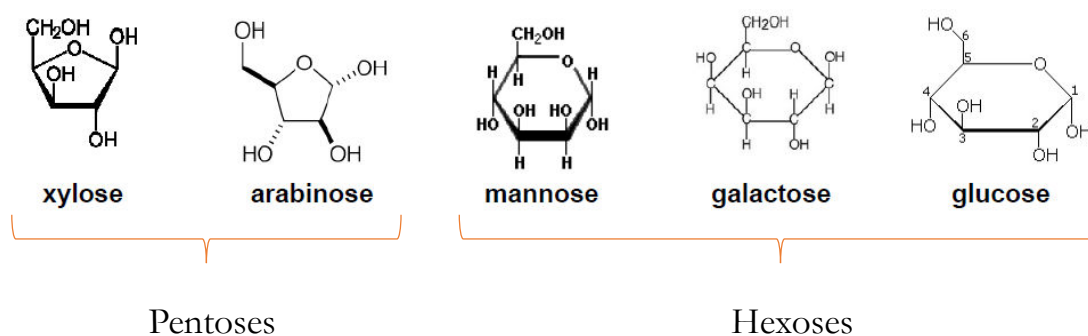


Figure 6 : monomères des hémicelluloses

La lignine constitue la matrice de la paroi cellulaire, elle représente entre 16 et 33 % de la masse du bois en fonction des essences, elle est composée de polymères phénoliques. La structure de la lignine est multiple et complexe, la Figure 7 représente un exemple de lignine.

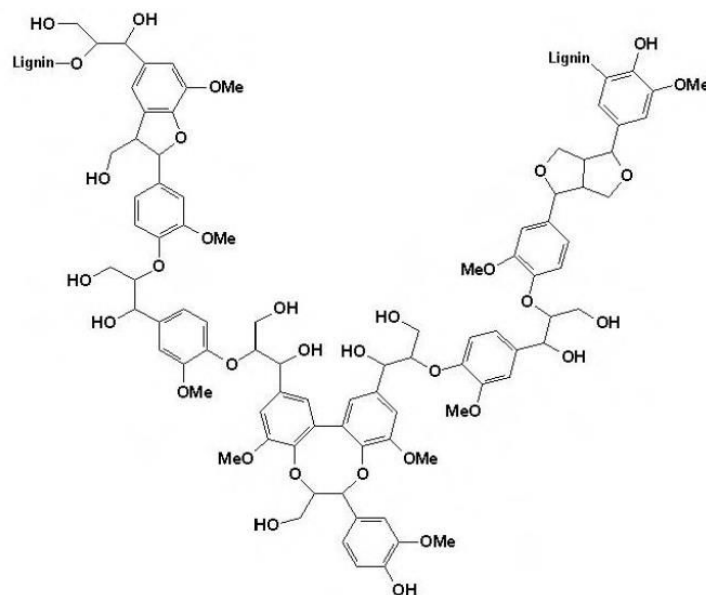


Figure 7 : exemple de lignine

La complexité de la structure de la lignine nécessite une définition de composés plus simples pour la représenter. Ranzi et al.⁷ proposent de définir trois composants (Figure 8) permettant de représenter la lignine : LIG-C, LIG-H et LIG-O qui sont des monomères phénoliques respectivement riches en carbone, hydrogène et oxygène.

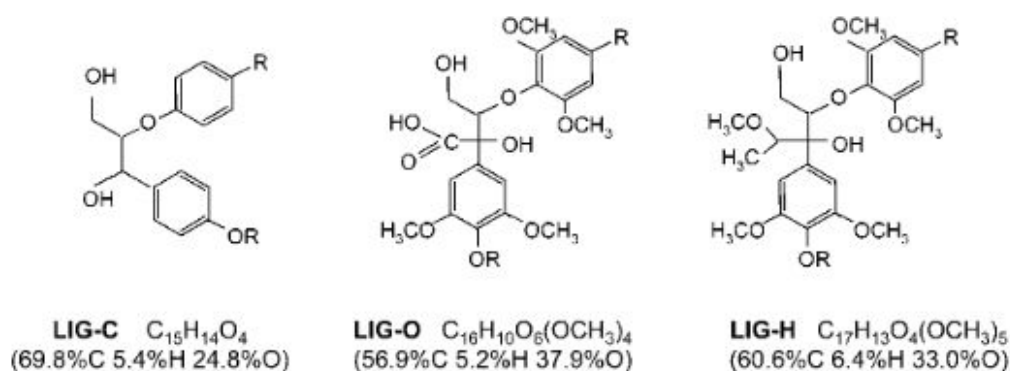


Figure 8 : différents composants représentant la lignine⁷

II.1.3 Composition atomique ou élémentaire

La seconde méthode de caractérisation de la biomasse est une caractérisation atomique ou élémentaire. Le matériau sera défini en termes de fraction massique de chacun de ses composants atomiques.

Les principaux éléments sont le carbone ($\approx 50\%$), l'hydrogène ($\approx 6\%$) et l'oxygène ($\approx 44\%$). D'autres éléments peuvent également être présents, notamment l'azote (moins de 1%) et d'autres inorganiques. La formule brute de la biomasse peut être établie par caractérisation élémentaire.

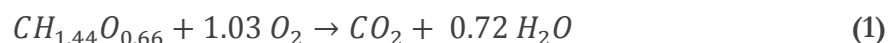
Pour le cas général du bois, on obtient la formule suivante $CH_{1.44}O_{0.66}$.

II.2 Voies de conversion thermochimique pour la cogénération

Dans cette partie, les voies de conversion thermochimique présentées sont celles utilisables pour effectuer de la cogénération de petite puissance. Dans le cadre du projet GAMECO, l'étude porte sur des unités de cogénération de puissance inférieure à 12 MW. Dans ce cadre deux technologies peuvent être utilisées pour produire de l'électricité. Soit une unité de combustion directe couplée à un cycle vapeur, soit une unité de gazéification couplée à un moteur ou une turbine à gaz.

II.2.1 Combustion

La combustion est une dégradation thermochimique du bois en présence d'oxygène. Pour le cas d'une combustion parfaite, les produits de la réaction sont uniquement de l'eau et du dioxyde de carbone. L'équation de combustion dans les conditions stœchiométriques est la suivante (Eq.(1))



Cette réaction est exothermique. L'énergie libérée moyenne est de l'ordre de 14 à 17 MJ/kg⁶.

Dans le cadre de la cogénération, l'énergie libérée par la combustion du bois permet de générer de la vapeur d'eau surchauffée qui entraîne une turbine à vapeur. Le principe est de transformer l'énergie contenue dans la vapeur en énergie électrique. Ce procédé n'est pas viable pour des puissances inférieures à 5 MWe à cause du prix de revient des installations (6 M€/MWe) et du faible rendement des turbines de petites puissances (<20%)⁸.

II.2.2 Gazéification

La gazéification est une réaction qui s'opère en présence d'un agent oxydant (H₂O, CO₂, Air). La quantité d'oxygène présente dans le milieu n'est pas suffisante pour effectuer une oxydation complète des produits. L'objectif de cette réaction est de produire un gaz de synthèse (« syngaz »), composé principalement de CO et H₂, mais aussi de CO₂ ainsi que d'hydrocarbures légers (notamment CH₄, C₂H₄). Le syngaz doit être nettoyé afin d'éliminer l'ensemble des produits indésirables (notamment goudrons, poussières, métaux, composés soufrés, chlorés, ...). Une fois purifié, ce syngaz pourra être utilisé en alternative aux gaz d'origine fossile⁹ (gaz naturel, syngaz issu du charbon minéral, gaz de schiste,...).

Ce syngaz peut être utilisé de plusieurs façons, soit comme carburant, pour faire fonctionner des turbines ou moteurs à gaz, soit comme matière première en bio-raffinerie pour synthétiser des

hydrocarbures, notamment par la voie Fischer-Tropsch^{10,11}, ou pour produire du bio-diméthyléther (DME)¹². Il peut également être utilisé pour produire du bio-méthane (procédé étudié dans le cadre du projet ADEME GAYA¹³).

Concernant la production d'électricité à partir de la gazéification, les technologies sont différentes de celles utilisées en combustion car le syngaz produit est brûlé directement dans un moteur ou une turbine à gaz. Le rendement électrique des unités de cogénération basées sur ces technologies est d'environ 30 %^{8,14} et est faiblement impacté par la puissance de l'installation. Dans le cas de cette étude, pour une puissance inférieure à 12 MW, le rendement électrique d'une unité de combustion couplé à un cycle vapeur est plus faible que le rendement d'une unité de gazéification couplé à un moteur ou une turbine à gaz.

Le travail réalisé dans le cadre de cette thèse porte sur l'étude d'un gazéifieur à lit fluidisé bouillonnant. Ce type de réacteur a de nombreux avantages^{15,16} :

- 1) de par la fluidisation, les transferts de chaleur et de matières sont élevés. Ce qui entraîne notamment l'homogénéité de température du lit ;
- 2) le syngaz généré a une teneur en goudrons relativement faible (quelques grammes par Nm³ de gaz) car les goudrons sont en partie craqués catalytiquement par le matériau solide du lit.

Ces réacteurs présentent également quelques inconvénients :

- 1) le syngaz produit nécessite une purification, notamment pour évacuer les particules solides et les goudrons formés ;
- 2) le coût de l'installation est important en partie à cause de ce système de traitement du syngaz.

D'autres technologies de gazéification ont été développées¹⁷⁻²⁵, notamment des lits fluidisés doubles (Procédé REPOTEC à Güssing, Autriche¹⁸), des procédés de gazéification étagée à lit fixe (Procédé Xylowatt²⁴) ou des procédés de gazéification plasma (Procédé CHO-Power à Morcenx, France²⁵). EDF a choisi le procédé de gazéification en lit fluidisé pour sa relative simplicité de développement à l'échelle semi-industrielle ou industrielle.

II.3 Gazéification en lit fluidisé bouillonnant (LFB)

Dans le cas d'un gazéifieur à lit fluidisé bouillonnant les réactions chimiques se déroulent principalement au sein d'un lit de sable en état de fluidisation bouillonnante. L'utilisation d'un lit fluidisé permet des forts échanges de chaleur entre le sable et la biomasse. L'agent de fluidisation peut être de différentes natures (air, vapeur d'eau²⁶, dioxyde de carbone²⁷) en fonction du type de gazéification et de l'utilisation escomptée du syngaz. Dans le cas de cette étude l'agent de fluidisation est l'air. Ce choix permet de garantir une facilité de développement à l'échelle industrielle car pour effectuer la gazéification, il est nécessaire d'utiliser uniquement un ventilateur et non un générateur de vapeur qui consommerait beaucoup d'énergie thermique car la vapeur devrait être fortement surchauffée pour maintenir le gazéifieur à sa température nominale (supérieure à 750°C typiquement). En effet, la gazéification à la vapeur d'eau est globalement endothermique, tandis que la gazéification à l'air est globalement exothermique.

II.3.1 Unité de cogénération industrielle

Le réacteur de gazéification à lit fluidisé ne représente qu'une part de l'unité complète de cogénération. Ce paragraphe présente très schématiquement les installations nécessaires autour du réacteur à proprement parler. La description de l'installation va se faire en suivant le « parcours » de la biomasse au sein de l'installation.

La biomasse est livrée et stockée dans un silo externe à l'installation, un système de convoyage transporte la biomasse entre le silo et la trémie d'alimentation du gazéifieur.

La biomasse présente dans la trémie est injectée dans le réacteur via un système d'alimentation au sein du lit dense. Dans le réacteur, la biomasse réagit pour former du gaz (condensable et incondensable) et des cendres (qui peuvent contenir du carbone non converti).

Le gaz produit est un mélange complexe contenant des espèces gazeuses, des espèces condensables (goudrons) et des espèces solides (particules de lit et de cendres). Ce mélange doit être nettoyé et purifié (suppression des solides et des goudrons) pour pouvoir être injecté dans les installations de cogénération.

Le premier traitement du gaz consiste en une séparation des particules solides par le biais d'un cyclone. Le gaz est ensuite nettoyé pour enlever les espèces condensables (goudrons). Cette phase de traitement peut être effectuée de différentes manières, mais la solution la plus simple et la plus courante consiste en un refroidissement du gaz afin de condenser la majorité des goudrons. Le gaz

traverse ensuite un système permettant d'atteindre la pureté escomptée pour l'utilisation future. Ces systèmes de purification peuvent être variés (filtre constitué de sciure de bois²⁸, lavage humide des gaz²⁹, filtration par précipitation électrostatique²⁹). Les travaux de Han et Kim²⁹ et de Milne et Evans³⁰ permettent d'approfondir ce point particulier.

Le gaz ainsi nettoyé peut être injecté dans l'installation de cogénération (moteur à gaz ou turbine à gaz).

Le réacteur à lit fluidisé, comporte une entrée de sable (généralement au-dessus du lit dense) et une extraction (généralement juste au-dessus du distributeur d'air). L'extraction permet d'évacuer une partie du matériau de lit usagé (sable + cendres). Le soutirage par le bas du réacteur permet également d'évacuer les agglomérats qui peuvent s'être formés dans le réacteur.

II.3.2 Présentation du projet ANR GAMECO

La gazéification semble plus appropriée que la combustion pour des installations de cogénération de puissance moyenne (1-12 MW)¹⁴. Parmi les techniques de gazéification, les lits fluidisés bouillonnants (LFB) sont les plus adaptés pour cette gamme de puissance²⁸. Pour des petites puissances (inférieures à 1 MW), l'utilisation de lits fixes est à privilégier alors que pour des puissances supérieures à 12 MW, les lits fluidisés circulants sont préconisés. L'état de l'art de la technologie LFB met en évidence des points de blocages qui devront être résolus pour faire de ce procédé une technologie de référence.

C'est dans ce cadre que le projet ANR/GAMECO s'est construit. Il vise à optimiser le procédé de gazéification (Figure 9) proposé par la société espagnole EQTEC afin de le rendre plus flexible vis-à-vis de la qualité de la biomasse et plus fiable afin d'augmenter sa disponibilité. Il se décompose en plusieurs tâches qui représentent chacune un point-clé à étudier et à préciser :

1) étude de l'agglomération :

dans le cas de la gazéification de biomasse agricole, le taux de cendres (inorganiques) est élevé. En fonction de leur composition et des conditions de gazéification, les cendres peuvent fusionner avec le matériau inerte (sable) et former des agglomérats. La formation de ces agglomérats n'est pas très bien connue, et il est de plus, difficile de prédire leur formation et de les détecter lors de la gazéification. Cette tâche a pour objectif de travailler sur le comportement des inorganiques au sein du lit et de préciser les interactions qui ont lieu entre les inorganiques et l'inerte ;

- 2) étude des cinétiques de formation et de dégradation des goudrons :
le syngaz produit contient plusieurs grammes par normaux mètres cubes de goudrons. Cette concentration en goudrons doit être la plus faible possible pour éviter d'encrasser le système de refroidissement et de filtration du gaz (échangeur de chaleur, filtres...). L'objectif de cette tâche est de mieux comprendre les phénomènes régissant la formation et le craquage des goudrons au sein du réacteur afin d'en réduire au maximum la concentration finale ;
- 3) étude de l'hydrodynamique des particules de biomasse :
les particules de biomasse se déplacent au sein du réacteur. Elles peuvent flotter, couler ou être mélangées au reste du lit. La qualité du syngaz et l'efficacité du réacteur dépendront de l'emplacement des particules lors de leurs conversions thermochimiques (pyrolyse, puis oxydation du charbon). L'objectif de cette tâche est de mettre en évidence les paramètres influant sur la ségrégation des particules de biomasse au sein du réacteur afin de mieux localiser les réactions thermochimiques.

Ces points-clés sont étudiés au travers de différentes manipulations expérimentales :

- (1) une maquette chaude d'environ 1kg/h (LRGP, Nancy), permettant d'effectuer les essais liés à l'agglomération et à la cinétique de formation/craquage des goudrons ;
- (2) une maquette froide (LERMAB, Epinal) permettant d'effectuer les essais de ségrégation des particules de biomasse ;
- (3) un pilote chaud de taille semi-industrielle (50kg/h, LERMAB, Epinal) pour vérifier les observations effectuées sur les installations de laboratoire et démontrer la faisabilité.

Les biomasses étudiées sont de deux types : du bois et du miscanthus. Le bois est la biomasse la plus répandue en France; elle sera utilisée sous forme de granulés afin de faciliter l'alimentation des réacteurs. Cette biomasse sera la référence pour l'ensemble des essais hydrodynamiques. Le miscanthus est actuellement une des cultures énergétiques les plus prometteuses en France. Cette biomasse sera utilisée sous forme de granulés pour les essais d'agglomération. La société Novabiom est actuellement en mesure de fournir cette biomasse pour les essais (plus de 2000 ha plantés depuis 2006).

Les essais effectués durant ce projet seront validés par les essais de validation à l'échelle semi-industrielle sur l'installation du LERMAB.

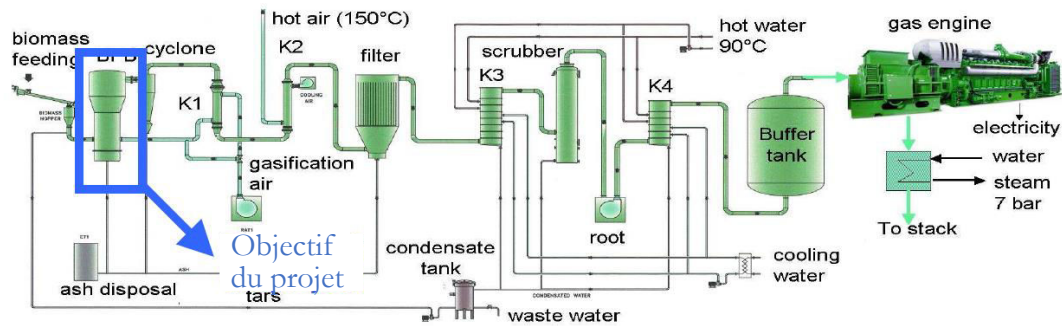


Figure 9 : diagramme du procédé de gazéification EQTEC[®]

Cette thèse permet de répondre au troisième point-clé correspondant à l'étude hydrodynamique du réacteur. Pour répondre à ce point une maquette froide a été réalisée et optimisée pour pouvoir effectuer une campagne d'essais et étudier les phénomènes de ségrégation. L'ensemble des données seront utilisées pour développer un modèle hydrodynamique basé sur des corrélations choisies parmi celles proposées dans la littérature. Ce modèle hydrodynamique sera utilisé dans un modèle de gazéifieur qui visera à déterminer numériquement la composition du syngaz en fonction des paramètres opératoires. On s'attachera en particulier à mettre en évidence l'impact de la ségrégation des particules sur les résultats du modèle de gazéifieur.

III. Hydrodynamique d'un lit fluidisé

III.1 Régimes de fluidisation

III.1.1 Du lit fixe au lit fluidisé

Un lot de particules granulaires est placé dans un réacteur dont le fond est poreux au gaz. Le gaz est injecté du bas vers le haut au travers du lit. Il circule dans l'espace interstitiel entre les particules de solide (Figure 10). Le paramètre permettant de caractériser l'espace interstitiel du lit de particules est la porosité (ϵ) (Eq (2))

$$\epsilon = \frac{\text{volume interstitiel}}{\text{volume du lit de particules}} \quad (2)$$

Lorsque le débit de gaz augmente, la vitesse du gaz entre les particules augmente entraînant l'augmentation des forces de frottement sur les solides. Cette force augmente avec la vitesse jusqu'à compenser le poids des particules, le lit fixe de particule se transforme alors en lit fluidisé, dont les propriétés macroscopiques tendent vers celles d'un milieu fluide.

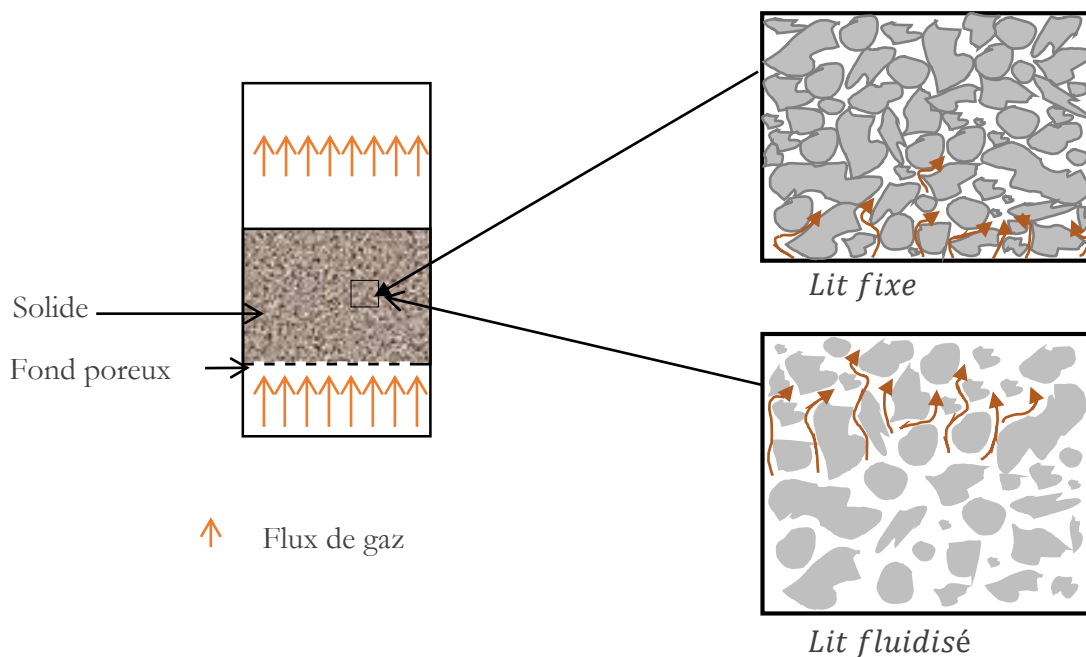


Figure 10 : évolution d'un lit de solide granulaire sous l'action d'un flux de gaz

Plusieurs régimes peuvent être définis (Figure 11) selon la vitesse et la nature du solide. Le premier régime est un régime d'expansion du lit, l'ensemble du gaz circule dans l'espace interstitiel entre les particules entraînant une augmentation globale du volume du lit. L'expansion du lit dépend des caractéristiques des particules.

Le second état correspond à un état de fluidisation bouillonnant, dans ce cas une partie du gaz de fluidisation permet de maintenir le lit en fluidisation, le surplus de gaz traverse le lit sous forme de bulles.

Pour des vitesses de gaz très élevées, les particules de solides sont élutriées, le lit rentre dans un régime de lit entraîné.

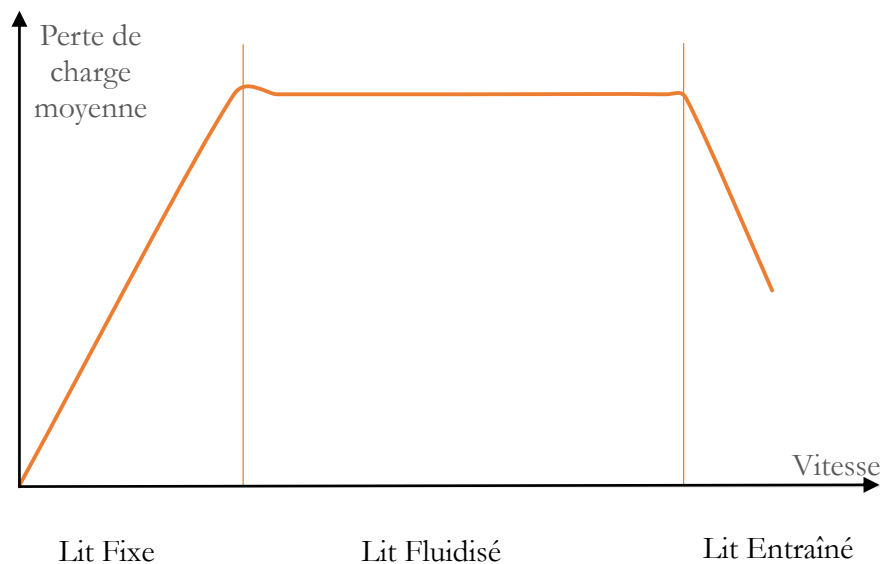


Figure 11 : évolution de la perte de charge d'un lit de particules en fonction de la vitesse

III.1.2 Classification de Geldart

Les solides peuvent être classés selon leurs caractéristiques physiques. La classification de Geldart³¹ est la classification de référence de la fluidisation. Les particules peuvent être réparties en 4 catégories selon leurs propriétés vis-à-vis de la fluidisation (Figure 12). La classification des particules dépend de leur diamètre moyen (d_p) et de la différence de masse volumique entre la particule et le gaz de fluidisation ($\rho_p - \rho_g$). Dans l'étude menée par Geldart, l'agent de fluidisation de référence est de l'air à température ambiante et à pression atmosphérique.

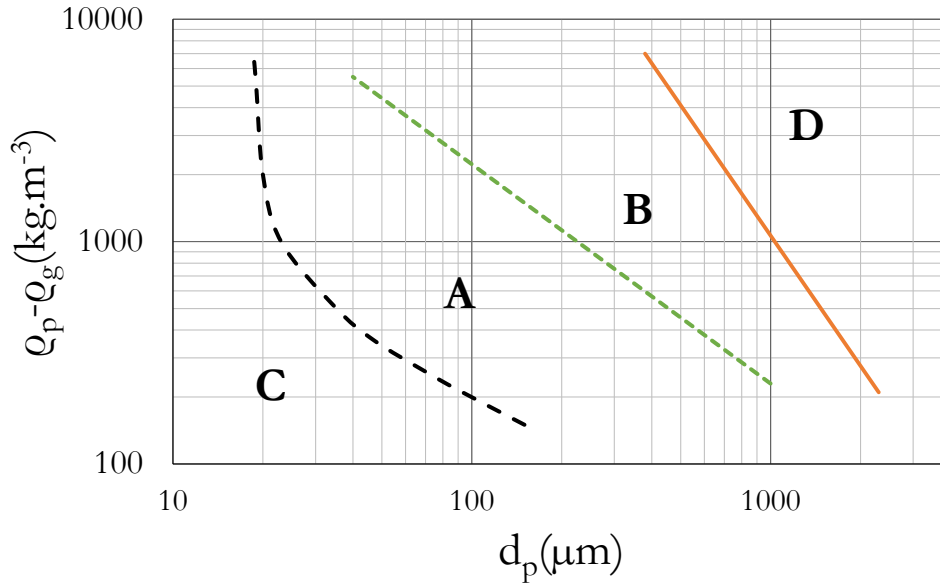


Figure 12 : diagramme de Geldart³¹

Les particules du groupe A sont caractérisées par une taille moyenne relativement faible. Lorsque la vitesse de fluidisation augmente, le lit de particules subit une expansion importante avant de rentrer dans un régime de bullage. Dans ce type de fluidisation, les phénomènes de circulation de particules au sein du lit commencent dès que la vitesse minimale de fluidisation est atteinte. En régime de bullage, les bulles migrent plus rapidement que le gaz interstitiel vers le haut du lit. Il y a généralement un bon mélange du gaz dans la phase dense du lit et un bon échange gazeux entre la phase bulle et la phase émulsion.

Les particules du groupe B ont une taille moyenne comprise entre $40 \mu\text{m}$ et $500 \mu\text{m}$ et une masse volumique généralement comprise entre $1400 \text{ kg}/\text{m}^3$ et $4000 \text{ kg}/\text{m}^3$. Contrairement au groupe A, ces lits de particules rentrent dans un régime de bullage pratiquement au minimum de fluidisation. L'expansion du lit est faible et lors de l'arrêt de l'injection du gaz, la défluidisation du lit est rapide. La vitesse des bulles est plus rapide que la vitesse du gaz interstitiel. La taille des bulles augmente avec la hauteur et avec la différence entre la vitesse du gaz et la vitesse minimale de fluidisation ($U - U_{mf}$). Cette augmentation de la taille des bulles est principalement due à leur coalescence³². Pour une hauteur de lit et une différence de vitesse ($U - U_{mf}$) données, la taille des bulles est dépendante de la taille moyenne des particules. Le mélange au sein de la phase dense est relativement faible, comme l'échange entre la phase bulle et la phase émulsion. Le volume de traînée derrière la bulle (Figure 13) est généralement non négligeable vis-à-vis du volume de la bulle³³. Lorsque la vitesse de fluidisation augmente le lit entre dans un régime pistonnant (Figure 14). C'est-à-dire que la taille

des bulles peut parfois atteindre celle de la section du lit, en entraînant l'ensemble du lit vers le haut.

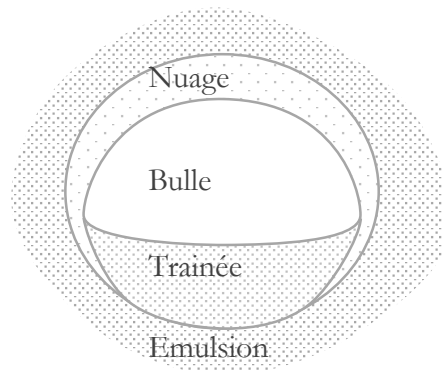


Figure 13 : bulle dans un lit fluidisé²³

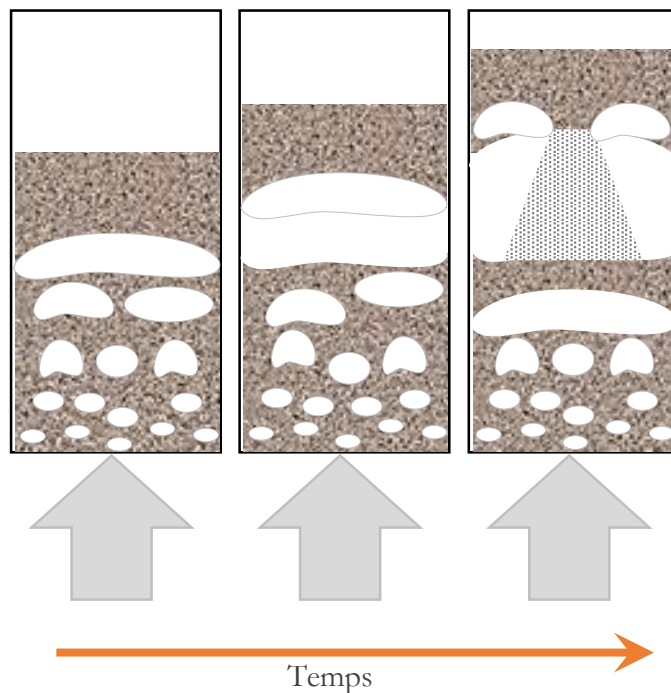


Figure 14 : passage au régime pistonnant ou "slugging regime"

Les particules du groupe C ont la particularité d'être cohésives. Ce sont des particules de tailles inférieures à 100 μm . Elles ne sont pas fluidisables à proprement parler et sont le siège de phénomènes de renardage ou de pistonnage. Le renardage (channeling), correspond à un passage privilégié du gaz dans une partie du lit depuis le distributeur vers la surface du lit (Figure 15). Ces comportements sont liés aux forces de cohésions entre particules plus importantes que les forces générées par le frottement gaz-solide. Les particules de très petites tailles sont sensibles à l'électricité

statique présente dans le réacteur, entraînant également des fluidisations non homogènes. Ces mauvaises fluidisations ont tendance à limiter le mélange des particules et à diminuer le transfert de chaleur au sein du lit³⁴. On obtient donc généralement des transferts de chaleur et des taux de mélange plus faibles que pour des lits de particules de groupe A ou B. Il est possible d'améliorer la fluidisation en utilisant des agitateurs mécaniques, en faisant vibrer le lit ou en ajoutant une poudre fluidifiante de très petite taille (inférieur au micron). Les problèmes liés à l'électrostatique peuvent être diminués en augmentant la conductivité électrique de l'ensemble du réacteur. On peut pour cela humidifier l'air de fluidisation, ajouter une poudre conductrice ou rendre les parois conductrices.

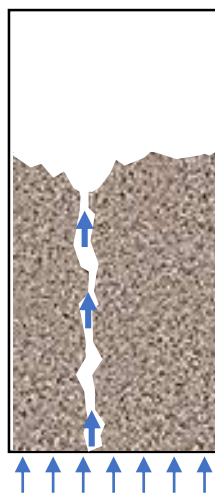


Figure 15 : renardage

Les particules du groupe D sont des particules de grande taille et/ou de forte masse volumique. Pour ce type de lit, les plus grosses bulles migrent vers le haut du lit plus lentement que le gaz interstitiel qui traverse donc les bulles du bas vers le haut. Ce phénomène entraîne des échanges entre les phases gazeuses différents de ce qui se passe pour les particules des groupes A et B. Le mélange de la phase gaz reste bon mais le mélange de la phase solide est relativement mauvais. Ces lits de particules nécessitent des vitesses de fluidisation élevées, entraînant un débit de gaz important. Cette fluidisation « rude » génère une attrition importante des particules et une élutriation rapide des fines produites³⁵. Pour cette catégorie il est possible de fluidiser des particules relativement collantes car la vitesse de fluidisation est élevée et le contact particule-particule relativement faible. La taille des bulles est globalement la même que dans les lits de particules du groupe B ; leur formation a lieu environ 5 cm au-dessus du distributeur. Ces particules peuvent générer des lits à jets, (spouted bed ou multiple spouted bed) (Figure 16) par exemple, si le distributeur d'air se compose d'une unique arrivée de gaz au centre du lit.

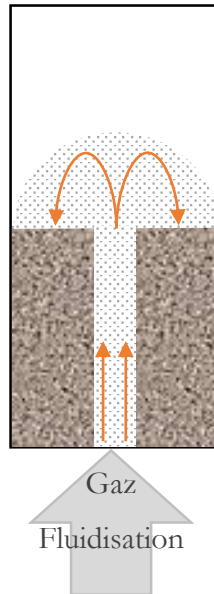


Figure 16 : spouted-bed

Un réacteur à lit fluidisé est composé de plusieurs parties :

- **un ventilateur** qui fait circuler le gaz de fluidisation à la vitesse désirée. Plusieurs solutions technologiques sont possibles, le gaz est soit insufflé par le bas du lit, soit aspiré par le haut du lit ;
- **une boîte à vent ou plenum** qui permet d'homogénéiser le flux de gaz afin d'obtenir une fluidisation la plus homogène possible ;
- **un distributeur d'air** qui permet de répartir le gaz de manière homogène dans le lit. Ce distributeur peut être de forme variée, son dimensionnement nécessite une attention particulière traitée dans la littérature ³⁶⁻³⁹, mais ne sera pas développé ici.

La Figure 17 représente de façon schématique un lit fluidisé dense de gazéification de biomasse.

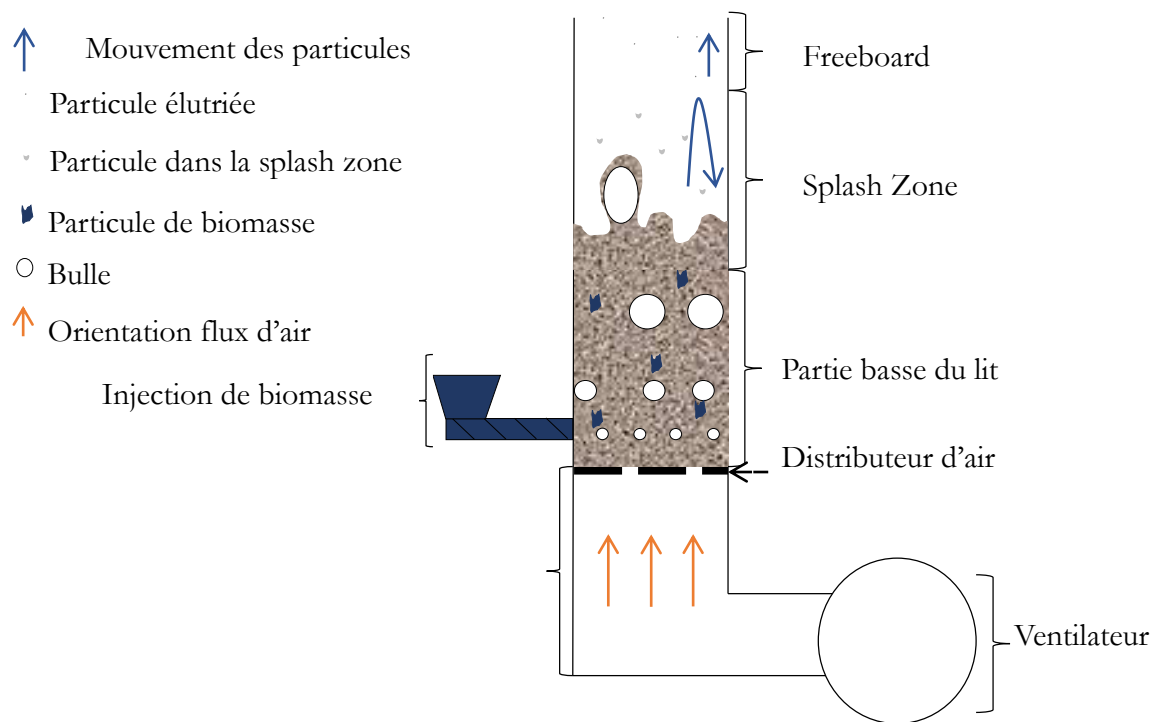


Figure 17 : schéma d'un lit fluidisé dense de gazéification de biomasse

On peut schématiquement découper le lit en plusieurs parties présentant des comportements différents.

La partie basse du lit ou lit dense : elle comporte la majorité des particules de matériau inerte, ainsi que l'essentiel de la biomasse et de ses dérivés solides. Cette zone est fluidisée, les bulles présentes ont un diamètre inférieur à $1/3$ du diamètre du réacteur ⁴⁰.

La partie immédiatement au-dessus du lit ou splash zone⁴⁰ : les bulles devenues plus grosses explosent une fois parvenues à la surface libre, ce qui entraîne des projections de particules. Cette zone représente l'interface entre le lit dense et le freeboard.

Le freeboard est la partie supérieure du réacteur, il est parfois d'un diamètre supérieur à la partie basse du lit pour générer une diminution de la vitesse du gaz et limiter ainsi l'envol des petites particules.

Ce type de réacteur a l'avantage d'être relativement simple et robuste.

III.2 Vitesse minimum de fluidisation (U_{mf})

III.2.1 Définition pour une classe de solide

L' U_{mf} est la vitesse minimale ou minimum de fluidisation, c'est-à-dire la vitesse minimale à partir de laquelle un lit de particules passe de lit fixe à lit fluidisé. De ce fait, les particules acquièrent alors la possibilité de se mouvoir au sein du réacteur.⁴¹

La vitesse de fluidisation varie en fonction des caractéristiques géométrique du réacteur dans lequel a lieu la fluidisation⁴².

Expérimentalement, lorsque la vitesse augmente, la perte de charge Δ_p entre le haut et le bas du lit augmente jusqu'à se stabiliser à une valeur constante (Figure 18). La vitesse à partir de laquelle la Δ_p devient constante est définie comme la « vitesse minimum de fluidisation ».

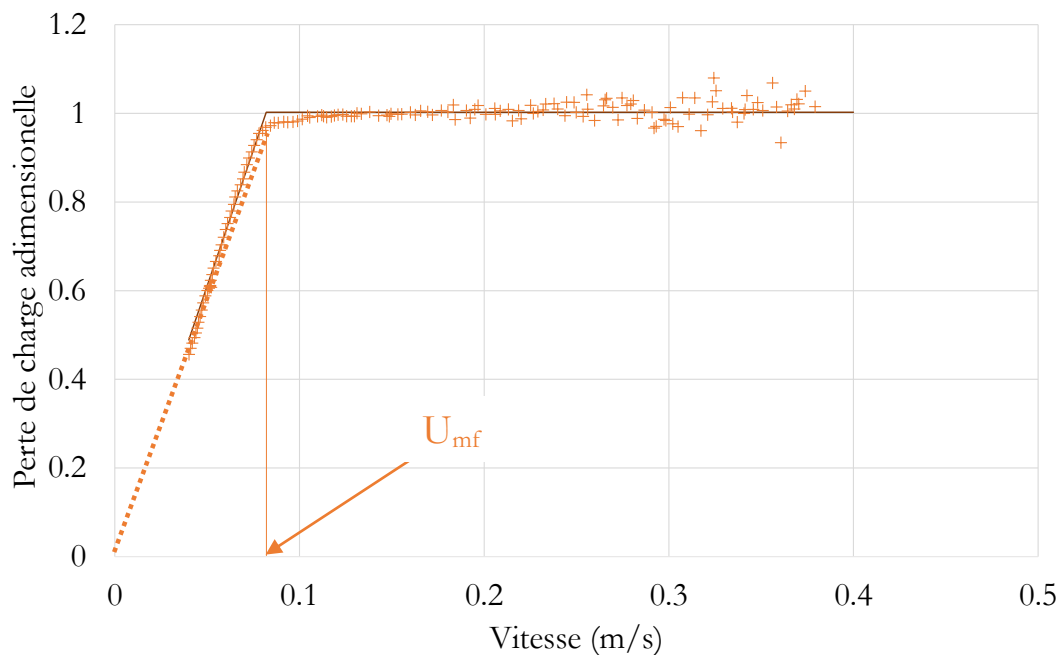


Figure 18 : mesure de la vitesse minimum de fluidisation

III.2.2 Cas d'un mélange de solides

Pour le cas d'un mélange binaire, il est difficile de définir une vitesse minimum de fluidisation⁴³ car la fluidisation des différents composés peut commencer à des vitesses différentes. La Figure 19 résume les différentes vitesses utilisées et définies dans la littérature :

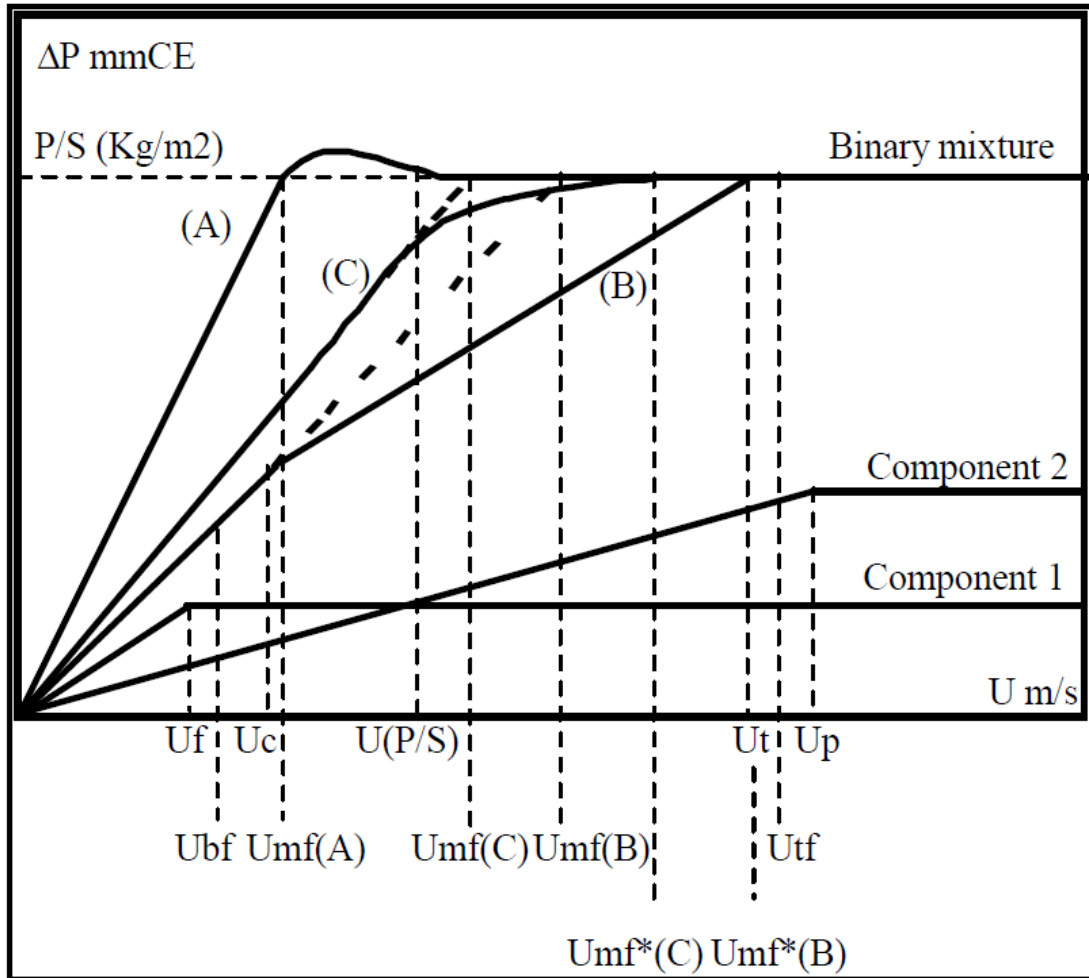


Figure 19 : représentation de quelques vitesses caractéristiques de la fluidisation de mélanges binaires dans la littérature⁴³

Chiba et al.⁴⁴ ont noté trois types de comportement pour des mélanges binaires de matériaux non dispersés. Le mélange parfait (A), la ségrégation totale (B), ou un mélange imparfait(C). U_p est la vitesse minimum de fluidisation du composant ayant la vitesse de fluidisation la plus élevée. U_f est la vitesse minimum de fluidisation du composant ayant la vitesse de fluidisation la plus faible. Le composant le plus fluidisable (respectivement le moins fluidisable) peut être différent des particules flottantes (floatsam) (respectivement qui coulent (jetsam)).

Pour les mélanges de type B, Joseph et al. ⁴⁵ ont caractérisé deux vitesses U_c et U_t respectivement la vitesse initiale de fluidisation et la vitesse de fluidisation complète. Ces vitesses sont respectivement proches de U_f et U_p sauf si les particules les plus fluidisables sont en grande proportion, dans ce cas, U_t est plus faible que U_p .

Pour les mélanges B et C il est possible de définir une vitesse de défluidisation rapide (mentionnée par Rowe et Nienow⁴⁶) : cette vitesse est obtenue en mesurant pendant la phase de défluidisation les pertes de charge en fonction de la vitesse (courbes en pointillées (B) et (C)). Dans ce cas, la perte de charge reste stable tant que l'on n'a pas atteint la vitesse de défluidisation (notée $U_{mf}(B)$ ou $U_{mf}(C)$), avant de décroître de manière linéaire avec la vitesse.

Noda et al.⁴⁷ ont mentionné une autre vitesse notée $U_{mf}^*(B)$, respectivement $U_{mf}^*(C)$ qui correspond à la vitesse minimum obtenue lors d'une défluidisation (ou d'une fluidisation) : cette vitesse est proche de la vitesse de fluidisation totale U_t cependant cette valeur n'est pas toujours facile à déduire graphiquement.

Chen et Keairns⁴⁸ ont proposé deux autres vitesses U_{bf} (respectivement U_{tf}), correspondant à la vitesse à partir de laquelle on note visuellement que les particules fines et peu denses, (respectivement les particules de grandes dimensions et lourdes) se fluidisent. Ces valeurs sont proches de U_t (et respectivement U_c).

Yang et Keairns⁴⁹ ont proposé d'utiliser l'intersection entre le poids du lit et la courbe de fluidisation, ce qui permet de définir la vitesse $U(P/S)$.

Pour un mélange, plusieurs vitesses peuvent donc être mesurées : il est donc incorrect de parler de vitesse minimum de fluidisation pour un mélange. Cependant il est possible de dire que le début de fluidisation du mélange se fera entre la vitesse minimum de fluidisation des particules les plus fluidisables et la vitesse minimum de fluidisation des particules les moins fluidisables.

Dans le reste de ce travail, lorsque le terme de vitesse minimum de fluidisation est abordé, il correspond à la vitesse minimum d'un seul composé (généralement l'olivine).

Des travaux récents⁵⁰⁻⁵² ont été publiés sur la détermination des vitesses initiales et finales de fluidisation : ils concluent qu'il est difficile de produire des corrélations pour estimer ces vitesses.

La publication récente de Paudel et Feng⁵³ propose néanmoins une relation (Eq.(3)) permettant de calculer le Reynolds de fluidisation total d'un mélange contenant une fraction massique x_b de biomasse. De ce nombre peut ensuite être déduite la vitesse de fluidisation totale du mélange.

$$Re_{tot} = (30.28^2 + (0.046(1 - x_b) + 0.108x_b^{0.5})Ar)^{0.5} - 30.28 \quad (3)$$

III.3 Distributeur du gaz de fluidisation

Le distributeur du gaz de fluidisation est un élément important pour un lit fluidisé. Il en existe plusieurs types qui seront présentés brièvement dans ce paragraphe. Le choix du distributeur dépend des conditions d'utilisation du procédé ; les distributeurs ne garantissent pas les mêmes résistances mécaniques ou thermiques.

La qualité de la fluidisation dépend en grande partie du distributeur. En plus de distribuer uniformément le gaz, le distributeur doit (1) supporter la masse du lit à l'arrêt, (2) empêcher le sable de couler dans la boîte à vent, (3) résister aux contraintes thermiques, et aux attaques chimiques et (4) limiter l'attrition des particules.

Il est possible de classer les distributeurs en trois grandes familles :

1) les distributeurs poreux (Figure 20 (a))

Ces distributeurs présentent l'avantage de produire une fluidisation très homogène. Ils sont cependant réservés à des réacteurs de petite taille car ils sont peu résistants mécaniquement, sensibles aux contraintes thermiques et à l'encrassement. Ils ne peuvent pas être utilisés pour des installations de grande taille car la perte de charge générée par le distributeur est souvent importante. Pour cela d'autres types de distributeurs ont été proposés ;

2) les distributeurs perforés

Ils sont composés d'une plaque composée de trous de l'ordre de quelques millimètres. Ces distributeurs sont couramment utilisés dans l'industrie, de conception simple ils peuvent être fabriqués à faible coût. Il est possible de concevoir des plaques perforées avec des diamètres de trous variables, ou des formes convexes (Figure 20 (b)), pour accentuer les mouvements des particules au sein du lit. Afin d'éviter les chutes de particules dans la boîte à vent il est nécessaire de rajouter une seconde plaque à trou décalée (Figure 20 (c)), ou un tissu entre deux plaques à trous (Figure 20 (d)).

3) Les distributeurs à tuyères

Ce système est prépondérant pour le lit fluidisé où les conditions opératoires sont extrêmes (haute température, milieu réactif, ...). Plusieurs types de tuyères peuvent être utilisés :

- les tuyères poreuses ((Figure 20 (e), (f)). Elles peuvent être divisées en deux groupes : les tuyères « type (e) » chacune composée d'une petite plaque poreuse (la qualité de fluidisation au-dessus de chaque tuyère est très homogène, mais les zones mortes

entre les tuyères sont nombreuses), les tuyères types (f) ou spargers qui permettent une fluidisation plus homogène dans l'ensemble des directions.

- les tuyères à calotte ((Figure 20 (g), (h), (i)). Elles empêchent les solides de tomber dans la boîte à vent. Différents designs ont été étudiés afin de limiter les zones mortes entre les tuyères. Afin de limiter l'attrition des particules au voisinage des sorties de buses, ces dernières doivent être de diamètre suffisant. Il faut donc ajouter un système en entrée de la tuyère pour augmenter les pertes de charge pour garantir une fluidisation homogène. (Figure 21 (f), (g), (h)).

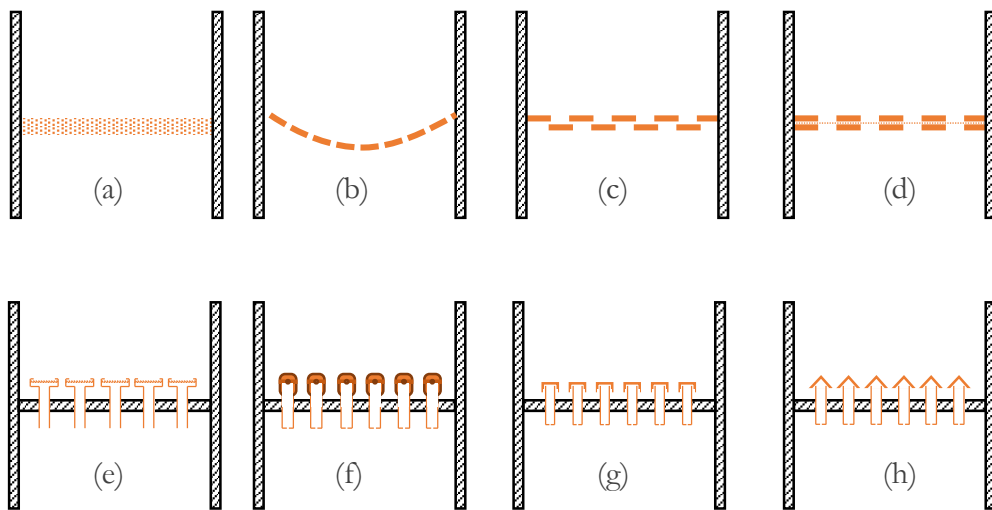


Figure 20 : quelques exemples de distributeurs de gaz de fluidisation

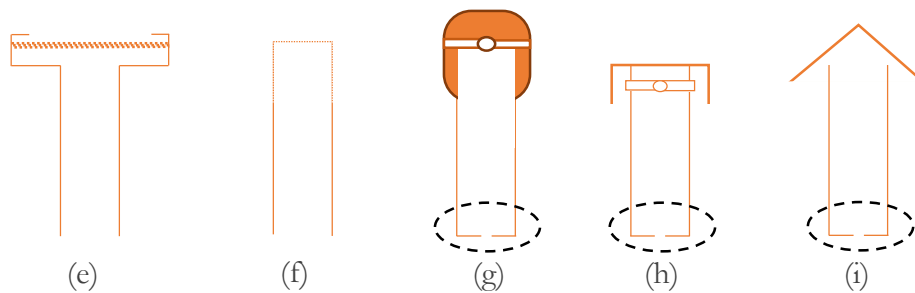


Figure 21 : quelques exemples de tuyères

Le choix du distributeur influe également sur la qualité des mélanges plus particulièrement à proximité de ce dernier, car les bulles ne sont pas de la même taille en sortie de distributeur. La Figure 22 présente schématiquement les différences entre les distributeurs : la plaque poreuse génère beaucoup de petites bulles qui coalescent en montant dans le lit. Cette production de petites bulles provoque une expansion du lit directement au-dessus du distributeur. Les plaques perforées

gènèrent des bulles allongées au-dessus des trous et des zones « mortes » entre les perforations. D'après Wen et al. ⁵⁴, les zones mortes peuvent être limitées en modifiant les paramètres opératoires et les paramètres du distributeur. Les tuyères produisent des bulles de taille moyenne mais qui sont globalement sphériques⁵⁵ lorsque la vitesse du gaz augmente les bulles produites coalescent à l'horizontal en formant des jets⁵⁴ qui augmentent le mélange des particules.

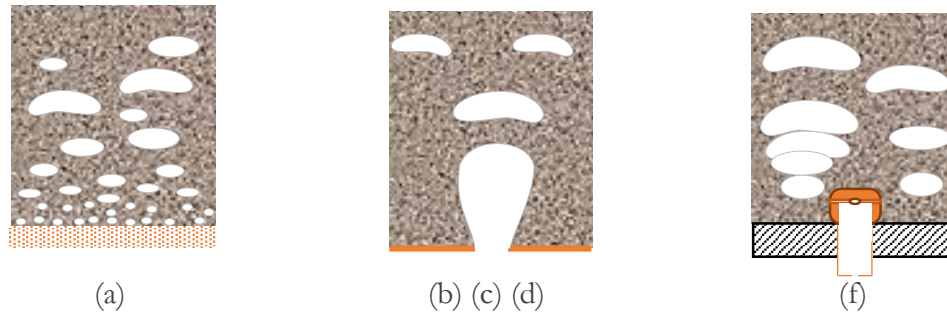


Figure 22 : impact du distributeur sur le bullage

Afin de garantir une fluidisation homogène, il est nécessaire que la perte de charge générée par le distributeur soit assez grande. De nombreux auteurs ^{37,56-61} ont proposé des conditions à respecter pour garantir une fluidisation homogène. Kunii et Levenspiel³³ ont résumé ces travaux en 5 recommandations de conception :

- (I) pour $U \approx U_{mf}$ alors $\frac{\Delta P_{distr}}{\Delta P_{lit}} \geq 0.15$
- (II) lorsque la vitesse augmente, le ratio $\frac{\Delta P_{distr}}{\Delta P_{lit}}$ nécessaire devient plus faible.
- (III) la hauteur du lit ne joue pas sur la valeur nécessaire de $\frac{\Delta P_{distr}}{\Delta P_{lit}}$.
- (IV) pour deux lits ayant des caractéristiques similaires (même U_{mf} , et même vitesse de fluidisation) mais des distributeurs différents il faudra respecter l'équation (4).

$$\frac{\Delta P_{distr}}{\Delta P_{lit} \text{ plaque poreuse}} > \frac{\Delta P_{distr}}{\Delta P_{lit} \text{ plaque à trous}} \quad (4)$$

- (V) utiliser la règle empirique $\Delta P_{distr} = (0.2 - 0.4) \Delta P_{lit}$

Antonini ⁶² préconise d'avoir un ΔP_{distr} tel que :

$$\begin{aligned} \Delta P_{distr} &\geq 3500 \text{ Pa} \\ 0.1 \Delta P_{lit} &\leq \Delta P_{distr} \leq 0.3 \Delta P_{lit} \end{aligned} \quad (5)$$

Cette préconisation correspond à celle proposée par Kunii et Levenspiel en ajoutant une contrainte supplémentaire sur la valeur minimale de la perte de charge du distributeur.

III.4 Mélange et ségrégation de solides

Dans ce paragraphe l'étude porte sur la ségrégation des différents solides au sein du réacteur. D'après la littérature, les phénomènes de mélange sont principalement liés aux bulles présentes dans le lit ^{46,63,64}.

Les deux facteurs les plus importants dans les phénomènes de ségrégation et de mélange sont la différence de taille et la différence de masse volumique. La plupart du temps les deux phénomènes sont étudiés indépendamment l'un de l'autre, et rarement combinés ensemble comme dans Delebarre et al.⁴³. L'étude porte soit sur des ségrégations en taille^{45,50,65-73} soit sur la ségrégation en masse volumique ^{45,50,68,69,74}. Les particules peuvent être catégorisées en deux classes les « floatsam », particules qui ont tendance à flotter vers la surface, et les « jetsam » particules qui ont tendance à couler dans le fond du lit.

Il n'y a que peu de travaux qui s'intéressent au cas particulier des particules de biomasse au sein d'un lit de sable, c'est-à-dire des particules de très grande taille et de faible masse volumique (floatsam) dans un lit de particules denses et de petite taille (jetsam). Des études récentes ont été publiées sur ce sujet ^{68,75-80}. Les résultats vont être présentés dans le paragraphe suivant.

III.4.1 Observations

D'après les résultats des précédentes études, les particules jetsam sont en général de classe B, d'une masse volumique comprise entre 2000 kg/m³ et 2700 kg/m³ et d'un diamètre moyen compris entre 160 µm et 500 µm.

Les floatsam sont plus diverses, le diamètre est généralement plus grand que celui des jetsam. La masse volumique est comprise entre 350 kg/m³ et 1200 kg/m³.

III.4.2 Etude paramétrique

III.4.2.1 Vitesse de fluidisation

La vitesse est un paramètre important pour l'étude de la ségrégation. Comme expliqué précédemment, pour le cas d'un mélange il y a deux vitesses qui sont importantes, la vitesse initiale de fluidisation (U_{if}) et la vitesse de fluidisation complète (U_{cf}). La vitesse de fluidisation complète sera considérée comme la vitesse minimum de fluidisation (U_{mf}).

Vitesse de fluidisation inférieure à U_{mf}

Prenons un réacteur contenant un lit de particules parfaitement mélangé (Figure 23 (a)). Lorsque l'air injecté a une vitesse U inférieure à U_{cf} , la répartition de la biomasse dans le réacteur ne change pas. Pour $U_{if} < U < U_{cf}$, les particules de biomasse migrent lentement vers la surface, le lit se retrouve dans une situation de ségrégation locale, la biomasse se retrouve majoritairement en surface (Figure 23 (b)). Lorsque la vitesse atteint U_{cf} l'ensemble de la biomasse migre vers la surface, le lit est globalement ségrégué (Figure 23 (c))⁷⁶.

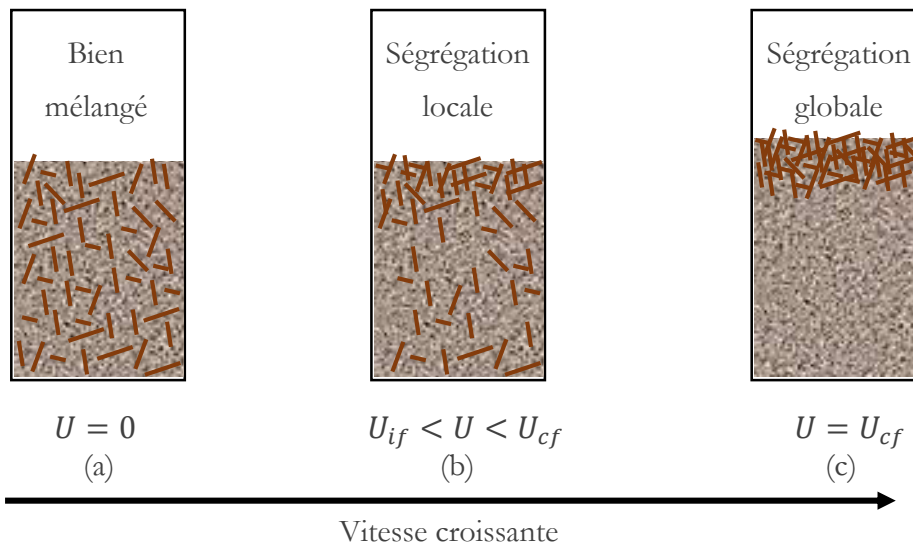


Figure 23 : évolution du mélange et de la ségrégation pour des vitesses inférieures à la vitesse de fluidisation totale

Vitesse de fluidisation supérieure à U_{mf}

Pour une vitesse d'environ $1.2 U_{mf}$

La localisation des particules de biomasse au voisinage de la surface libre reste prépondérante^{76,78,80,81} pour de faibles vitesses de fluidisation. Dans ces conditions, les particules de biomasses migrent vers la surface dans le sillage des bulles. Dans un lit fluidisé chaud les bulles endogènes, formées par la dévolatilisation de la biomasse, accélèrent le phénomène d'ascension imputable aux bulles⁸¹. Une fois que la particule de biomasse flotte en surface du lit, elle ne redescend plus dans le cœur du réacteur^{76,80}.

Pour une vitesse d'environ $1.5 U_{mf}$

A partir de cette vitesse, l'hydrodynamique évolue : le bullage est plus intense, les particules commencent à subir des mouvements de circulation interne. Les particules de biomasse subissent également ces mouvements, tout en subissant les effets ascensionnels causés par les bulles, la biomasse se retrouve plus mélangée dans le lit tout en étant en majorité dans la partie supérieure du lit^{80,77}. D'après les observations d'Halow et al⁸⁰, les particules de bois se situent majoritairement à proximité de l'axe du lit, mais Shen et al⁷⁷ ont observé un comportement contraire lors de leurs manipulations. Cette différence de comportement de la biomasse peut s'expliquer par une différence de bullage dans le réacteur.

Pour une vitesse d'environ $4 U_{mf}$

Des mouvements internes de particules dans le lit ont été observés par plusieurs auteurs^{75,79,82,83}. Ils les qualifient de « Gulf Stream » ou de « vortex » (Figure 24). Les particules suivent des mouvements ascendants au centre du réacteur pour subir des mouvements descendants à proximité des parois. La zone centrale du lit est plus poreuse que les parois, elle contient plus de bulles. Les particules de biomasses subissent ces courants, elles sont présentes dans l'ensemble du lit, mais la concentration reste plus importante à proximité de la surface. D'après les observations de Zhang et al⁷⁶ une quantité non négligeable de biomasse se retrouve dans la partie basse du lit (entre 10 et 15% selon le ratio de biomasse dans le lit). Farzaneh et al.⁷⁹ ont étudié la vitesse de déplacement des particules de biomasses, ils en ont déduit les coefficients de dispersion horizontale ($4.1 \cdot 10^{-3} m^2/s$), et verticale ($8.3 \cdot 10^{-3} m^2/s$). Les particules de biomasse se déplacent deux fois plus vite à la verticale qu'à l'horizontale.

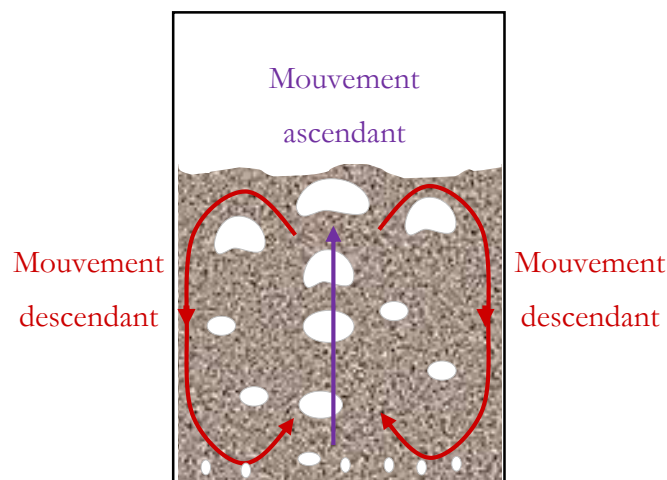


Figure 24 : vortex au sein du réacteur

Pour une vitesse proche de $5 U_{mf}$

L'homogénéité du lit est la meilleure pour cette vitesse⁷⁶, c'est-à-dire que c'est pour cette vitesse que l'on retrouve la plus grande concentration de biomasse dans les tranches inférieures du lit.

Pour des vitesses supérieures à $5 U_{mf}$

Peu de travaux ont été publiés pour ces vitesses de fluidisations, les travaux de Fotovat et al.⁷⁵ mettent en évidence que le mélange des particules de biomasse est plus important pour les hautes vitesses ($6.5 U_{mf}$) que pour des vitesses plus faible ($3 U_{mf}$). Zhang et al⁷⁶ ont effectué un plus grand nombre de mesures pour des vitesses comprises entre $5 U_{mf}$ et $10 U_{mf}$. Pour ces vitesses, il semble que la ségrégation redevienne un phénomène prédominant (Figure 25).

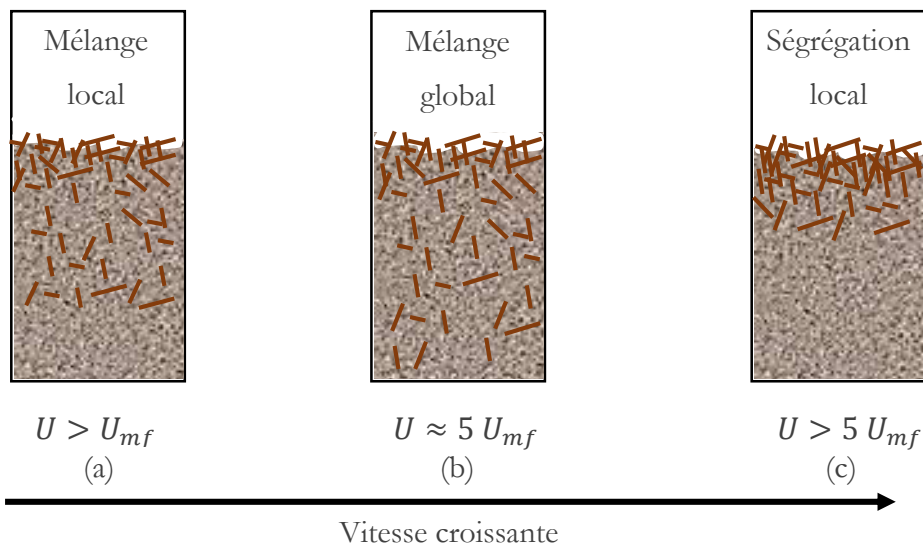


Figure 25 : évolution du mélange et de la ségrégation selon la vitesse de fluidisation

Les observations de Fotovat et al⁷⁵ montrent que la vitesse ascendante des particules est liée à la vitesse ascendante des bulles (Eq.(6))

$$U_{biom,asc} = 0.2 U_b \quad (6)$$

Ces résultats sont en accord avec ceux de Soria-Verdugo et al⁸⁴.

III.4.2.2 Biomasses

Les caractéristiques et les fractions massiques de biomasse influent sur le mélange global de ces particules dans le lit.

Caractéristiques de la biomasse

Lorsque les particules sont de petites dimensions (<0.15 mm) ou légères (de masse volumique inférieure à 100 kg/m^3), elles sont éluées hors du lit⁸⁵.

Dans le cas de petites particules⁸⁶ (0.5-1.3mm) de faible masse volumique (350 kg/m^3), pour une vitesse donnée, l'homogénéité du mélange est meilleure lorsque les particules sont de petites dimensions.

Pour des particules de tailles intermédiaires⁸⁰ (3-4 mm de diamètre), si leur masse volumique est importante ($>1250 \text{ kg/m}^3$), les particules migrent vers le fond du lit et ne se déplacent plus quelle que soit la vitesse de fluidisation. Lorsque la masse volumique est plus faible (entre 550 kg/m^3 et 1200 kg/m^3), le mouvement des particules dépend fortement de la vitesse de fluidisation. Lorsqu'elle est faible ($<1.5 U_{mf}$), les particules légères (masse volumique $< 760 \text{ kg/m}^3$) flottent en surface alors que les particules denses (masse volumique $> 1100 \text{ kg/m}^3$) coulent vers le distributeur. Lorsque la vitesse dépasse $3 U_{mf}$, toutes les particules se déplacent dans l'intégralité du lit, la concentration de particules légères est plus importante dans la partie haute du lit alors que la concentration de particules denses est plus importante dans le bas du lit. Pour une particule de masse volumique intermédiaire (790 kg/m^3), sa concentration est plus uniforme dans le lit quelle que soit la vitesse de fluidisation.

Ratio de biomasse dans le lit

Le ratio de biomasse impacte la qualité du mélange (Figure 26). Pour des petites particules (0.5-1.3 mm) de faible masse volumique (350 kg/m^3), plus il y a de biomasse dans le lit, plus la biomasse se déplace dans l'ensemble du lit, mais moins le mélange est homogène⁸⁶. Ces résultats ont été obtenus pour des faibles vitesses.

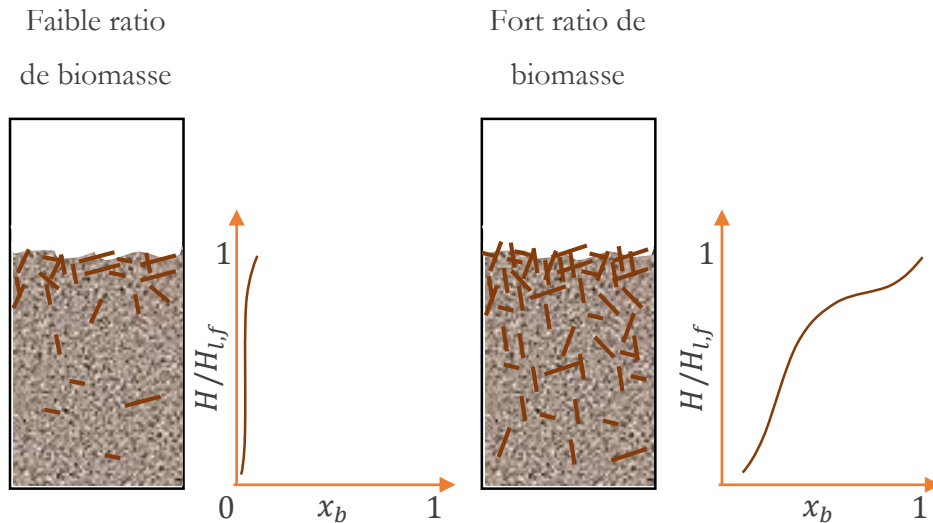


Figure 26 : mélange de petites particules

Lorsque la vitesse de fluidisation dépasse $4 U_{mf}$, le taux de biomasse (entre 1 % et 10% en volume) n'influe plus sur la qualité du mélange⁸⁰. Pour des taux de biomasse plus important (entre 10 % et 60 % en volume), plus il y a de biomasse dans le lit, plus cette biomasse est présente dans le bas du réacteur^{75,76}.

Les caractéristiques de la biomasse impactent fortement leur mélange avec les particules d'inerte. Plus les particules de biomasses sont de petite taille, meilleur est le mélange. Outre les particules de petites dimensions ($<150 \mu\text{m}$) ou de faibles masses volumique ($<100 \text{kg/m}^3$) éluées hors du lit, les particules denses se retrouvent majoritairement dans la partie basse du lit alors que les particules légères sont dans la partie haute du lit. La quantité totale de biomasse dans le réacteur joue également un rôle, plus il y a de bois dans le réacteur, plus on trouvera du bois dans l'ensemble des couches, mais moins le mélange sera homogène. C'est-à-dire que la fraction de bois dans chaque tranche sera différente de la fraction moyenne de bois dans le lit.

III.4.2.3 Caractéristiques du matériau de lit

Pour de faibles vitesses ($1-2U_{mf}$), plus le matériau du lit est de petit diamètre, plus les particules de biomasses vont migrer rapidement vers la surface, par augmentation de la vitesse des bulles liée à la diminution du diamètre moyen des particules d'inertes⁷⁸. Ce phénomène est moins impactant pour des vitesses élevées car dans ce cas, le déplacement des particules de biomasse est moins dépendant de la vitesse de montée des bulles.

La hauteur du lit n'influe pas sur la répartition de la biomasse⁷⁹, en revanche le coefficient de dispersion en est fortement dépendant. Pour une vitesse de $4.3 U_{mf}$, le coefficient de dispersion vertical est de $8.3 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$ pour un lit de 40 cm contre $2.5 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2/\text{s}$ pour un lit de 56 cm. Le coefficient de dispersion horizontale est également impacté par l'augmentation de hauteur du lit $4.1 \cdot 10^{-3}$ pour le lit de 40 cm contre $8.6 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$ pour le lit de 56 cm.

III.4.2.4 Caractéristiques du réacteur

Le distributeur influence le mélange des particules de biomasse avec celles d'inerte (Figure 27). L'homogénéité de la fluidisation dépend de sa conception géométrique³⁷. L'utilisation de plaques perforées concaves permet d'augmenter les phénomènes de vortex permettant un meilleur mélange des particules⁷⁸. De même l'utilisation d'une plaque perforée asymétrique permet de favoriser les mouvements internes du lit⁸². L'augmentation de ces phénomènes de circulation interne induit une augmentation de l'homogénéité de la répartition de la biomasse dans le lit.

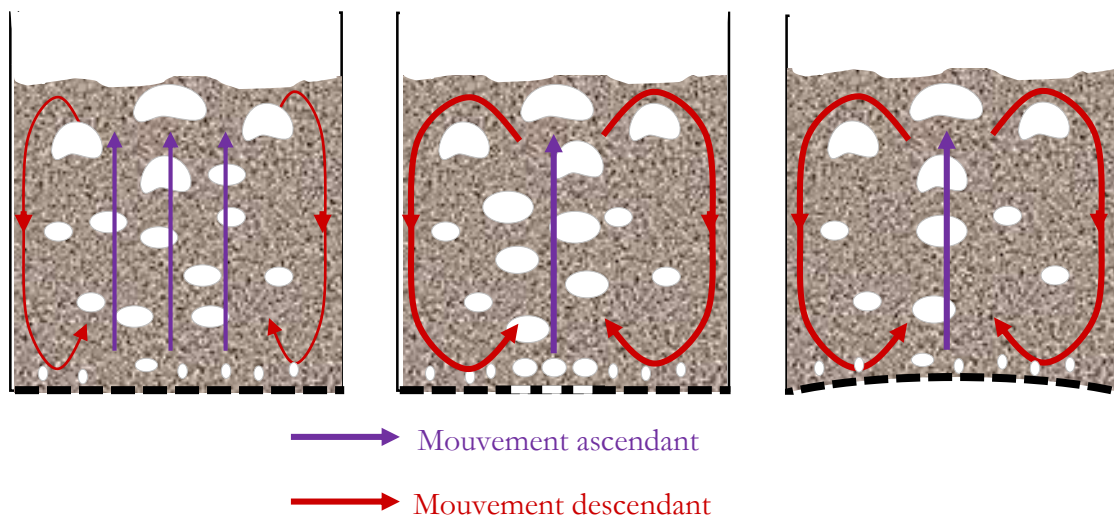


Figure 27 : impact du distributeur sur les mélanges

III.4.3 Critères de caractérisation

Le lit peut être caractérisé par tranche en fonction de son degré de mélange notamment par l'indice de mélange ou « Mixing Index » (MI)⁸⁷ qui permet de calculer pour chaque tranche un indice représentant la qualité du mélange. Il est calculé à partir des fractions massiques de jetsam dans la tranche ($\omega_{jet,i}$) et dans la totalité du lit ($\omega_{jet,lit}$) (Eq. (7)):

$$MI_{jet} = \frac{\omega_{jet,i}}{\omega_{jet,lit}} \quad (7)$$

Pour un lit totalement ségrégé, l'indice de mélange se rapproche de zéro, plus le lit est homogène plus le MI_{jet} se rapprochera de 1.

Un indice de mélange des floatsam pour la tranche i $MI_{float,i}$ peut être défini de la même façon. (Eq.(8))

$$MI_{float,i} = \frac{\omega_{float,i}}{\omega_{float,lit}} \quad (8)$$

A partir de l'indice de mélange local ($MI_{float,i}$), un indice de mélange global (IMG) peut être calculé⁸⁸ (Eq.(9)).

$$IMG = 1 - \left(\frac{\sum_{i=1}^N (MI_{float,i} - 1)^2}{(MI_{float,j}^0 - 1) + (N - 1)} \right)^{0.5} \quad (9)$$

L'IMG permet de comparer des résultats ayant été obtenus dans des situations similaires. L'IMG se rapproche de 1 lorsque le mélange est homogène, alors que cet indice peut être négatif pour un lit globalement ségrégé.

III.5 Méthodes de mesure dans un LFB

Plusieurs techniques ont été développées au cours des précédentes décennies pour instrumenter et analyser les comportements des lits fluidisés. Ce paragraphe permet de mettre en avant les techniques de mesures courantes.

III.5.1 Analyse d'images

Le comportement du lit est enregistré sous forme d'images, les images sont par la suite analysées pour en extraire les données escomptées.

Le principal avantage de cette technique est la facilité de mise en place et le faible coût des instruments nécessaires. En contrepartie, cette technique est valable uniquement si le réacteur de fluidisation est transparent. Cette contrainte limite souvent l'utilisation de cette technique à des maquettes froides.

Un lit fluidisé gaz solide est souvent opaque, cette technique est donc seulement valable :

- 1) pour des systèmes gaz-solides très dilué,
- 2) pour visualiser la couche pariétale du lit fluidisé,
- 3) pour des lits pseudo 2D (épaisseur de quelques centimètres).

Dans le cas des lits fluidisés bouillonnants, lorsque les mesures sont effectuées dans la partie dense du lit, le mélange solide/gaz est opaque. Dans ce cas les clichés obtenus ne représentent que la couche pariétale. Ces observations ne représentent pas l'ensemble des phénomènes internes. Lors de la fluidisation il peut y avoir génération d'électricité statique due aux frottements des particules sur les parois du réacteur. Elle peut perturber les écoulements des particules au niveau des parois⁸⁹. Ces limitations sont à prendre en compte avant de choisir ce type de mesures.

Les vitesses d'enregistrement des images varient suivant les auteurs^{83,90-100}, l'utilisation de vitesses d'enregistrement élevées permettant d'obtenir plus de précision sur les phénomènes dynamiques. La plupart des essais utilisant cette technique d'observation directe sont effectués dans des lits pseudo 2D^{94,96}. Plusieurs publications^{83,90,94-100} utilisent cette technique pour caractériser les bulles (forme, taille, vitesse).

Ces mesures peuvent également permettre de caractériser le comportement des solides dans le lit. (matériau inerte⁹⁰⁻⁹³, biomasse^{65,77}).

Comme précisé précédemment ces techniques ne sont utilisables que sur des lits en 2D. Or les comportements des réacteurs 2D sont différents de ceux des réacteurs 3D.

III.5.2 Mesures de différence de pression

Des capteurs de pressions sont installés le long de la paroi du réacteur pour mesurer des profils de pression. Ces mesures peuvent être analysées pour caractériser l'état de fluidisation du lit. Plusieurs types d'analyses peuvent être effectués en fonction des données enregistrées.

III.5.2.1 Fréquences des mesures

Les données provenant des capteurs de pressions peuvent être analysées de différentes manières en fonction des objectifs de l'étude comme l'utilisation d'une pression moyenne au cours d'un laps de temps important, ou celle d'une mesure de pression à haute fréquence.

Le temps d'acquisition nécessaire dépend des analyses que l'on souhaite effectuer. Dans le cas d'une analyse spectrale, la durée minimum de l'essai doit être de 30 minutes^{101,102}. Lorsque les données enregistrées sont moyennées sur la durée de l'essai, l'enregistrement des signaux de pression doit être de durée supérieure à la moyenne des phénomènes observés.

Moyennes temporelles des pertes de charges

L'analyse des données est faite à partir de la pression moyenne obtenue pendant un temps « t » (de quelques secondes à quelques heures). Pour cela, les mesures peuvent être enregistrées à une faible fréquence.

Les systèmes industriels sont équipés de capteur de pression basse fréquence permettant de contrôler l'évolution du procédé⁹². La masse volumique moyenne de la tranche peut être déduite de la pression moyenne de cette tranche.

Soit deux capteurs espacés d'une distance h (distance verticale), la perte de charge entre ces deux capteurs est notée ΔP . Soit ρ_g la masse volumique du gaz et ρ_p la masse volumique des particules et ϵ la porosité de la tranche. La perte de charge de la tranche est reliée à la masse volumique du solide comme suit (10).

$$\Delta P = hg(1 - \epsilon)(\rho_p - \rho_g) \quad (10)$$

Lorsque le lit est en état de fluidisation, les forces de frottement sur les particules compensent le poids des particules et la masse de la tranche se déduit de la perte de charge (Eq. (11)) en supposant que la masse volumique du gaz est négligeable devant celle du solide.

$$m_{tranche} = \frac{\Delta P A_{lit}}{g} \quad (11)$$

Prise de pression rapide

Les fluctuations du signal de pression enregistrées à haute fréquence permettent de caractériser l'hydrodynamique du réacteur. La fréquence minimum nécessaire pour ces analyses est environ de 20 Hz. Ce choix de fréquence minimum est à définir à partir de la résolution escomptée et en respectant la condition de Shannon. Suivant les auteurs^{43,103,104}, la fréquence de mesure varie de 50 Hz^{103,105} à 1000 Hz.¹⁰⁴

L'analyse des mesures de pression peut permettre de caractériser la qualité de l'hydrodynamique du lit, pour cela il est nécessaire de prendre certaines précautions.

III.5.2.2 Jonction capteur/lit

Les capteurs de pressions sont généralement raccordés au lit par le biais d'un tube. Il est recommandé que la longueur du tube soit la plus faible possible pour éviter les problèmes de résonance. De plus le diamètre interne du tube doit être compris entre 2 et 5 mm¹⁰⁶. Un diamètre inférieur à 2 mm amorti le signal alors qu'un diamètre supérieur à 5 mm peut entraîner des résonances.

La jonction entre le lit fluidisé et le capteur doit être étanche aux particules solides afin de protéger le capteur. Une toile poreuse métallique est généralement utilisée pour protéger le capteur. Il faut que la porosité de la toile soit suffisante pour ne pas perturber les mesures¹⁰⁶. Afin d'éviter l'utilisation d'une toile, il est possible d'appliquer un flux de purge du capteur vers le lit, ce flux doit être compris entre 0.5 et 2 m/s en fonction du type de particules¹⁰⁷.

III.5.2.3 Origine des variations de pression

L'interprétation des mesures de pression à haute fréquence provenant des lits fluidisés bouillonnants est complexe. L'explication des phénomènes hydrodynamique à partir des mesures de pression suscite le débat dans la communauté scientifique¹⁰⁸⁻¹¹⁰. Les variations rapides de pression proviendraient du passage des bulles et des ondes de compression traversant le lit.

(1) passage de bulles

Lorsqu'une bulle traverse le lit et passe à proximité du capteur de pression, une variation de pression est générée avec une forme spécifique détaillée par le modèle de Davidson¹¹¹. Dans la partie inférieure du lit, le passage des bulles ne contribuent que faiblement aux variations de pression. Le passage des bulles est plus visible à proximité de la surface qu'au milieu du lit¹¹². Cela est dû au fait que les bulles coalescent avec la hauteur, leur taille devient plus grande et l'impact de leur déplacement plus important.

(2) ondes de compression

Les ondes de compression peuvent se propager dans toutes les directions. L'amplitude d'une onde de compression allant du bas en haut décroît linéairement avec la hauteur pour atteindre zéro à la surface¹¹⁰. Les ondes de compression rapides peuvent être créées par plusieurs facteurs :

- génération de bulles : la génération des bulles au niveau de la plaque de distribution implique un mouvement vertical des particules du bas vers le haut. La fréquence de génération des bulles est une des fréquences principales dans le spectre des mesures de pression¹¹³;
- coalescence des bulles : la coalescence des bulles est également à l'origine de variations de pression¹⁰⁸;
- éruption de bulles : lorsque les bulles arrivent en surface, la hauteur du lit diminue, ce qui induit une chute de la pression sous la bulle en éruption¹¹⁴;
- variations du débit de gaz vecteur : les fluctuations dans le débit d'alimentation entraînent des variations de pression. Ce point est particulièrement important lorsque la perte de charge du distributeur est faible ; cela entraîne une plus grande interaction entre le lit fluidisé et le système d'alimentation en gaz¹¹⁵.

III.5.3 Suivi de particules

Cette technique est la plus récente. Elle consiste à suivre les déplacements de particules dans le temps, au sein du lit. Différentes technologies sont proposées dans la littérature : suivi d'une particule magnétique⁸⁰, suivi d'un lot de particules radioactives^{75,116,117} ou suivi de particules phosphorescentes⁷⁹ par photographie.

Ces technologies sont relativement contraignantes et compliquées à mettre en place. Le traçage magnétique ne peut se faire que pour des réacteurs non métalliques, de très petits diamètres (50mm) et pour des lits de particules non ferreuses. Le traçage radioactif nécessite un matériel complexe et des méthodes expérimentales contraignantes.

IV. Modélisation d'un LFB de gazéification

La modélisation d'un lit fluidisé de gazéification nécessite la prise en compte d'un ensemble de réactions physico-chimiques ayant lieu dans le réacteur. La première partie de ce paragraphe présentera l'étude hydrodynamique du lit et la seconde présentera brièvement les réactions chimiques susceptibles d'être présentes dans le réacteur.

IV.1 Hydrodynamique

L'hydrodynamique des lits fluidisés est un sujet traité depuis les années 1950 avec en particulier les travaux d'Ergun¹¹⁸ et quelques années plus tard ceux de Harrison et Davidson¹¹¹ et de Geldart³¹.

IV.1.1 Approches de modélisation

A l'heure actuelle, deux types d'approches sont utilisées pour modéliser et caractériser l'hydrodynamique des lits fluidisés, une approche dite systémique et une approche de mécanique des fluides numériques (CFD).

IV.1.1.1 Mécanique des fluides numérique

L'approche CFD peut se faire de deux façons, une approche lagrangienne (suivi d'un cluster de particules) ou eulérienne (suivi d'une zone fixe du lit). Pour chaque cluster étudié, un bilan de force et d'énergie est effectué, pour cela il est nécessaire de calculer l'ensemble des forces agissant sur le cluster. De nombreux travaux ont été présentés sur le sujet¹¹⁹⁻¹²³, ces modèles nécessitent des puissances très importantes de calcul, il est actuellement compliqué d'utiliser ce type de modèle pour des réacteurs de grandes tailles.

IV.1.1.2 Approche systémique

L'approche systémique consiste en une approche globale du système. Le lit fluidisé est décomposé en plusieurs zones qui sont étudiées séparément les unes des autres.

Deux zones sont généralement considérées : le lit dense et le freeboard. Seule la modélisation du lit dense est détaillée dans ce chapitre, les données concernant le freeboard pouvant être puisées dans la thèse de Authier¹⁸.

La modélisation des lits fluidisés s'inspire de la théorie à deux phases. Selon cette théorie, le lit dense peut être divisé en deux phases, une phase dense (ou phase émulsion) et une phase diluée (ou phase bulle). La phase bulle est uniquement constituée de gaz provenant de l'air de fluidisation et de la dévolatilisation de la biomasse. La phase émulsion est un mélange de gaz et des matériaux solides du lit. Soit un débit Q d'air injecté dans le lit, une fraction de ce débit permet la fluidisation de l'inerte ($Q_e = Q_{mf} = U_{mf}A_{lit}$), l'autre fraction du gaz est responsable de la formation des bulles ($Q_{bulle} = Q - Q_{mf} = (U - U_{mf})A_{lit}$). Voir la Figure 28.

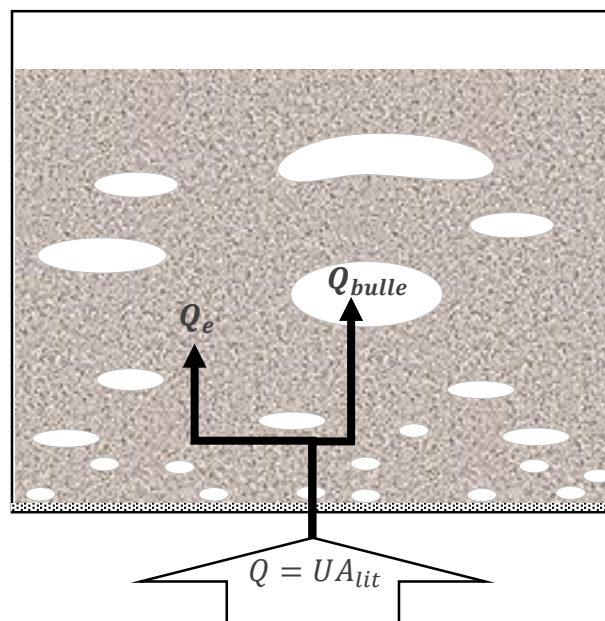


Figure 28 : schématisation de la théorie à deux phases

D'après cette théorie applicable aux particules de classe B de Geldart, la porosité de l'émulsion est égale à la porosité du lit de particules au minimum de fluidisation : si la vitesse de fluidisation (U) est supérieure à U_{mf} , il y aura formation de bulles et le volume des bulles sera dépendant de la différence de vitesse ($U - U_{mf}$).

Les modèles utilisés actuellement s'inspirent du modèle à deux phases ; la phase bulle est actuellement considérée comme pouvant contenir un peu de solide inerte. La fraction de bulles initialement éventuellement jugée trop importante nécessite parfois un facteur correctif¹²⁴.

Ces modèles à deux phases ont été étudiés^{18,19,111,125} et utilisés depuis les années 1960. Dans ces modèles, la biomasse n'est pas prise en compte dans les calculs, elle est généralement considérée comme présente uniquement à la surface libre du lit ou dans la splash zone¹⁸. L'interaction de la biomasse avec le lit fluidisé n'est donc pas prise en compte.

Ces modèles sont basés sur des corrélations permettant de caractériser chacune des phases, le paragraphe suivant décrit les corrélations habituellement appliquées pour modéliser les lits fluidisés selon cette théorie élargie.

IV.1.2 Modélisation par corrélations empiriques

L'approche corrélative des phénomènes permet de mettre en place des modèles représentant la complexité de la fluidisation avec des équations simples.

L'ensemble des corrélations se base sur des données physiques provenant :

- du réacteur (diamètres, hauteur, type de distributeur)
- du matériau inerte (masse volumique, diamètre moyen, porosité au repos, sphéricité,...)
- du gaz de fluidisation (densité, vitesse...)

IV.1.2.1 Calcul de la vitesse minimale de fluidisation U_{mf}

La caractérisation de l'hydrodynamique commence par la détermination de la vitesse minimum de fluidisation.

La relation proposée par Ergun¹¹⁸ permet de calculer la perte de charge d'un lit fixe de particules à partir de la vitesse de l'air U et des caractéristiques du matériau de lit (Eq (12))

$$\frac{\Delta P}{H} g_c = 150 \left[\frac{(1 - \varepsilon)^2 \mu U}{\varepsilon^3 d_p^2} \right] + 1.75 \left[\frac{(1 - \varepsilon) \rho_g U^2}{\varepsilon^3 d_p} \right] \quad (12)$$

Cette relation est utilisée à la limite minimale de fluidisation en l'égalant au poids du lit par Eq (10) :

$$(1 - \varepsilon_{mf})(\rho_s - \rho_g)g = 150 \left[\frac{(1 - \varepsilon_{mf})^2 \mu_g U_{mf}}{\varepsilon_{mf}^3 (\Phi_s d_p)^2} \right] + 1.75 \left[\frac{(1 - \varepsilon_{mf}) \rho_g U_{mf}^2}{\varepsilon_{mf}^3 \Phi_s d_p} \right] \quad (13)$$

Cette relation peut être réécrite en utilisant les deux nombres adimensionnels : le nombre d'Archimède « Ar » (Eq.(14)) et le nombre de Reynolds « Re » (Eq. (15)).

$$Ar = \frac{\rho_g(\rho_s - \rho_g)d_p^3 g}{\mu_g^2} \quad (14)$$

$$Re_{mf} = \frac{\rho_g U_{mf} d_p}{\mu_g} \quad (15)$$

La relation (13) ci-dessus devient (Eq. (16))

$$Ar = \frac{1.75}{\varepsilon_{mf}^3 \Phi_s} Re_{mf}^2 + \frac{150(1 - \varepsilon_{mf})}{\varepsilon_{mf}^3 \Phi_s^2} Re_{mf} \quad (16)$$

Wen et Yu¹²⁶ ont remarqué que pour un grand nombre de solides divisés :

$$\frac{1}{\varepsilon_{mf}^3 \Phi_s} \approx 14 \quad (17)$$

$$\frac{(1 - \varepsilon_{mf})}{\varepsilon_{mf}^3 \Phi_s^2} \approx 11$$

En utilisant les résultats précédents, l'équation (16) devient l'équation (18) :

$$Re_{mf} = (33.7^2 + 0.0408 Ar)^{0.5} - 33.7 \quad (18)$$

Cette équation peut être rédigée avec le formalisme de (Eq. (19)) en utilisant deux constantes « C_1 » et « C_2 ».

$$Re_{mf} = (C_1^2 + C_2 Ar)^{0.5} - C_1 \quad (19)$$

Les prédictions de la corrélation de Wen et Yu¹²⁶ ont été étudiées^{111,127-132} par un certain nombre d'auteurs qui proposent souvent des coefficients (C_1 et C_2) différents de ceux originels permettant de mieux représenter leurs résultats. Les travaux de Adanez et al.¹³³ et de Thonglimp¹³² permettent de résumer les constantes C_1 et C_2 (Tableau 2).

Tableau 2 : valeurs des constantes pour diverses corrélations de même forme que celle proposée par Wen et Yu¹²⁶

Auteurs	C_1	C_2	Milieu fluidisant	Diamètre particules (mm)	Matériaux/ masse volumique (kg/m ³)
Wen & Yu ¹²⁶	33.7	0.0408		0.22-0.64	Verre, $\rho=2450$ Acier, $\rho =7840$
Bourgeois et Grenier ¹²⁷	25.46	0.03824	Eau et air	0.0086-2.51 102<Ar<5.108	Lucite, $\rho =1200$ Verre, $\rho =2500$ Plomb, $\rho =11300$ Tungstène, $\rho =19300$
Grace ¹²⁸	27.2	0.0408			
Chitester ¹²⁹	28.7	0.0494			
Babu ¹³⁰	25.25	0.0651		0.005-0.287	2560 < ρ < 3920
Thonglimp ¹³²	31.6	0.0425			
Richardson ¹¹¹	25.7	0.0365			
Saxena ¹³¹	25.28	0.0571	air	0.0088-0.141 (6<Re<102)	Dolomite, $\rho =3190$

D'après Kunii et Levenspiel³³, l'équation de Wen et Yu¹²⁶ (Eq.(18)) est valable pour des particules de petites tailles alors que l'équation de Chitester¹²⁹ serait plutôt à utiliser pour des particules de taille plus importante. A contrario, Rhodes¹³⁴ propose d'utiliser la relation de Wen et Yu¹²⁶ pour des particules de taille supérieure à 100 μm .

D'après la théorie à deux phases, la vitesse interstitielle du gaz dans l'émulsion peut être calculée à partir de la vitesse minimum de fluidisation et de la porosité de l'émulsion (Eq.(20)) :

$$U_e = \frac{U_{mf}}{\epsilon_{mf}} \quad (20)$$

IV.1.2.2 Calculs concernant les bulles

D'après la théorie à deux phases, les bulles proviennent de la fraction du gaz au-delà du minimum de fluidisation ($U - U_{mf}$). La caractérisation des bulles passe par le calcul de leur diamètre et de leur vitesse. Cela permet également de calculer la fraction de bulles dans le lit.

IV.1.2.2.1 Diamètre initial des bulles

Le diamètre des bulles évolue avec la hauteur. En sortie de distributeur, la taille initiale des bulles doit être estimée en fonction du type de distributeur. La majorité des travaux utilisent les corrélations proposées par Miwa et al¹³⁵. Les diamètres de bulles sont calculés de façon différente pour un distributeur poreux (Eq. (21)) ou pour des plaques perforées (Eq.(22)) :

$$d_0 = 0.00376(U - U_{mf})^2 \quad (21)$$

$$d_0 = 0.347 \left(\frac{A_{lit}(U - U_{mf})}{n_{or}} \right)^{0.4} \quad (22)$$

Kunii et Levenspiel³³ proposent d'utiliser les relations suivantes pour les plaques perforées en fonction de la vitesse du gaz. Ils calculent le diamètre initial des bulles d'après l'équation (23)

$$d_0 = 0.328 \left(\frac{U - U_{mf}}{\frac{n_{or}}{A_{lit}}} \right)^{0.4} \quad (23)$$

Si d_0 est supérieur à l'espacement entre deux perforations, alors l'équation (24) est préférée.

$$d_0 = 0.00283(U - U_{mf})^2 \quad (24)$$

Ces relations ont le même formalisme que celui proposé par Miwa et al.

IV.1.2.2.2 Diamètre moyen des bulles

Dans une revue récente, Karimipour et Pugsley¹³⁶ comparent les calculs par les corrélations des diamètres de bulles aux résultats expérimentaux de la littérature. L'étude permet de mettre en avant les corrélations adéquates en fonction de différents critères : la classe des particules (A, B, D), la vitesse de fluidisation ($<10 U_{mf}$ et $>10 U_{mf}$) et le type de distributeur (plaque perforée et plaque poreuse). Les corrélations de Cai et al¹³⁷ et de Darton et al¹³⁸ semblent être en moyenne les plus fiables pour l'ensemble des données.

La corrélation de Cai et al¹³⁷ est optimale pour les particules de classe A et D alors que pour les particules de groupe B les corrélations de Choi et al¹³⁹ ou de Mori et Wen¹⁴⁰ sont plus pertinentes.

La corrélation de Darton et al¹³⁸ est la plus précise pour des fluidisations à haute vitesse alors que celle de Agarwal¹⁴¹ est plus pertinente pour les faibles vitesses.

Lorsque le distributeur d'air est poreux, la relation de Cai et al¹³⁷ est la plus fiable, alors que pour une plaque perforée ce sont les corrélations de Choi et al¹³⁹ ou de Mori et Wen¹⁴⁰ qui s'avèrent être meilleures. Le calcul du diamètre moyen peut se faire en utilisant une des relations proposées dans le Tableau 3.

Tableau 3 : corrélation de calcul de la taille des bulles dans un lit fluidisé

Auteurs	Corrélation	Type de particules	d_p (µm)	ρ_p (g/cm ³)	$U_0 - U_{mf}$ (cm/s)	D (cm)	Type de mesures	Distributeur.
Mori et Wen ¹⁴⁰	$\frac{d_{bm}-d_v}{d_{bm}-d_0} = \exp\left(-\frac{0.3h}{D}\right)$ $d_{bm} = 1.87d_0$	Multiples	60-450		0-48	30-130	Multiples	Poreux - perforé
Darton et al ¹³⁸	$d_v = 0.54 g^{-0.2} (U_0 - U_{mf})^{0.4} (h + 44d_0^{0.5})^{0.8}$	Multiples	60-323	0.9-2.65	0.5-20	30*30 30*20 100 61*61	Sonde à capacitance Images rayon-X	Poreux
Agarwal ¹⁴¹ Sinon	$a = \frac{3.51(h+h_0)^{0.4}}{D^{0.5}-d_0^{0.5}}$ <p>Si $a \leq 3$</p> $d_v = d_0 + 0.74h^{0.4}d_0^{0.5} + 0.188h^{0.8}$	Verre	268		4.1-9.6	30*20	Images rayon-X	Poreux
Choi et al ¹³⁹	$d_v = \left(d_0^{0.5} + 0.37(h + h_0)^{0.4} - 0.036(h + h_0)^{0.4} \left(\frac{1.17(h+h_0)^{0.4}}{D^{0.5}-d_0^{0.5}} - 1 \right) \right)^2$ $(U_0 - U_{mf})(d_v - d_0) + 0.474g^{0.5}(d_v^{1.5} - d_0^{1.5}) = 1.132(U_0 - U_{mf})^h$	Charbon minéral	340-620	2.3	4.7-17.1	30*30	Sonde électro-résistive	Poreux - perforé
Cai et al ¹³⁷	$d_v = 0.138h^{0.8}(U_0 - U_{mf})^{0.42} \exp\left(-2.5 \cdot 10^{-5}(U_0 - U_{mf})^2\right) - 10^{-3}(U_0 - U_{mf})$	Multiples	66-700	0.85-3.19	0-0.6	30*1 30*20 17*12 13*38	différents	Poreux - perforé

IV.1.2.2.3 Vitesse d'ascension des bulles

Le diamètre moyen calculé précédemment permet d'estimer la vitesse des bulles. La publication de Karimipour et Pugsley¹³⁶ compare également les corrélations pour les vitesses de bulles (Tableau 4).

Le premier calcul consiste à estimer la vitesse d'une bulle isolée (U_{br}). Cette vitesse correspond à la vitesse d'une bulle unique dans un lit de sable. La majorité des corrélations proviennent des résultats proposée par Davies and Taylor¹⁴² pour une bulle isolée dans un liquide.

Davidson et al.¹⁴³ ont remarqué que la vitesse de la bulle pouvait être influencée par les parois du lit. Si le diamètre de la bulle est supérieur au quart du diamètre du lit, alors la vitesse de la bulle est modifiée par les effets de parois. Ce paramètre est à prendre en compte pour estimer la vitesse C'est ce qui est fait par Wallis¹⁴⁴ et Allahwala et Potter¹⁴⁵. La corrélation de Wallis¹⁴⁴ est privilégiée pour sa simplicité^{33,136} et donc conseillée pour le calcul de U_{br} .

Tableau 4 : vitesse de montée d'une bulle isolée¹³⁶

Auteurs	Corrélations
Davidson et al ¹¹¹	$U_{br} = 0.71\sqrt{gd_b}$
Wallis ¹⁴⁴	$U_{br} = 0.711\sqrt{gd_b}1.2 \exp\left(-\frac{1.49d_b}{D}\right)$
Allahwala et Potter ¹⁴⁵	$U_{br} = 0.35\sqrt{gD}\tan^{0.555}\left(3.6\left(\frac{d_b}{D}\right)^{0.9}\right)$

La vitesse des bulles peut être calculée à partir de la vitesse d'une bulle isolée, du diamètre de la bulle et de la hauteur dans le lit. Une liste des corrélations permettant de calculer cette vitesse est proposée dans la publication de Karimipour et Pugsley¹³⁶. Le Tableau 5 résume les relations présentées ci-après. La relation de Werther¹⁴⁶ est à utiliser si l'on souhaite obtenir une vitesse moyenne correcte quel que soit le type de particule. Dans le cas de la fluidisation de particules de classe B, la relation la plus simple de Davidson et Harrison¹¹¹ donne les meilleurs résultats.

Tableau 5 : corrélations de vitesses moyenne de montée des bulles¹³⁶

Auteurs	Corrélations
Davidson et Harrison ¹¹¹	$u_b = u_{br} + (U_0 - U_{mf})$
Werther ¹⁴⁶	$u_b = \psi \sqrt{g d_b}$ <p>Pour les particules A de Geldart</p> $\psi = \begin{cases} 1 & D \leq 10 \text{ cm} \\ 0.396 D^{0.4} & 10 < D < 100 \text{ cm} \\ 2.5 & D \geq 100 \text{ cm} \end{cases}$ <p>Pour les particules B de Geldart</p> $\psi = \begin{cases} 0.64 & D \leq 10 \text{ cm} \\ 0.254 D^{0.4} & 10 < D < 100 \text{ cm} \\ 1.6 & D \geq 100 \text{ cm} \end{cases}$

IV.1.2.2.4 Fraction de bulles

D'après la théorie a deux phases¹⁴⁷, le gaz qui n'est pas nécessaire à la fluidisation du lit passe au travers du lit sous forme de bulles, la fraction de bulles dans le lit est alors définie par :

$$\delta = \frac{U - U_{mf}}{U_b - U_{mf}} \quad (25)$$

D'après la littérature, la fraction de bulle estimée par l'équation (25) surestime les observations expérimentales¹²⁴. Pour prendre en compte cette observation, des modifications ont été apportées au calcul de la fraction de bulle.

Kunii et Levenspiel proposent des corrélations différentes en fonction de la vitesse des bulles.

$$si U_b < U_e ; \delta = \frac{U - U_{mf}}{U_b + 2U_{mf}} \quad (26)$$

$$Si U_e \leq U_b < 5U_e ; \delta = \begin{cases} \frac{U - U_{mf}}{U_b + U_{mf}} & \text{pour } U_b \text{ proche de } U_e \\ \frac{U - U_{mf}}{U_b} & \text{pour } U_b \text{ proche de } 5 U_e \end{cases} \quad (27)$$

$$si U_b > 5U_e ; \delta = \frac{U - U_{mf}}{U_b - U_{mf}} \quad (28)$$

Hillgardt et Werther¹²⁴ ont conseillé de rajouter un terme correctif $\Psi < 1$ afin de diminuer l'estimation de la fraction de bulle dans le lit.

En prenant en compte ce facteur correctif la fraction de bulles devient :

$$\delta = \frac{\Psi(U - U_{mf})}{U_b} \quad (29)$$

Pour des particules de type B, Rhodes¹³⁴ précise que le facteur Ψ doit être compris entre 0.6 et 0.8.

Différentes relations sont proposées dans la littérature (Tableau 6) pour estimer cette déviation

Tableau 6 : corrélations de la correction de la théorie à deux phases.

Zijerveld et al ¹⁴⁸	$\Psi = 1.45 Ar^{0.18}$
Johnsson et al ¹⁴⁹	$\Psi = [0.26 + 0.70e^{-3.3d_p}][0.15 + (U - U_{mf})]^{-\frac{1}{3}} \left(z + 4 \sqrt{\frac{\pi d_{or}^2}{4}} \right)^{0.4}$
Fotovat et al ⁷⁵	$\Psi = 0.7$
Wu et Baeyens ⁶⁶	$\Psi = 2.27 Ar^{-0.21}$

La porosité du lit peut ensuite être déterminée à partir des caractéristiques des bulles et de la porosité de l'émulsion.

$$\epsilon = \delta + (1 - \delta)\epsilon_e \quad (30)$$

IV.1.2.3 Mélange des solides

Le modèle de Gibilaro et Rowe¹⁵⁰ modifié par Fotovat et al⁷⁵ permet de modéliser la répartition des particules de biomasse dans le réacteur. Ce modèle est composé de deux phases, une phase bulle et une phase émulsion. La phase bulle contient un flux ascendant d'inerte, alors que la phase émulsion contient un flux ascendant ainsi qu'un flux descendant de solide.

Le lit est composé de deux phases, une phase bulle contenant principalement du gaz et une phase émulsion contenant l'ensemble de la biomasse et la majorité du matériau inerte. Les particules de biomasse subissent un mouvement ascensionnel dû aux passages répétés des bulles, et un mouvement descendant dans la phase émulsion, ce qui implique un mouvement global de circulation au sein du réacteur.

Le matériau inerte du lit ne subit pas de ségrégation interne, c'est-à-dire qu'il est considéré comme parfaitement homogène dans l'ensemble du réacteur. Cette hypothèse provient du fait que la ségrégation des particules inertes n'a pas d'impact sur la répartition de la biomasse^{86,151,152}; il n'est donc pas nécessaire de détailler ce processus. Les détails de la modélisation sont présentés dans le Chapitre III .:

IV.2 Réactions chimiques

Les réactions chimiques qui se déroulent dans le réacteur sont nombreuses et complexes, ce chapitre ne présentera pas l'ensemble des modèles existants. Il présentera uniquement le modèle de Ranzi⁷, utilisé pour la modélisation globale du réacteur.

IV.2.1 Pyrolyse de la biomasse

La pyrolyse de la biomasse est un phénomène beaucoup étudié dans la littérature, la modélisation de ce phénomène peut se faire de différentes manières. La thèse de Christodoulou¹⁵³ traite de la pyrolyse de biomasse en lit fluidisé avec la mise en place d'un modèle de grain. L'approche présentée ici correspond uniquement à la modélisation de la cinétique de la pyrolyse.

Le modèle de Ranzi⁷ est un des modèles les plus détaillés¹⁵⁴ de la cinétique de pyrolyse et de la composition des trois produits formés (charbon, goudrons, gaz).

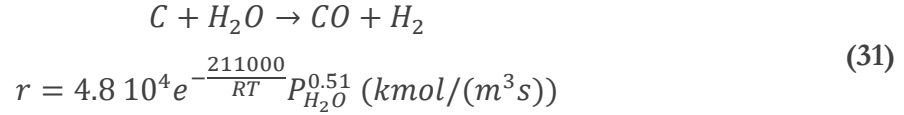
Pour ce modèle, la biomasse est caractérisée comme étant un mélange de cellulose, hémicellulose et lignine. Les extractibles et les cendres ne sont pas pris en compte dans les réactions chimiques (ni en tant que réactifs, ni en tant que catalyseurs). Ce modèle propose des lois cinétiques caractérisant la décomposition des trois types de polymères constituant la biomasse. Selon Authier et al¹⁵⁴, le modèle de Ranzi 2014¹⁵⁵ peut être amélioré en prenant en compte le transfert de chaleur intraparticulaire. Ce phénomène est modélisé en prenant en compte l'évolution de la conductivité et de la capacité thermique du matériau. Ils proposent d'utiliser le modèle de Merrick¹⁵⁶ pour déterminer la capacité thermique locale et le modèle de Thunmann et Leckner¹⁵⁷ pour la conductivité thermique locale.

Le schéma cinétique de Ranzi 2014¹⁵⁸, le modèle de Merrick¹⁵⁶ et le modèle de Thunmann et Leckner¹⁵⁷ sont disponibles en annexe.

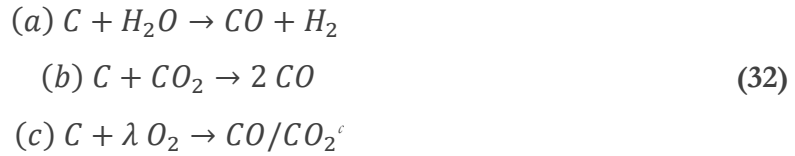
Le modèle de Ranzi ainsi modifié permet de prédire le temps de dévolatilisation de la biomasse, le rendement en charbon produit et la composition des gaz de pyrolyse. Dans les conditions de température considérées lors de la gazéification en lit fluidisé ($T_{lit} > 750^{\circ}\text{C}$), le charbon produit par la pyrolyse est considéré comme étant composé de carbone pur. Le gaz de pyrolyse est un mélange de quinze gaz condensables et non condensables.

IV.2.2 Gazéification du charbon

Le charbon issu de la pyrolyse subit les réactions de gazéification. Les réactions sont des réactions en phases hétérogènes, le charbon est consommé par l'eau, le CO₂ et l'oxygène présents dans le réacteur. Abdelouahed et al¹⁵⁹ proposent d'utiliser la cinétique suivante (Eq. (31)) pour la consommation du charbon par l'eau :



Van de steene¹⁶⁰ propose les réactions suivantes pour la gazéification du charbon dans une atmosphère riche en azote contenant du CO₂, de l'O₂ et de l'H₂O avec une réaction de gazéification à l'eau (a), une réaction de gazéification sous CO₂ (b) et une réaction de combustion (c) :



La proportion CO/CO₂ dépend de la température de la réaction suivant la loi proposé par Biggs et Agarwal¹⁶¹ :

$$\frac{CO}{CO_2} = 70 e^{-3070/T} \quad (33)$$

Quelle que soit la réaction, la réactivité du charbon dépend de la pression partielle du gaz, de la température et de la concentration en site actif représenté par la fonction de surface (F(X))^d selon l'équation suivante (Eq. (34)) :

$$R_i = k_i^{int} P_i^{n_i} F_i(X) \quad (34)$$

avec le k_i^{int} qui dépend de la température selon une loi d'Arrhenius (Eq. (35))

$$k_i^{int} = A e^{-\frac{Ea_i}{RT}} \quad (35)$$

L'ensemble des paramètres permettant de résoudre l'équation (35) sont dans les tableaux suivants :

^c λ varie entre 0,5 et 1

^d F(X) est une fonction de surface qui dépend du taux de conversion du charbon (X)

Tableau 7 : coefficients cinétiques des réactions¹⁶⁰

Réaction	A	Ea	n
(a)	$3.55 \cdot 10^5$	$170 \cdot 10^3$	0.8
(b)	$1.2 \cdot 10^8$	$3\,245 \cdot 10^3$	0.7
(c)	$1.1 \cdot 10^9$	$17.94 \cdot 10^3$	0.6

Tableau 8 : fonctions de surface à 900°C¹⁶⁰

Réaction	F(X) (à 900°C)
(a)	$64.16X^5 - 129.72X^4 + 94.35X^3 - 29.39X^2 + 4.51X + 0.22$
(b)	$90.90X^5 - 187.23X^4 + 135.12X^3 - 40.59X^2 + 5.55X + 0.65$
(c)	$94.95X^5 - 190.37X^4 + 143.28X^3 - 47.08X^2 + 6.14X + 0.29$

IV.2.3 Réactions homogènes en phase gaz

Les produits gazeux de pyrolyse peuvent réagir en phase homogène et en phase hétérogène.

Abdelouahed et al^{159, 162} ont retenu le schéma cinétique suivant pour les réactions en phase homogène :

Tableau 9 : schéma cinétique des réactions homogènes hors oxydation directe

$C_{10}H_8 \rightarrow 9C + 1/6C_6H_6 + 7/2H_2$	$r_{36} = 3.4 \times 10^{14} \exp\left(-\frac{350000}{RT}\right) C_{C_{10}H_8}^{1.6} C_{H_2}^{-0.5}$	(36)
$C_6H_6 + H_2O \rightarrow 3C + 2CH_4 + CO$ ¹⁶²	$r_{37} = 4 \times 10^{16} \exp\left(-\frac{443000}{RT}\right) C_{C_6H_6}^{1.3} C_{H_2}^{-0.4} C_{H_2O}^{0.2}$	(37)
$C_7H_8 + H_2 \rightarrow C_6H_6 + CH_4$ ¹⁶²	$r_{38} = 1.04 \times 10^{12} \exp\left(-\frac{247000}{RT}\right) C_{C_7H_8} C_{H_2}^{0.5}$	(38)
$C_6H_6O \rightarrow CO + 0.4C_{10}H_8 + 0.15C_6H_6 + 0.1CH_4 + 0.75H_2$ ¹⁶³	$r_{39} = 10^7 \exp\left(-\frac{10^5}{RT}\right) C_{C_6H_6O}$	(39)
$CO_2 + H_2 \rightarrow CO + H_2O$ ¹⁶⁴	$r_{40} = 1.2 \times 10^{10} \exp\left(-\frac{318000}{RT}\right) C_{H_2}^{0.5} C_{CO_2}$	(40)
$CO + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2$ ^{159,165}	$r_{41} = 5.2 \times 10^5 \exp\left(-\frac{102400}{RT}\right) C_{H_2O} C_{CO}$	(41)

A cela s'ajoute les réactions mettant en jeu l'oxygène.

Tableau 10 : réactions d'oxydation des gaz légers

$CO_2 \rightarrow CO + 0.5 O_2$ ¹⁶⁶	$r_{(42)} = 1.1 \cdot 10^{13} T^{-0.97} e^{-\frac{328000}{RT}} C_{CO_2} C_{H_2O}^{0.5} C_{O_2}^{-0.25}$	(42)
$CO + 0.5 O_2 \rightarrow CO_2$ ¹⁶⁶	$r_{(43)} = 2.24 \cdot 10^6 e^{-\frac{42000}{RT}} C_{O_2}^{0.25} C_{CO} C_{H_2O}^{0.5}$	(43)
$H_2O \rightarrow 0.5O_2 + H_2$ ¹⁶⁷	$r_{(44)} = 2.51 \cdot 10^{14} e^{-\frac{398000}{RT}} C_{H_2O}$	(44)
$H_2 + 0.5O_2 \rightarrow H_2O$ ¹⁶⁸	$r_{(45)} = 5.69 \cdot 10^{11} e^{-\frac{146000}{RT}} C_{O_2}^{0.5} C_{H_2}$	(45)
$CH_4 + 1.5O_2 \rightarrow CO + 2H_2O$ ¹⁶⁹	$r_{(46)} = 5.03 \cdot 10^{11} e^{-\frac{200000}{RT}} C_{CH_4}^{0.7} C_{O_2}^{0.8}$	(46)

L'ensemble des données nécessaires à la modélisation d'un lit fluidisé de biomasse a été présenté dans ce chapitre. L'ensemble des données bibliographiques présentées ci-dessus permettent de mettre en évidence qu'il est intéressant d'étudier la ségrégation des particules de biomasse au sein d'un lit fluidisé et notamment d'étudier l'impact de cette répartition sur la qualité du gaz produit et la productivité du procédé complet. Le chapitre suivant permet de présenter les manipulations et les méthodes utilisées pour ce faire.

Chapitre II : Matériels et méthodes

Le chapitre "Matériels et Méthodes" décrit la maquette froide (fluidisation avec de l'air à température quasi-ambiante) qui a été utilisée pour évaluer la fluidisation des divers solides engagés dans la gazéification et les qualités des mélanges de biomasse et d'olivine, ainsi que les diverses méthodes de caractérisation des solides testés.

I. Maquette froide

Un pilote froid permettant d'effectuer des essais sur la ségrégation en lit fluidisé a été conçu et réalisé grâce à la collaboration des différents laboratoires engagés dans le projet : l'objectif de cette partie est de présenter l'ensemble de la maquette froide, de sa conception initiale à sa réalisation finale.

I.1 Conception

Le rôle de cette maquette froide est de fluidiser des mélanges de particules de biomasse au sein d'un lit d'olivine et d'évaluer la qualité de leur mélange ou de la ségrégation. Un cahier des charges initial a été constitué pour prendre en compte l'ensemble des hypothèses retenues dans le projet GAMECO : la maquette froide doit (1) utiliser l'air comme agent de fluidisation, (2) fonctionner avec le même système d'alimentation en air que le pilote chaud prévu dans le cadre du projet ANR GAMECO afin de limiter les coûts, (3) être transparente pour observer la fluidisation et la ségrégation, (4) pouvoir être facilement percée pour permettre l'implantation de capteurs pariétaux de pression, (5) pouvoir supporter le poids du lit et (6) être résistante à l'abrasion du lit fluidisé. Les travaux sur la maquette froide ont pris un certain retard du fait du choix initial d'utiliser le système d'alimentation en air du pilote chaud qui a induit un retard avant qu'une alternative ne soit préférée.

La maquette froide peut être subdivisée en plusieurs sous-parties (Figure 29) : (1) le système d'alimentation en air, (2) le distributeur d'air, (3) le corps du réacteur, (4) le système d'injection des solides, (5) le système d'évacuation des poussières et (6) le système d'acquisition des données.

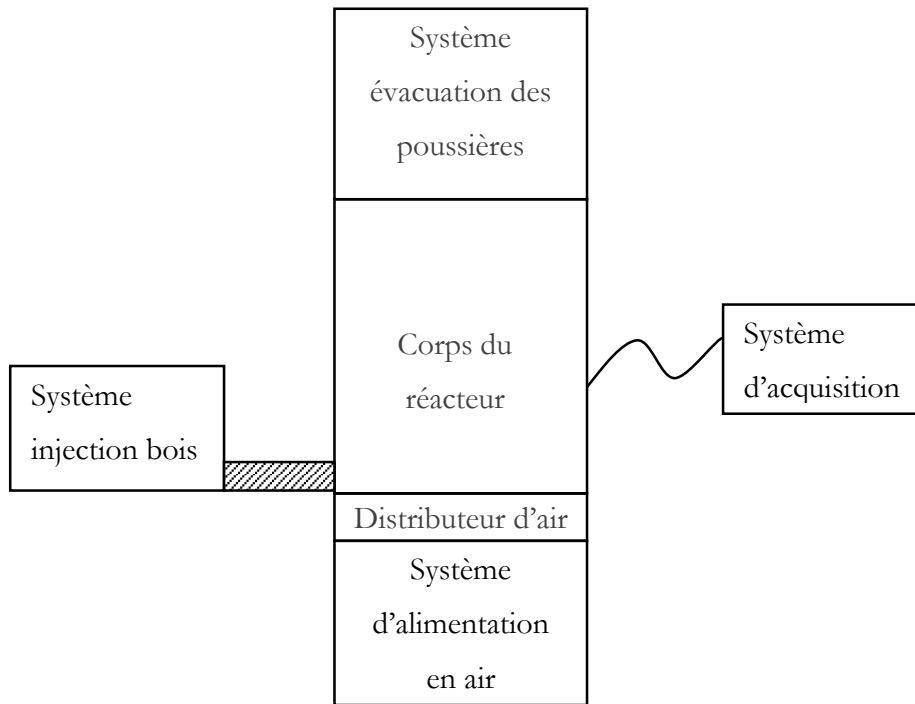


Figure 29 : schéma de présentation de la maquette froide

Dans ce projet, il était nécessaire d'effectuer une observation directe de la fluidisation. Ce paramètre limitait les choix possibles de matériau de construction du réacteur puisqu'il fallait que celui-ci soit transparent. Le choix a été fait d'utiliser du PMMA (Polyméthacrylate de méthyle), d'appellation commerciale prépondérante Plexiglas® ou Altuglas®. Le PMMA a l'avantage d'être transparent, relativement facile à usiner (plus facile que des verres ou des pyrex) et résiste suffisamment à l'abrasion causée par la fluidisation des solides. A la fin des campagnes d'essais, le réacteur était d'ailleurs toujours transparent malgré quelques petites rayures superficielles.

I.2 Système d'alimentation en air

L'élément principal de ce système est le générateur du flux d'air : dans cette étude c'est un ventilateur qui effectue ce travail. Dans le cadre du projet GAMECO, il a été décidé d'utiliser le même ventilateur pour les deux installations (pilote chaud et maquette froide) pour limiter les dépenses du projet. De plus, comme les campagnes d'essais à froid et campagnes d'essais à chaud devaient avoir lieu en deux temps distincts, l'utilisation du même ventilateur pour les deux campagnes était théoriquement possible. Dans le contexte de l'étude il n'a finalement pas été possible d'utiliser la machine Roots prévue pour le pilote chaud ; le choix s'est finalement porté sur un ventilateur disponible au LERMAB de marque MPR, d'une puissance de 2.2 kW, d'une vitesse de rotation maximum de 2900 tours par minute, alimenté en 380 V. Il est contrôlé par un variateur de fréquence de marque Leroy-Somer de type FMV2304 faisant fonctionner le ventilateur dans une plage de 0 à 60 Hz avec un pas de 0.1 Hz. Le temps de mise en régime du ventilateur n'a pas été contrôlé pour les essais. Pour la plupart de nos essais nous avons fonctionné à une fréquence de rotation fixée avant le début des mesures. Lorsque nous avons besoin d'une vitesse de fluidisation variable, notamment pour mesurer la vitesse minimale de fluidisation, nous avons fait varier manuellement la fréquence. Ce ventilateur est raccordé au lit fluidisé par un tuyau souple^e de diamètre 50 mm et de longueur 4.40 m. Cette partie du dispositif permet un déplacement du ventilateur afin de limiter l'emprise de la manipulation. Ce tuyau est raccordé à un tube de mesure en PVC rigide de 1.16 m de longueur et de 42.6 mm de diamètre intérieur. Ce tuyau permet d'accueillir le dispositif de mesure de la vitesse de l'air injecté dans le réacteur (Annexe 1 C).

En sortie du tube de mesure, l'agent de fluidisation (dans notre cas l'air) passe dans un système appelé « boîte à vent » (Figure 30) de même diamètre intérieur que la colonne du lit fluidisé. Cette boîte à vent permet d'uniformiser la vitesse de l'air. Pour cela, l'agent de fluidisation traverse successivement une plaque à trous et un lit de billes d'acier inoxydable de 15 mm de diamètre. La plaque est percée de trous de 6 mm espacés de 20 mm. L'objectif de ces accessoires est d'augmenter la perte de charge dans la boîte à vent pour uniformiser le flux d'air lors de son introduction vers le distributeur et le lit fluidisé. Un piquage est présent sur le haut de cette boîte à vent juste en dessous du distributeur pour mesurer la pression et par la suite pour l'analyse des données comme la perte de charge du distributeur d'air. Le distributeur d'air est détaillé dans le paragraphe suivant (I.3).

^e Tuyau souple de pvc avec fil d'acier de renforcement

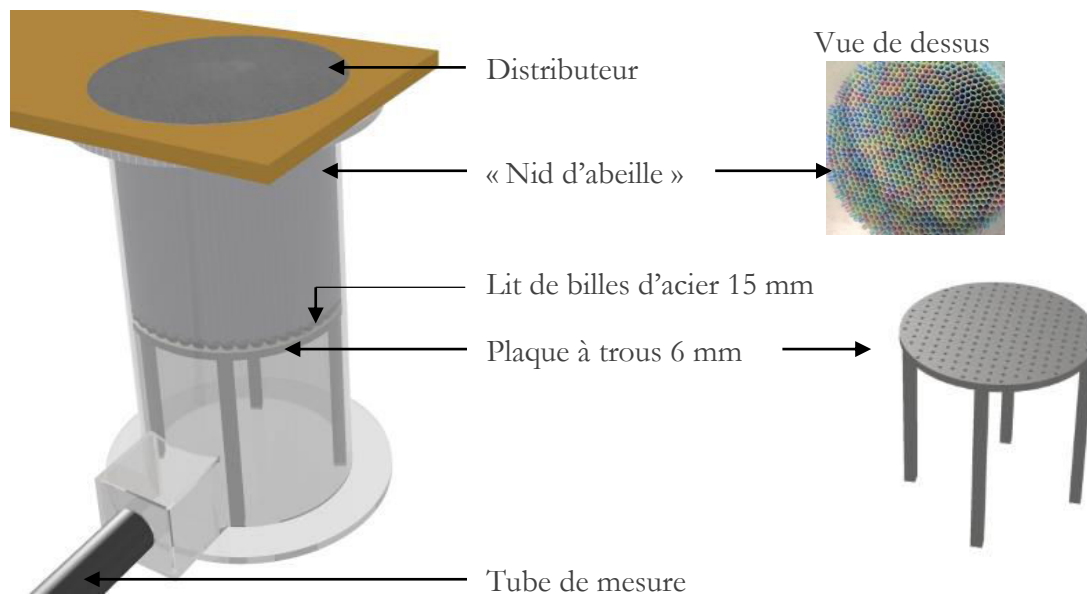


Figure 30 : boîte à vent

Au-dessus du distributeur se trouve le corps du réacteur.

I.3 Distributeur d'air

Le distributeur d'air est un organe important pour un réacteur de fluidisation car il sert non seulement à maintenir le lit de sable dans la partie supérieure de l'installation, mais également à répartir l'air uniformément pour obtenir une fluidisation homogène. Le distributeur peut être de différentes formes. Sauf cas particuliers, le distributeur utilisé pour notre étude est une plaque percée de 230 trous de 2.5 mm de diamètre répartis uniformément selon un pas carré de 10 mm sur toute la surface (Figure 31). Afin d'empêcher les particules de tomber dans la boîte à vent, cette plaque est doublée sur sa partie inférieure d'un textile. Ce textile en non tissé est collé au distributeur par du scotch double face.

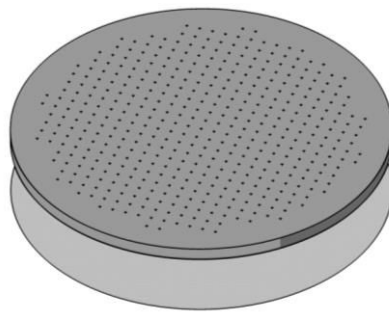


Figure 31 : distributeur de type grille perforée

Nous avons également effectué quelques essais avec une plaque à tuyères du même type que celle utilisée dans le réacteur de gazéification proposé par EQTEC (Figure 32).

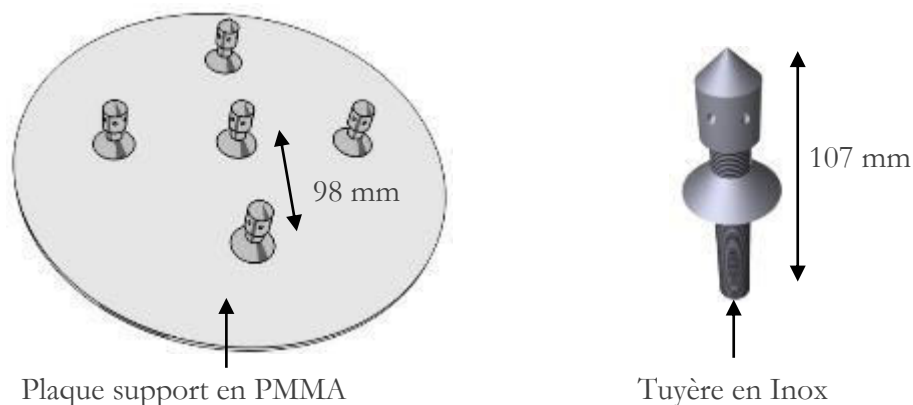


Figure 32 : distributeur d'air à tuyères de type EQTEC

Comme vu dans le chapitre précédent, la qualité de la fluidisation est dépendante de la qualité de la distribution de l'air. Ce paramètre est lié à la perte de charge générée par le distributeur. La perte de charge du distributeur est dépendante du type de distributeur, mais également de la vitesse de

fluidisation. Le graphique ci-dessous représente l'évolution de la perte de charge générée par les deux distributeurs dans la gamme de vitesse utilisée dans l'étude (Figure 33). Cela permet de mettre en évidence que la perte de charge générée par le distributeur est suffisante pour garantir une fluidisation homogène, selon les critères Antonini⁶².

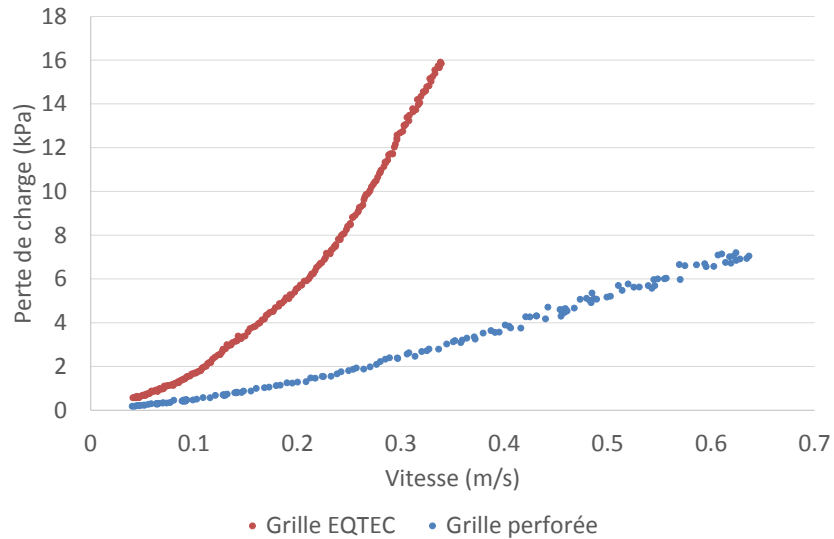


Figure 33 : évolution de la perte de charge des grilles de fluidisation en fonction du débit d'alimentation exprimé en vitesse superficielle dans le réacteur

I.4 Corps du réacteur

Le corps de réacteur est la partie basse de la maquette froide (Figure 34), juste au-dessus du distributeur. Dans notre étude, cet organe se compose d'un tube cylindrique de diamètre intérieur fixe sur toute la hauteur du réacteur (d_{lit}) de 242 mm. Deux types de corps de réacteur ont été utilisés pendant cette thèse. Ils sont présentés sur la figure ci-dessous.

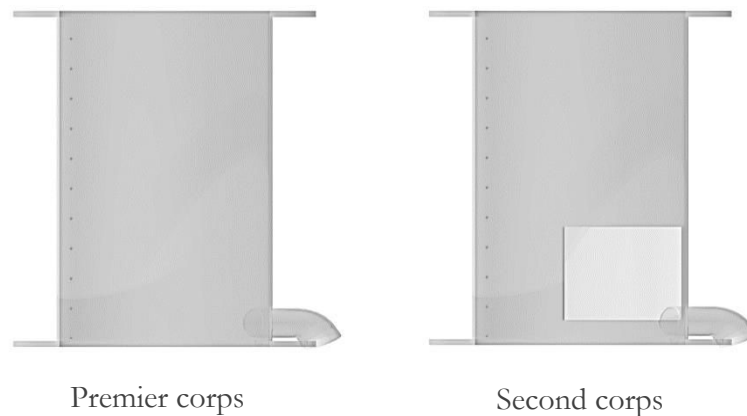


Figure 34 : les deux corps de réacteur utilisés dans cette étude

La seule différence entre ces deux corps concerne le système d'injection de biomasse. Dans le premier corps, la biomasse est injectée par le dessus. Dans le second, la biomasse peut également être injectée à travers un trou rectangulaire percé dans le bas du réacteur. Ce système particulier d'injection de biomasse est présenté en Annexe 1 (paragraphe A).

Les corps de réacteur sont constitués de deux épaulements de 50 mm à chacune de leurs extrémités. L'épaulement du bas permet la fixation avec la boîte à vent et celui du haut permet de rallonger le corps du réacteur par un tube de même diamètre.

Une série de 11 perçages de 8 mm est effectuée sur la hauteur du réacteur le long d'un axe vertical. Le premier perçage est à une distance h_0 de 13 mm du bas du corps de lit (soit à 13 mm du distributeur) et les suivants sont chacun espacés d'une distance (h_l) de 50 mm. Chacun de ces trous est doté d'un tube en inox de diamètre interne 2 mm pour un diamètre externe de 8 mm. Ces tubes permettent de faire la jonction entre le réacteur et les capteurs de pression. La position sur l'axe de chacun de ces tubes permet de délimiter les tranches de lit.

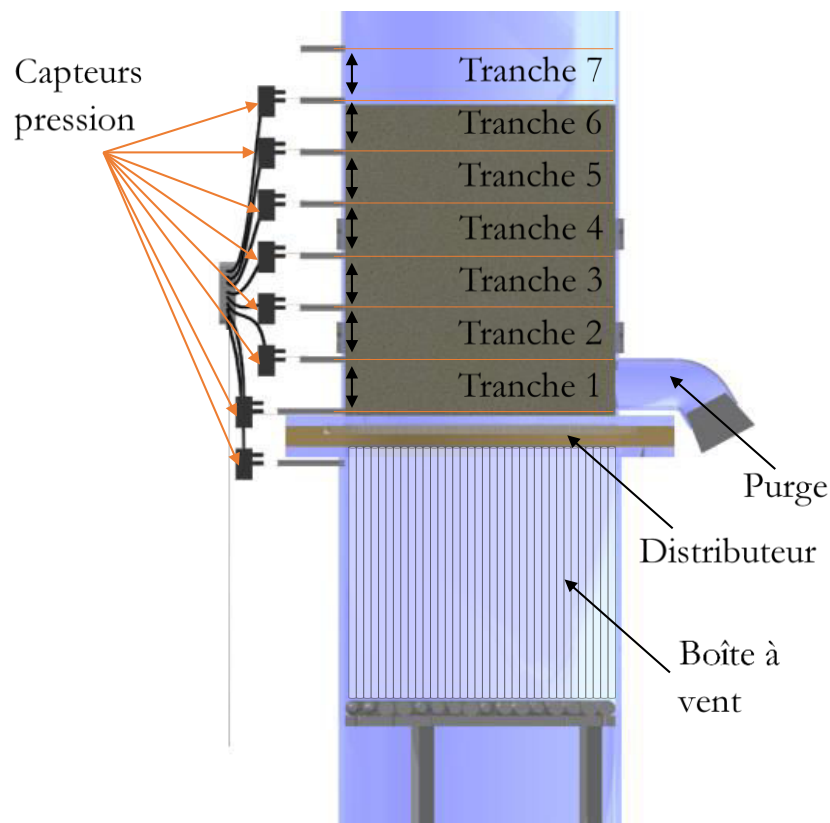


Figure 35 : vue en coupe du système boîte à vent / réacteur

Afin de faciliter la vidange du lit, une purge a été conçue dans le bas du lit. Elle est constituée d'un tube en PMMA de 50 mm de diamètre coudé à 50 mm du bord du réacteur. Lors des essais ce tube est bouché par un bouchon en silicone. Ce dispositif est situé au plus bas du réacteur afin de vider la quasi-totalité du solide présent en fin d'essai (Figure 35).

Au-dessus du corps de réacteur, un troisième tronçon (rallonge) de même diamètre que le corps est fixé à l'aide d'épaulement supérieur. Afin de garantir l'étanchéité entre les différents tronçons, des joints de mousse sont installés au niveau des épaulements.

L'ensemble du réacteur (boîte à vent, corps de réacteur et rallonge) est en PMMA. L'inconvénient principal de ce matériau plastique est qu'il est à l'origine d'électricité statique. Sous l'action du frottement des particules de sable en mouvement, des électrons sont arrachés du plastique ce qui entraîne une accumulation de charges sur les parois. Pour évacuer cette charge électrique, un réseau conducteur relié à la terre a été mis en place. Cette matrice conductrice (Figure 36) a été réalisée en Scotch aluminium et reliée à la terre à l'aide d'un câble en cuivre.



Figure 36 : matrice d'aluminium de collecte de l'électricité statique

La Figure 37 présente l'ensemble de l'installation avec le système d'injection (Annexe 1 paragraphe A), les différents composants du réacteur présentés précédemment ainsi que le système d'aspiration (Annexe 1, paragraphe B).

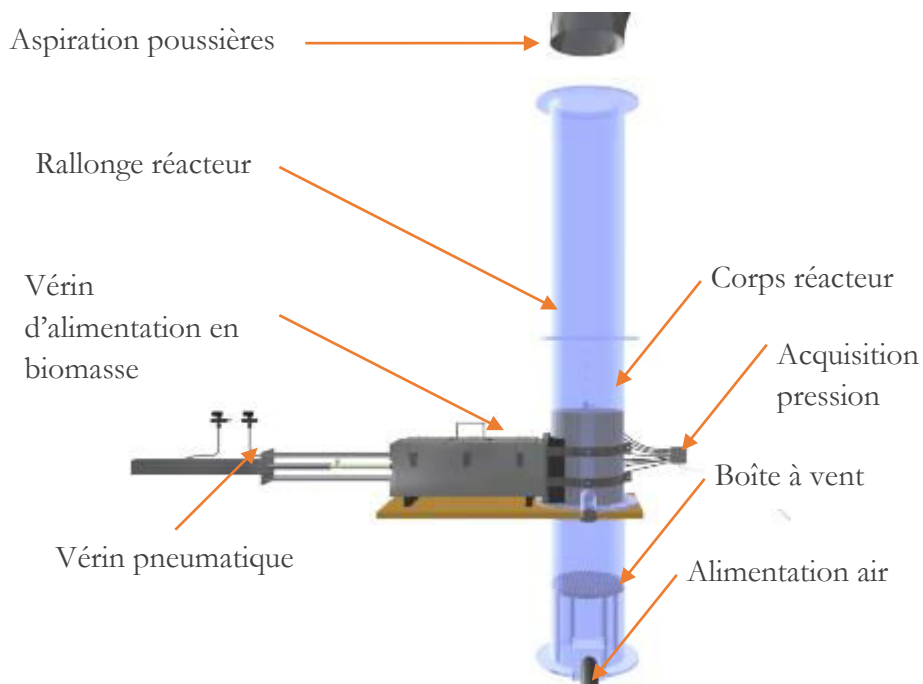


Figure 37 : montage complet de la maquette froide

I.5 Instrumentation

Le système d'instrumentation se décompose en deux sous-systèmes couplés grâce à un logiciel codé en LabVIEW réalisé par M. Stéphane Aubert (ENSTIB). Ce logiciel permet de gérer les deux systèmes d'acquisition : un module d'acquisition de marque AHLBORN gérant l'anémomètre à fil chaud et le thermocouple, et un module d'acquisition de marque National Instruments (NI) gérant les capteurs de pression.

Pour plus de détails sur le système d'instrumentation voir l'Annexe 1 C.

I.6 Gamme de fonctionnement

L'ensemble de la manipulation a des limites de fonctionnement qui sont liées principalement au système d'alimentation en air ainsi qu'aux instruments de mesure.

Le premier facteur limité est la vitesse du gaz de fluidisation. Cette limite vient du fait que le ventilateur utilisé n'est pas un ventilateur prévu pour cette application. Pour un lit de sable de 268 mm d'épaisseur qui génère une perte de charge d'environ 4250 Pa, le ventilateur peut fournir un débit maximum d'environ $100 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ soit $0.55 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ($\approx 4 U_{mf}$ de l'olivine grossière) dans le réacteur.

Cette vitesse dans le réacteur correspond à une vitesse de $18 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ dans le tube d'alimentation en air où est réalisée la mesure anémométrique. Dans ces conditions, le nombre de Reynolds vaut environ 45000 ce qui signifie que nous sommes bien en régime turbulent. Pour garantir la fiabilité de nos mesures à faible vitesse, nous devons nous assurer que le nombre de Reynolds reste au-dessus de 3000 dans le tube d'alimentation, ce qui correspond à environ $1.2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. La vitesse superficielle dans le lit fluidisé est alors de $0.04 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ($\approx 0.5 U_{mf}$ de l'olivine fine).

Cette plage de vitesse mesurable explique pourquoi, sur l'ensemble des graphiques présentés, les mesures commencent à $0.04 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$.

La maquette froide présentée ci-dessus permet de mettre en fluidisation des solides. Ces solides sont, dans le cadre de nos essais, répartis en deux catégories : le matériau de lit et la biomasse.

II. Matériau de lit

Le matériau de lit représente entre 95 et 100 % de la masse totale du solide présent dans le réacteur du procédé EQTEC dans ses conditions usuelles de marche. Dans cette étude, le matériau de lit utilisé est le matériau de lit utilisé dans le procédé EQTEC (de l'olivine). Ce matériau est sous forme granulaire afin de pouvoir être fluidisé. Comme le matériau de lit est un des éléments essentiels de cette étude, nous étudierons dans un premier temps les méthodes de préparation et de caractérisation de l'olivine, puis dans un second temps l'ensemble des données des matériaux de lits utilisés dans cette étude.

II.1 Préparation

L'olivine utilisée dans le cadre de cette étude est une olivine provenant de la côte ouest de la Norvège. Elle est extraite par la société Sibelco sous le nom commercial de « Green Lightning® ». Cette olivine est un silicate de magnésium dont la composition chimique exprimée sur la base des formes oxydées des minéraux est donnée dans le Tableau 11. Cette composition chimique provient de la fiche technique de l'olivine.

Tableau 11 : composition chimique¹⁷⁰ de l'olivine Sibelco

Espèce	Fraction massique (%)
Oxyde de magnésium (MgO)	45.3
Dioxyde de silicium (SiO ₂)	45.3
Oxyde ferrique (Fe ₂ O ₃)	7.71
Oxyde d'aluminium (Al ₂ O ₃)	0.56
Oxyde de nickel (NiO)	0.41
Oxyde de chrome (Cr ₂ O ₃)	0.39
Oxyde de calcium (CaO)	0.11
Oxyde de Manganèse (MnO)	0.11

D'autres caractéristiques également présentes sur la fiche technique sont données au Tableau 12.

Tableau 12 : caractéristiques physiques de l'olivine

Forme	Sub-angulaire à angulaire
Dureté	6.5-7 (Echelle de Mohs)
Densité réelle	3250 kg.m ⁻³
Couleur	Vert pâle
Granulométrie	GL 50 (0.1mm-0.5mm)

L'olivine fournie par Sibelco est donnée pour avoir une granulométrie comprise entre 0.1 mm et 0.5 mm. Cette dispersion, importante pour les essais à effectuer, risquait d'entraîner une élutriation trop importante des particules très fines hors du lit. Un système de tamisage (Figure 38) a donc été mis en place pour séparer l'olivine neuve en deux lots d'olivine de granulométries différentes, une olivine dite « fine » (passant au travers d'un tamis de 250 μm) et une olivine dite « grossière » (passant au travers d'un tamis de 750 μm). Ce système est composé de deux tamis reliés à un moteur à arbre désaxé. Ce système permet de générer un mouvement périodique permettant la vibration des tamis. L'olivine est injectée par le haut sur le tamis à plus grosse maille. L'ensemble de l'olivine passe au travers de ce tamis excepté les particules de dimensions supérieures à 750 μm . La fraction qui a traversé le premier tamis est retenue pour partie par le second tamis qui ne laisse passer que les petites particules de moins de 250 μm . Ces petites particules tombent dans le réservoir à olivine fine. On n'obtient quasiment aucune particule de plus de 750 μm . Environ 66 % en masse sont retenus par le tamis fin, le reste passant au travers. Ce tamisage dure environ 10 minutes pour les 21 kg nécessaire par essai. L'ensemble des particules se trouvant sur le tamis fin sont sorties de l'installation. Le tamis fin est secoué et nettoyé manuellement pour enlever les particules qui se sont coincées dans les mailles du tamis. L'olivine retenue sur le tamis fin est de nouveau injectée dans l'installation. Le tamisage est terminé lorsqu'il n'y a plus de particules qui traversent le tamis fin.

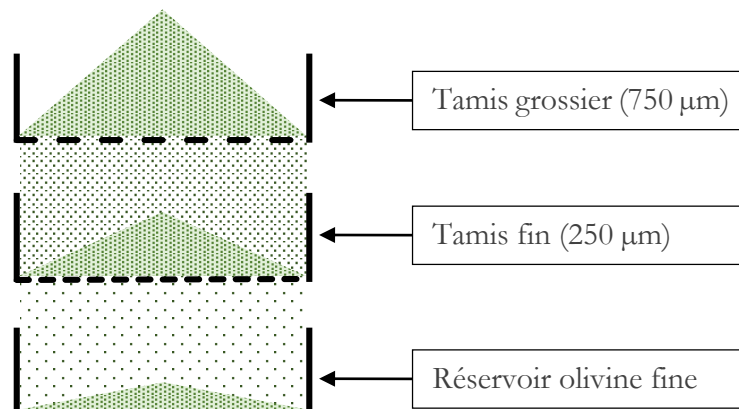


Figure 38 : séparation en deux lots de l'olivine neuve par tamisage

On obtient de cette opération deux batch d'olivine : une olivine grossière et une olivine fine. Les deux batch d'olivine sont caractérisés par la suite.

Les paramètres physiques les plus importants en fluidisation sont la densité des particules, la granulométrie du matériau, la forme des particules ainsi que la porosité du lit.

II.2 Masse volumique et porosité

La définition de la masse volumique d'une poudre peut avoir plusieurs sens. Pour expliquer cela, il est nécessaire de définir quelques termes.

Soit une particule quelconque isolée. Elle est composée en partie de solide et en partie de pores (Figure 39). Les pores se divisent en deux catégories, les pores fermés et les pores ouverts. Il est donc possible de définir une porosité fermée et une porosité ouverte.

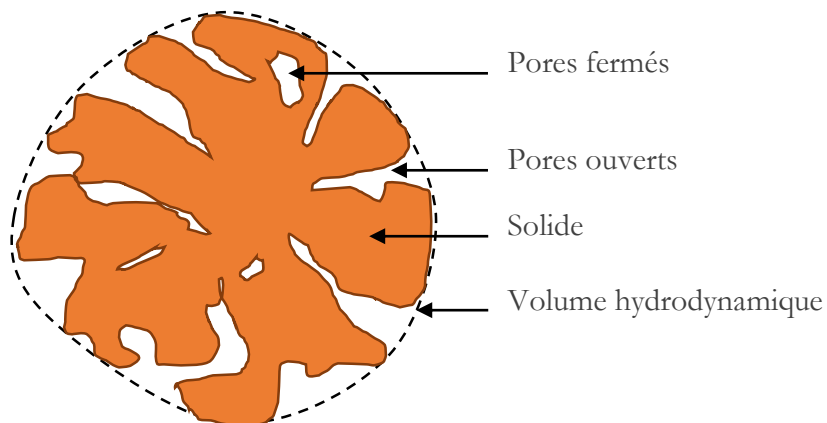


Figure 39 : présentation d'une particule d'une poudre

Dans la suite du travail, lorsqu'il sera question de porosité cela correspondra à la porosité du lit d'olivine, c'est-à-dire à la porosité interparticulaire. En effet les particules d'olivine ne sont pas poreuses (Figure 40).

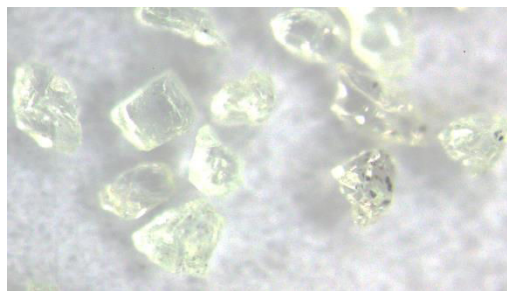


Figure 40 : image d'une particule d'olivine

Dans le cas de la mesure effectuée dans ce travail, la masse volumique (ρ_{ol}) mesurée correspond à la masse de la particule rapportée à son volume hydrodynamique.

Soit un lot de particules non sphériques. Lorsque ces particules sont versées dans un récipient, le volume d'air présent entre ces particules dépendra de la technique utilisée pour remplir le récipient.

Si les particules d'olivine sont versées doucement, sans les vibrer, les particules vont s'arranger de manière peu ordonnée emprisonnant une grande quantité d'air. Au contraire si l'olivine est tassée ou vibrée, les particules seront arrangées de manière plus ordonnée. Le volume d'air entre les particules sera donc plus faible que dans le cas précédent.

L'arrangement des particules est un paramètre important à prendre en compte pour évaluer la masse volumique du lit de particules (ρ_{vrac}). Dans le cadre des mesures effectuées ci-après, il a été choisi de prendre comme référence un lit de sable tassé afin de représenter l'état du lit lors de la défluidisation. Durant cette phase, les particules tombent au contact du distributeur d'air ce qui génère une force qui a tendance à légèrement tasser le lit de particules.

La mesure de la masse volumique en vrac du lit de particules a été effectuée à l'aide d'une éprouvette graduée de 1 litre et d'une balance de précision. Le principe de cette mesure est de combler les pores ouverts de l'olivine et l'espace interparticulaire avec un volume d'eau mesuré.

Un volume de 0.5 litre d'olivine (V_{ol}) est mesuré à l'aide de l'éprouvette graduée et pesé (m_{ol}). Dans une seconde éprouvette graduée de 0.5 litre de masse connue (m_{ep}), l'olivine est versée en pluie dans une masse d'eau (environ 220 g). Cette technique permet de limiter au maximum les poches d'air présentes entre les particules. L'éprouvette est ensuite complétée avec de l'eau jusqu'à atteindre les 500 ml. La masse de l'ensemble est mesurée (m_{tot}). Ces données permettent de déduire plusieurs données caractéristiques de l'olivine. La masse volumique du lit (ρ_{vrac}), qui correspond à la masse volumique d'un lot de particule d'olivine tassé, est donnée par l'équation (47).

$$\rho_{vrac} = m_{ol}/V_{ol} \quad (47)$$

D'après les données mesurées, il est possible de déduire la masse d'eau (m_{eau}) ainsi que le volume d'eau total (V_{eau}).

$$m_{eau} = m_{tot} - m_{ol} - m_{ep} \quad (48)$$

$$V_{eau} = \frac{m_{eau}}{\rho_{eau}} \quad (49)$$

Connaissant le volume d'eau nécessaire à combler les pores, il est possible de déduire la porosité interparticulaire du lit d'olivine au repos (ϵ_0).

$$\epsilon_0 = \frac{V_{eau}}{V_{ol}} \quad (50)$$

La porosité interparticulaire permet de déduire la masse volumique (ρ_{ol}) des particules.

$$\rho_{ol} = \frac{\rho_{vrac} - \rho_{air}\epsilon_0}{1 - \epsilon_0} \quad (51)$$

Les résultats de l'ensemble de ces mesures sont donnés dans le tableau suivant.

Tableau 13 : masse volumique et porosité de l'olivine

	grossière	fine	
Masse volumique en vrac (ρ_{vrac})	1614	1682	kg.m ⁻³
Porosité (ϵ_0)	0.496	0.476	-
Masse volumique des particules (ρ_{ol})	3202	3209	kg.m ⁻³

La masse volumique mesurée est légèrement inférieure à la valeur indiquée par Sibelco. Ceci provient du fait que la masse volumique donnée par Sibelco est la masse volumique du matériau constituant les particules et non celle de la particule.

II.3 Granulométrie

La caractérisation granulométrique consiste à définir la masse, le volume ou le nombre de chaque classe de taille de particules de la poudre. Cette étude est réalisée ici à l'aide d'un granulomètre laser de marque Malvern (Mastersizer 2000). Les résultats obtenus sont ensuite comparés à une analyse d'image. Plus de détails sur la méthode de mesure sont présentés en Annexe 2.

Les résultats seront présentés sous forme de graphique et seront détaillés seulement pour l'olivine grossière.

L'olivine fournie par Sibelco est censée avoir une granulométrie comprise entre 100 μm et 500 μm . La première étape a été d'effectuer une granulométrie Malvern (Figure 41).

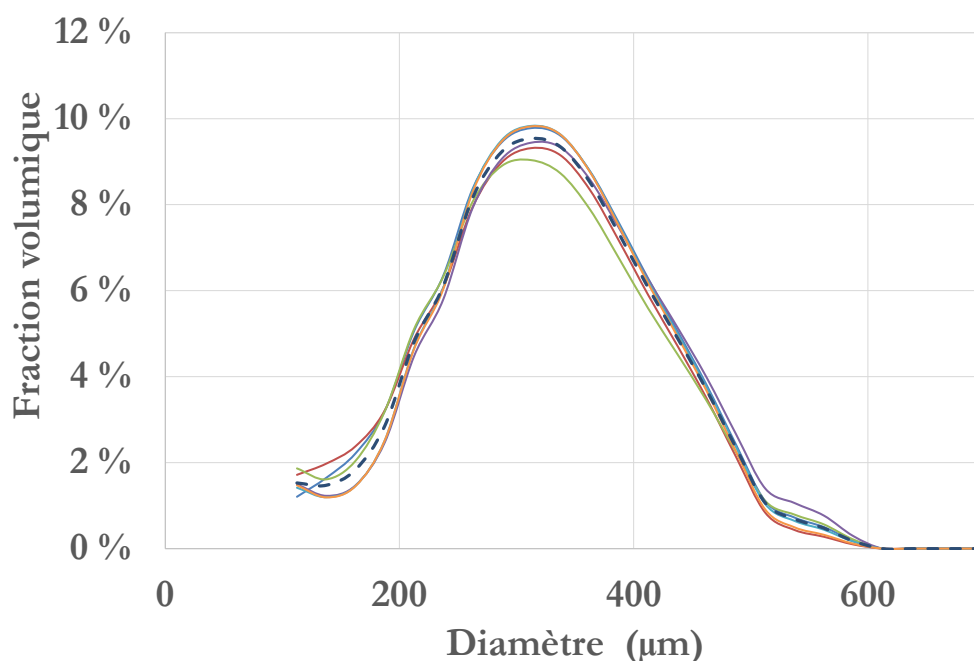


Figure 41 : granulométrie de l'olivine livrée (- - Moyenne des expériences)

D'après la courbe de résultats, il manque une partie des données (les petites tailles). Cela vient du fait que la mesure a été paramétrée pour étudier des particules de taille supérieure à 100 μm car d'après les données de Sibelco la granulométrie de l'olivine était comprise entre 100 μm et 500 μm . Les résultats montrent qu'il reste des particules de taille inférieure à 100 μm . Le diamètre moyen « arithmétique » $\bar{d}(1,3)$ calculé par le Malvern est de 310 μm .

Cette courbe est difficilement exploitable telle quelle. Cependant elle permettra d'avoir un point de comparaison, en particulier pour vérifier l'impact du tamisage sur la granulométrie. Pour la suite des comparaisons seule la courbe moyenne sera utilisée.

La Figure 42 correspond à la granulométrie de l'olivine grossière qui a été obtenue par un tamisage entre 250 μm et 750 μm . La courbe permet de mettre en évidence le fait que le tamisage permet de supprimer les particules de taille inférieure à 200 μm . La taille moyenne arithmétique en volume calculée par le granulomètre est de 366 μm .

Contrairement à la granulométrie de l'olivine neuve, l'ensemble des particules a bien été mesuré par le Malvern, il est donc possible d'analyser les données et de les comparer aux analyses d'images.

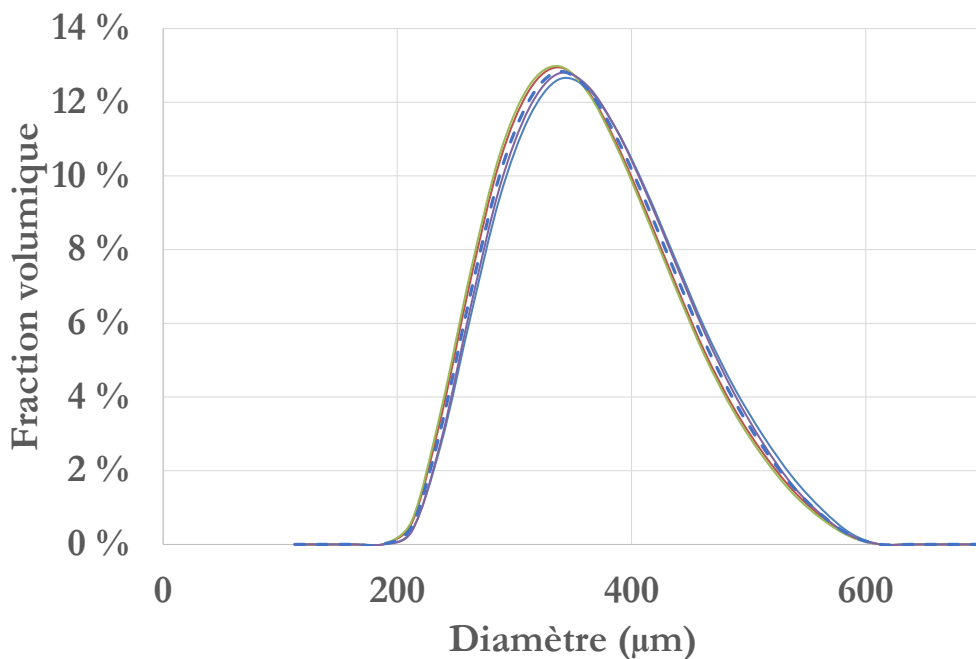


Figure 42 : granulométrie olivine grossière (- - Moyenne des expériences)

L'analyse de 6 images présentée en Figure 43, correspond à 290 particules. Ce nombre de particules n'est pas très élevé, mais cela permet d'estimer le diamètre moyen. L'ensemble des résultats est en annexe 3. Il est possible de calculer deux diamètres moyens de cette distribution :

$$\bar{d}(1,0) = \sum_i f_i \bar{x}_i = 378 \mu\text{m} \quad (52)$$

$$\bar{d}(1,3) = \frac{\sum_i f_i \bar{x}_i^4}{\sum_i f_i \bar{x}_i^3} = 415 \mu\text{m} \quad (53)$$

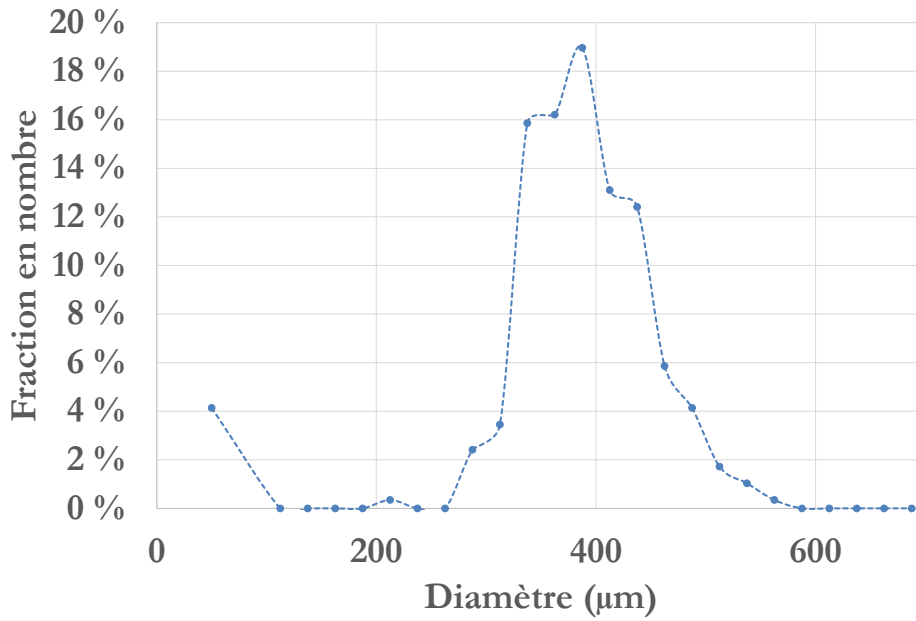


Figure 43 : granulométrie par analyse d'images

Le diamètre moyen $\bar{d}(1,3)$ obtenu par le Malvern (366 µm) est plus faible que celui obtenu par analyse d'images (415 µm) (Figure 44)

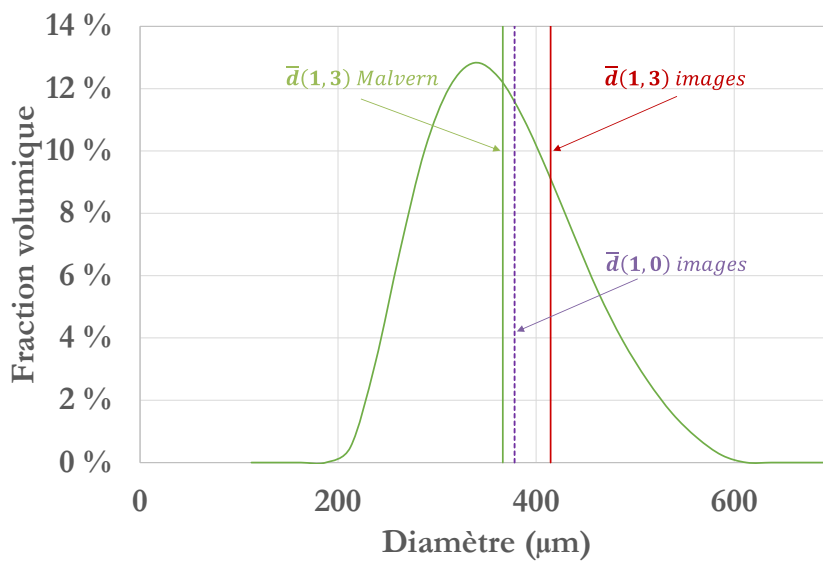


Figure 44 : granulométrie et comparaison des diamètres moyens

Afin de prendre en compte les observations effectuées précédemment, la distribution utilisée dans ce travail est la distribution obtenue avec le Malvern qui est translaturée de $415 - 366 = 49 \mu\text{m}$ (Figure 45).

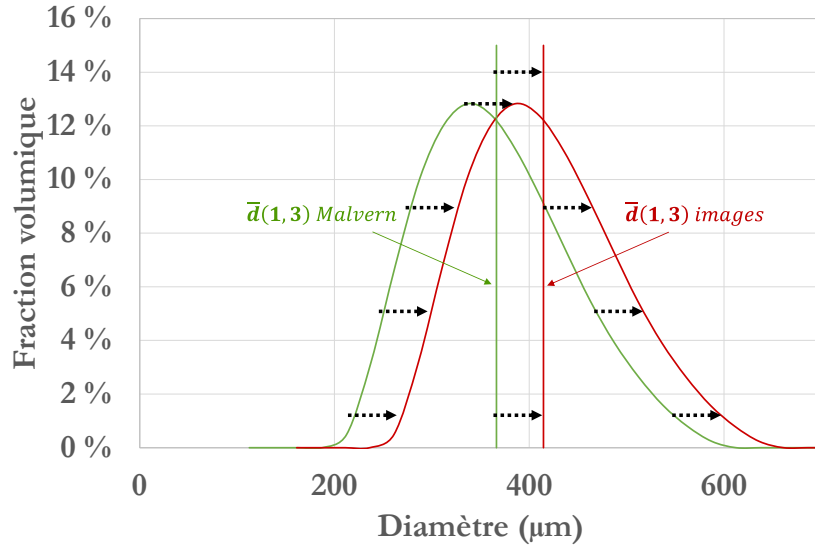


Figure 45 : granulométrie Malvern modifiée

La granulométrie (1,3) modifiée de l'olivine grossière est disponible en Annexe 3.

A partir de la granulométrie modifiée, on peut calculer le diamètre de Sauter $\bar{d}(3,2)$. Le diamètre moyen obtenu est de 366 µm. La Figure 46 suivante permet de représenter l'ensemble des données calculées pour l'olivine grossière. Le même graphique sera présenté pour l'olivine fine.

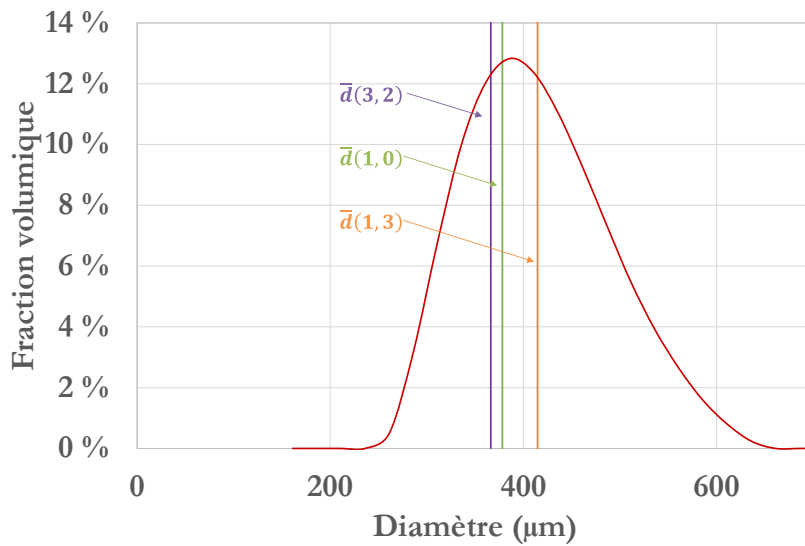


Figure 46 : granulométrie de l'olivine grossière et ses différents diamètres moyens

La même démarche est effectuée pour l'olivine fine (Figure 47). Le diamètre moyen $\bar{d}(1,0)$ provenant de l'analyse d'images est de 237 µm et le $\bar{d}(1,3)$ corrigé est de 289 µm. On obtient un diamètre de Sauter $\bar{d}(3,2)$ calculé de 269 µm.

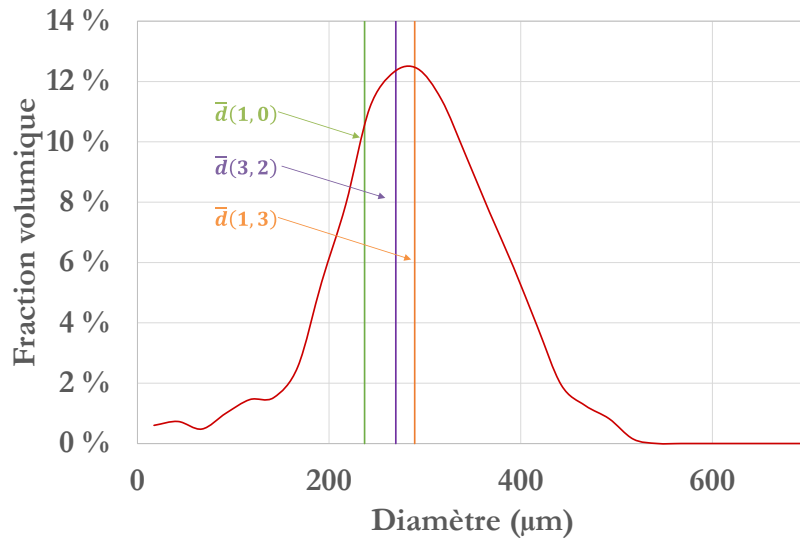


Figure 47 : granulométrie de l'olivine fine et les différents diamètres moyens

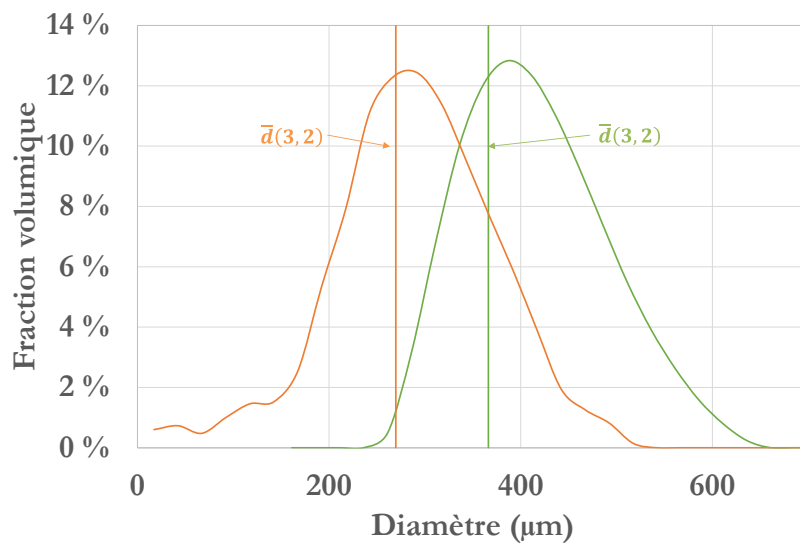


Figure 48 : comparaison de la distribution granulométrique des olivines (*—fine,*
—grossière)

La Figure 48 permet de comparer les granulométries des deux olivines utilisées dans ces travaux.

II.4 Forme

Les particules d'olivine proviennent du broyage de la roche : leur forme n'est donc pas régulière, ni sphérique.

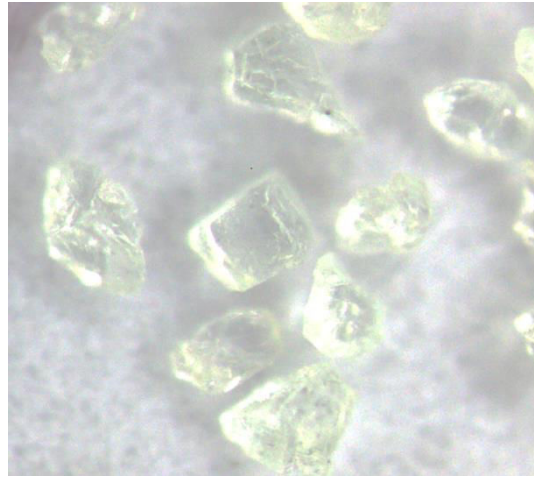


Figure 49 : grains d'olivine

Pour la modélisation, il sera nécessaire de caractériser leur forme. Dans la quasi-totalité des corrélations, le facteur utilisé pour prendre en compte la forme des particules est la sphéricité Φ_s . Cette valeur met en relation la surface de la particule à la surface d'une sphère de même volume que la particule.

$$\Phi_s = \left(\frac{\text{surface de la sphère}}{\text{surface de la particule}} \right)_{\text{de même volume}} \quad (54)$$

Ce paramètre n'est pas évident à déterminer précisément, il est cependant possible d'estimer la sphéricité en utilisant les longueurs caractéristiques des particules. Selon Lees¹⁷¹ qui s'appuie sur Zingg¹⁷², il est possible d'estimer la sphéricité à partir de deux ratios, $\frac{d_{min}}{d_{moy}}$ et $\frac{d_{moy}}{d_{max}}$. La sphéricité de chaque olivine peut donc se calculer à partir des valeurs moyennes de $\frac{d_{min}}{d_{moy}}$ et de $\frac{d_{moy}}{d_{max}}$ pour l'ensemble de leurs particules. Ces informations peuvent être placées sur un graphique, pour le cas de l'olivine grossière (Figure 50), et pour l'olivine fine (Figure 51). Cela permet d'obtenir une sphéricité moyenne de 0.82 pour l'olivine grossière et 0.78 pour l'olivine fine.

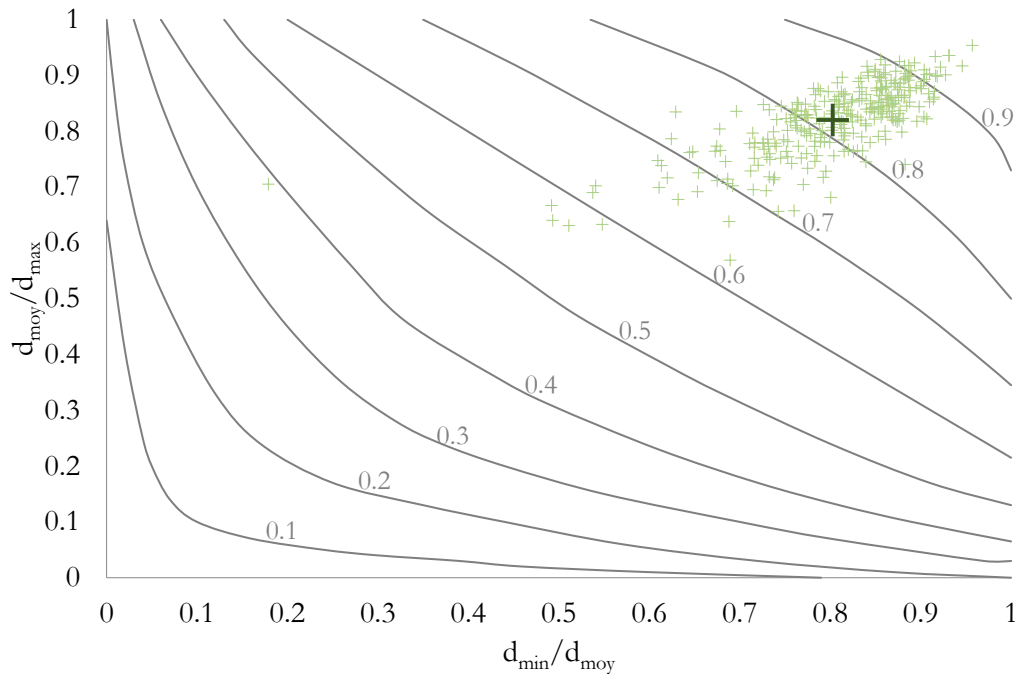


Figure 50 : estimation de la sphéricité de l'olivine grossière

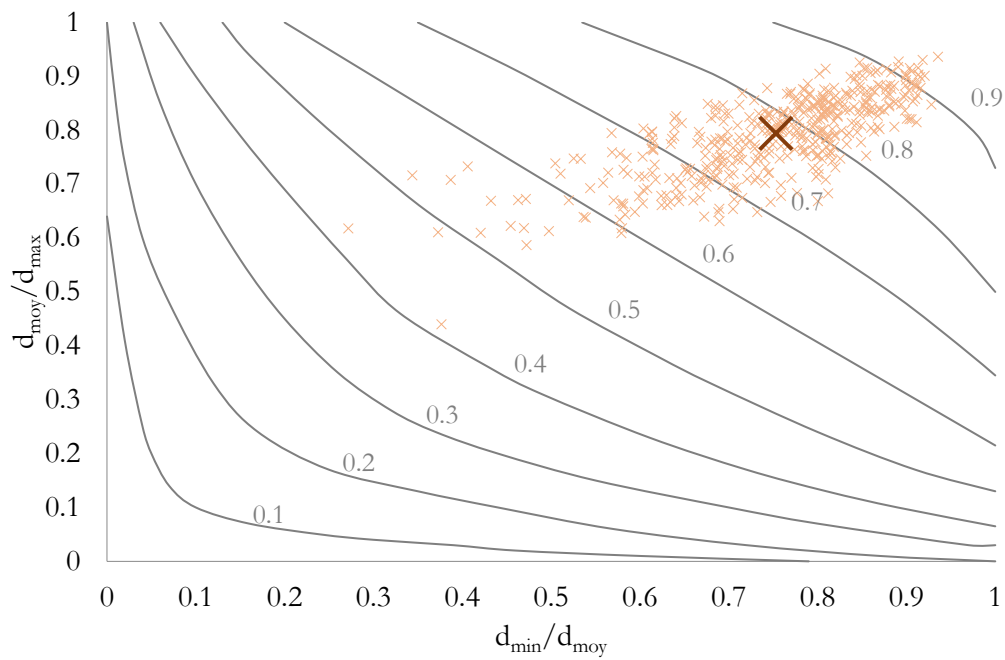


Figure 51 : estimation de la sphéricité de l'olivine fine

Pour des particules non sphériques, un diamètre effectif peut être calculé à partir du facteur de forme Φ_s et du diamètre ($\bar{d}(3,2)$). Le lit de particules réelles a la même surface totale et la même porosité que le lit constitué de particules de diamètre d_{eff} . Les particules d'olivine ont une forme

globalement ovoïdale c'est-à-dire que la plus grande dimension est de l'ordre de deux fois la petite longueur, $L \approx 2 l$. Dans ce cas, le diamètre effectif (d_{eff}) est défini tel que :

$$d_{eff} = \Phi_s \bar{d}(3,2) \quad (55)$$

Le diamètre effectif de l'olivine fine est de 210 μm alors que celui de l'olivine grossière est de 300 μm .

II.5 Vitesse minimum de fluidisation et classification de Geldart

Après avoir réalisé la caractérisation physique des particules, il est maintenant nécessaire de caractériser les particules en termes de « fluidisation ».

La première caractérisation consiste à placer les solides dans la classification de Geldart¹⁷³. Les deux types d'olivine se retrouvent dans la classe B de Geldart (Figure 52).

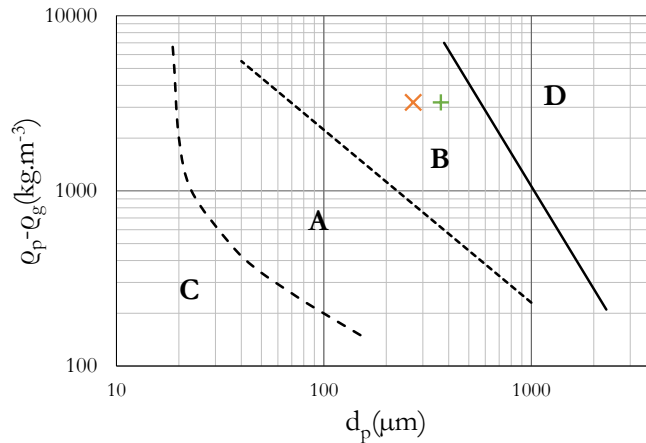


Figure 52 : les olivines dans la classification de Geldart¹⁷³ (x fine, + grossière)

Le deuxième paramètre important est la vitesse minimum de fluidisation (U_{mf}). Cette vitesse est déterminée à partir de la mesure de pression effectuée juste au-dessus du distributeur d'air quand elle varie avec la vitesse croissante ou décroissante de la vitesse superficielle de gaz (Figure 53).

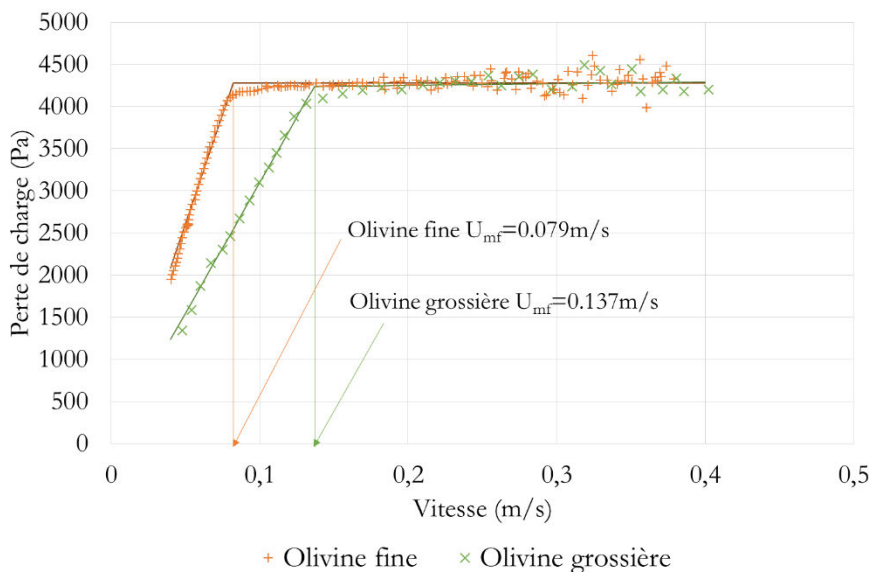


Figure 53 : vitesse minimum de fluidisation des olivines

L' U_{mf} mesurée de l'olivine fine est de 0.079 m.s^{-1} contre 0.137 m.s^{-1} pour l'olivine grossière. Ces vitesses sont obtenues lors de la défluidisation du lit.

La vitesse minimum de fluidisation permet de savoir à partir de quelle vitesse les particules vont entrer en fluidisation. Il est possible de calculer avec le système suivant (Eq (56)) la vitesse à partir de laquelle les particules vont être transportées, individuellement. Cette vitesse, notée U_t , est appelée vitesse terminale de chute libre. Elle est calculée à partir du Reynolds à la vitesse terminale de chute (Re_{pt}), et des caractéristiques du gaz et du solide et de la physique reliant la friction, la gravité et la force d'Archimède d'une particule en déplacement relatif dans un fluide. Le Re_{pt} peut être estimé grâce à la relation proposée par Haider et Levenspiel¹⁷⁴.

$$U_t = \frac{\mu_g Re_{pt}}{\rho_g d_p} \tag{56}$$

$$Re_{pt} = \frac{Ar^{\frac{1}{3}}}{\frac{18}{Ar^{2/3}} + \frac{2.335 - 1.744 \Phi_s}{Ar^{1/6}}}$$

En utilisant les mêmes données que précédemment, on obtient les vitesses de transport de 1.63 m.s^{-1} pour l'olivine fine et 2.59 m.s^{-1} pour l'olivine grossière en se basant sur leur taille moyenne respective.

L'ensemble des données calculées dans ce paragraphe est résumé dans le Tableau 14

Tableau 14 : résumé des caractéristiques des olivines

Caractéristique	Fine	Grossière	
Masse volumique apparente (ρ_{app})	1682	1614	kg.m^{-3}
Porosité (ϵ_0)	0.476	0.496	$\text{m}^3_{\text{air}}.\text{m}^{-3}_{\text{lit}}$
Masse volumique vraie (ρ_{ol})	3209	3202	
Diamètre moyen en nombre $\bar{d}(1,0)$	237	378	μm
Diamètre de sauter $\bar{d}(3,2)$	269	366	μm
Diamètre moyen en volume $\bar{d}(1,3)$	289	415	μm
Sphéricité (Φ_s)	0.78	0.82	
Diamètre effectif (d_{eff})	210	300	μm
Classe de Geldart ¹⁷³	B	B	
U_{mf} mesurée	0.079	0.137	m.s^{-1}
Vitesse terminale de chute calculée (U_t)	1.63	2.59	m.s^{-1}

Les résultats présentés dans ce paragraphe ont été obtenus à partir de l'olivine « neuve », il apparaît aussi qu'après les essais de fluidisation les caractéristiques des olivines ne varient pas. En effet des mesures ont été effectuées entre les deux types d'olivines et il n'apparaît pas de différences notables.

III. Biomasses

Dans le gazéifieur, le sable est mélangé à de la biomasse. Sous l'action de la chaleur, la biomasse va se dégrader (pyrolyse, gazéification), ses caractéristiques physiques - densité, dimensions, forme - évolueront au cours du temps. Dans le cadre de ce travail, il n'était pas possible d'utiliser l'ensemble de ces états de dégradation de la biomasse, c'est pourquoi il a été choisi de porter l'étude sur deux solides modèles, représentatifs de 2 états de la biomasse. Du hêtre a été utilisé (biomasse initiale), ainsi que du balsa qui a permis de représenter le charbon de hêtre (même densité, mais moins friable). Différentes formes de particules ont été utilisées.

III.1 Préparation

L'objectif du travail est de présenter l'influence des caractéristiques (densité et forme) des biomasses sur la ségrégation. Ce paragraphe présente les particules ainsi que les méthodes de fabrication de ces dernières.

Deux types de particules ont été utilisés : des particules cylindriques (tourillons), et des particules parallélépipédiques (plaquettes). Les tourillons sont exclusivement en hêtre (achetés dans le commerce), tandis que deux types de plaquettes ont été fabriquées pour les essais : des grandes (5.5 mm*4 mm*57 mm) et des petites (4 mm*2 mm* 29.5 mm). Les grandes plaquettes ont été fabriquées en hêtre et en balsa alors que les petites n'ont été faites qu'en balsa (Figure 54).

L'usinage des grandes plaquettes a été fait au LERMAB. Ces usinages ont nécessité la mise en place de montage d'usinage pour produire ces « petites » pièces vis-à-vis de la taille « industrielle » des machines.

L'usinage des petites plaquettes n'a pas pu être réalisé au LERMAB. Un prestataire extérieur a produit ces plaquettes à l'aide d'une découpeuse laser. Les petites particules de balsa sont légèrement brûlées sur les bords. Ce changement de propriétés n'a pas été pris en compte dans la description physique des particules.

Ces particules ont été utilisées en quantité variant de 0.1 kg pour les particules de balsa à 2 kg pour les tourillons de hêtre.

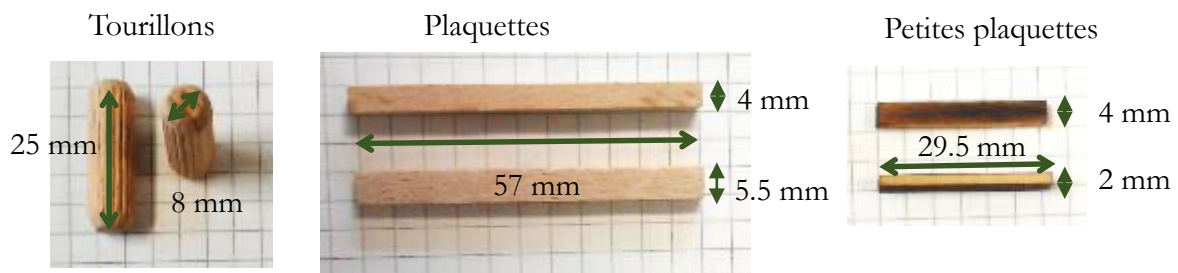


Figure 54 : particules de bois

Il est important de noter que la taille des particules de bois utilisées, notamment les grandes plaquettes, sont de taille importante vis-à-vis du réacteur utilisé ; en effet le ratio diamètre du réacteur divisé par la grande longueur des particules est compris entre environ 10 pour les tourillons et 4 pour les grandes plaquettes. Ce choix de diamètre de particule a été réalisé pour des raisons de faisabilité expérimentale.

III.2 Masse volumique

Deux essences de bois ont été utilisées : du balsa et du hêtre. La masse volumique a été mesurée à l'aide d'une balance de précision et d'un pied à coulisse. Pour chaque essence, trois échantillons parallélépipédiques (100*100*4) ont été prélevés dans les différentes planches avant la découpe des particules. Les échantillons ont été mesurés et pesés afin d'en déduire le volume et la masse. La masse volumique utilisée par la suite est la moyenne de ces trois mesures. Dans les deux cas, les variations de densité entre les différents échantillons étaient inférieures à 5 %. La masse volumique du balsa est de 159 kg.m^{-3} , et celle du hêtre de 685 kg.m^{-3} . En comparaison la masse volumique des granulés commerciaux sont de l'ordre de 1100 kg.m^{-3} (granulés de miscanthus Novabiom) et de l'ordre de $110\text{-}160 \text{ kg.m}^{-3}$ pour du semi-coke de hêtre dans des conditions similaires au cas du lit fluidisé¹⁵³.

III.3 Forme

Plusieurs formes de particules ont été utilisées, des particules cylindriques et des particules parallélépipédiques de différentes tailles. Le choix a été fait d'utiliser des tourillons car leur forme se rapproche des granulés de bois qui sont utilisés dans la maquette chaude du LRGP. Ces particules ont l'avantage d'être mécaniquement plus résistantes que des granulés de bois, ce qui limite leur abrasion au sein du lit fluidisé. Il est également facile de trouver ces particules en grande quantité.

Les tourillons de hêtre ont un diamètre de 8 mm pour une longueur de 25 mm, ce qui représente un volume de particule (V_p) de $1.25 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3$ et une surface de particule (S_p) de $7.3 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2$. Comme pour l'olivine, ces particules vont être comparées à des particules sphériques. Le diamètre retenu pour modéliser la biomasse est le diamètre de la sphère ayant le même volume que la particule ($d_{v,tour}$) qui peut être calculé comme suit :

$$d_{v,tour} = \sqrt[3]{\frac{3V_p}{4\pi}} = 13.4 \text{ mm} \quad (57)$$

D'après l'équation (54), le facteur de forme peut donc être calculé :

$$\Phi_{s,tour} = \frac{4\pi \frac{d_{v,tour}^2}{4}}{S_p} = 0.77 \quad (58)$$

Les tourillons seront donc modélisés par des sphères de diamètre $d_{v,tour} = 13.4 \text{ mm}$ et auront un facteur de forme $\Phi_{s,tour} = 0.77$.

Dans un lit fluidisé industriel de gazéification, les particules en entrée ne sont pas toutes de la même forme et de la même taille. Il a été décidé d'étudier l'impact du facteur de forme sur la ségrégation. Les particules parallélépipédiques ont été fabriquées pour être de même volume que les tourillons de hêtre mais avec un facteur de forme plus petit, de l'ordre de 0.5. Ce choix permet d'obtenir un facteur de forme qui se rapproche de celui des plaquettes de bois déchiquetées qui peuvent être utilisées en gazéification.

Les grandes plaquettes ont donc le même diamètre (de « sphère ayant le même volume ») (d_v) : $d_{v,pla} = d_{v,tour} = 13.4 \text{ mm}$. L'épaisseur minimum d'usinage des particules est de 4 mm (avec les machines d'usinage disponibles).

Les dimensions des particules peuvent être calculées en résolvant le système suivant :

$$\begin{aligned}
 S_p &= \frac{4 \pi \frac{d_v^2}{4}}{\Phi_{s,pla}} \\
 \Phi_{s,pla} &= 0.5 \\
 S_p &= l L e \\
 l, L, e &\geq 4 \text{ mm}
 \end{aligned}
 \tag{59}$$

Cela nécessite d'obtenir des particules de dimension 4 mm*5.5 mm*57 mm.

Le dernier paramètre étudié est l'impact de la taille des particules. Pour cela des petites plaquettes de même sphéricité mais de diamètre équivalent d_v plus petit sont utilisées. Soit un d_v de 7.6 mm. Ces plaquettes ont une dimension de 2 mm*4 mm*29.5 mm.

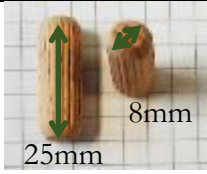
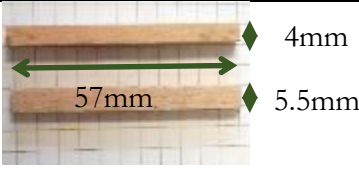
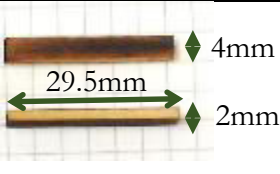
Ces petites plaquettes ont été réalisées uniquement en balsa car dans le cas de la gazéification de la biomasse, lors de la phase de pyrolyse et sous l'action mécanique du sable, les particules de charbon ont tendance à se fractionner. Les petites particules de balsa servent à représenter le comportement des petites particules de charbon.

Avec la caractérisation des particules de bois effectuée ci-dessus, il est également possible de calculer la vitesse théorique minimum de fluidisation des particules de bois. Cette vitesse n'est que théorique et permet uniquement de donner un ordre de grandeur. Pour des particules non sphériques, le diamètre effectif peut être calculé à partir du facteur de forme Φ_s et du diamètre (d_v). Les différentes particules ont une forme globalement allongée, c'est-à-dire que la plus grande dimension (L) est beaucoup plus grande que la petite dimension (l), $L \gg 2 l$. Dans ce cas³³, le diamètre effectif (d_{eff}) est défini tel que :

$$d_{eff} = \Phi_s^2 d_v \tag{60}$$

L'ensemble des résultats des diamètres effectifs et des vitesses minimum de fluidisation se retrouvent dans le Tableau 15.

Tableau 15 : caractéristiques physiques des particules de bois

	Tourillons	Larges plaquettes	Larges plaquettes	Petites plaquettes
Essence	Hêtre	Hêtre	Balsa	Balsa
Masse volumique	685	685	159	159
Forme				
Φ_s	0.77	0.50		0.50
d_v	13.4 mm	13.4 mm		7.6 mm
d_{eff}	7.94 mm	3.35 mm		1.17 mm
U_{mf} calculée	1.438 m.s ⁻¹	0.845 m.s ⁻¹	0.352 m.s ⁻¹	0.088 m.s ⁻¹

III.4 Technique d'imprégnation à l'azote liquide

L'objectif de ce paragraphe est de présenter une technique innovante mise au point au cours de ce travail. Cette technique d'imprégnation à l'azote a été développée dans le but de reproduire la dévolatilisation du bois lors de sa gazéification. Comme vu dans le Chapitre I, lors de sa gazéification, le bois libère une grande quantité de gaz (environ 80 % de sa masse). D'après la bibliographie, cette libération de gaz pourrait avoir une influence sur la vitesse de montée des particules dans le lit et donc sur la ségrégation des particules.

Cette technique d'imprégnation consiste à charger des particules solides (charbon de bois) avec un liquide capable de s'évaporer à température ambiante afin de générer du gaz pendant la fluidisation dans la maquette froide.

Le charbon utilisé est du charbon industriel initialement prévu pour faire des barbecues. Ce charbon a une densité relativement élevée (550 kg.m^{-3}) vis-à-vis du charbon que l'on retrouve en gazéification ($100\text{-}200 \text{ kg.m}^{-3}$).

L'azote liquide est utilisé pour imprégner le charbon, ce liquide a l'avantage d'avoir des temps de vaporisation comparables aux temps de dévolatilisation du bois dans un réacteur de gazéification.

L'installation expérimentale utilisée pour imprégner le charbon, est constituée d'un bâti mobile, d'une balance, d'une cage en grillage inoxydable et d'un récipient isotherme renfermant l'azote liquide (Figure 55).

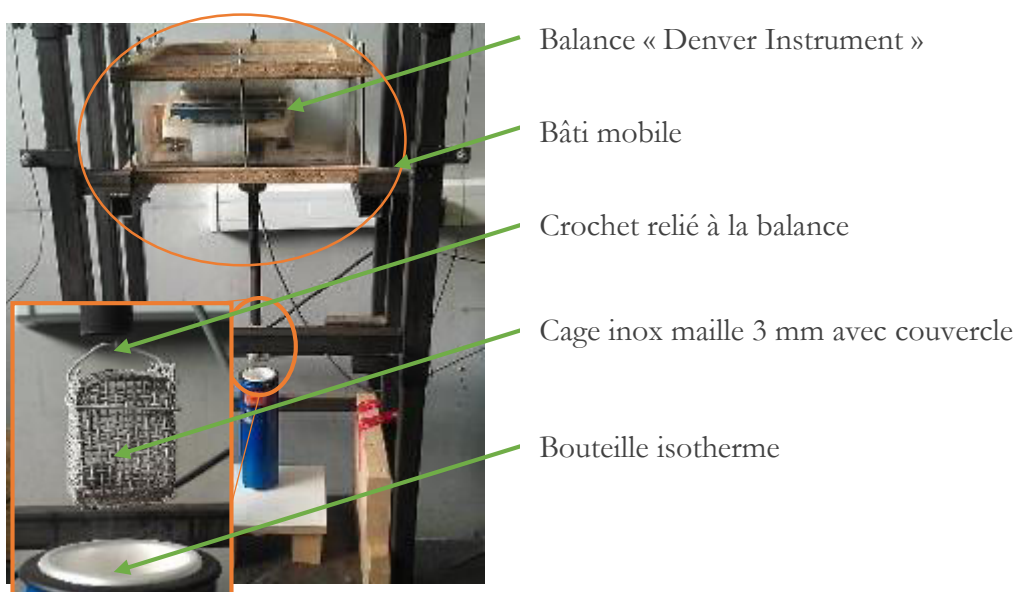


Figure 55 : installation d'imprégnation du charbon

La particule de charbon à imprégner est introduite dans le panier muni de son couvercle, lors de l'injection de l'ensemble dans l'azote, la particule est maintenue au fond du récipient et donc totalement immergée dans le liquide. La particule est immergée pendant 5 minutes. Le bâti est ensuite soulevé afin de laisser la particule à l'air libre pour permettre la dévolatilisation du liquide. La balance enregistre les données au cours de la manipulation, les résultats obtenus permettent de calculer la masse d'azote imprégné et de déduire le temps nécessaire pour dévolatiliser 95 % de la masse d'azote imprégné (Figure 56). Soit m_0 la masse initiale de la particule imprégnée d'azote, soit m_c la masse de charbon et m_N la masse d'azote. On a donc à l'instant $t=0$, juste après avoir sortie la particule du bain d'azote

$$m_0 = m_c + m_N(0) \quad (61)$$

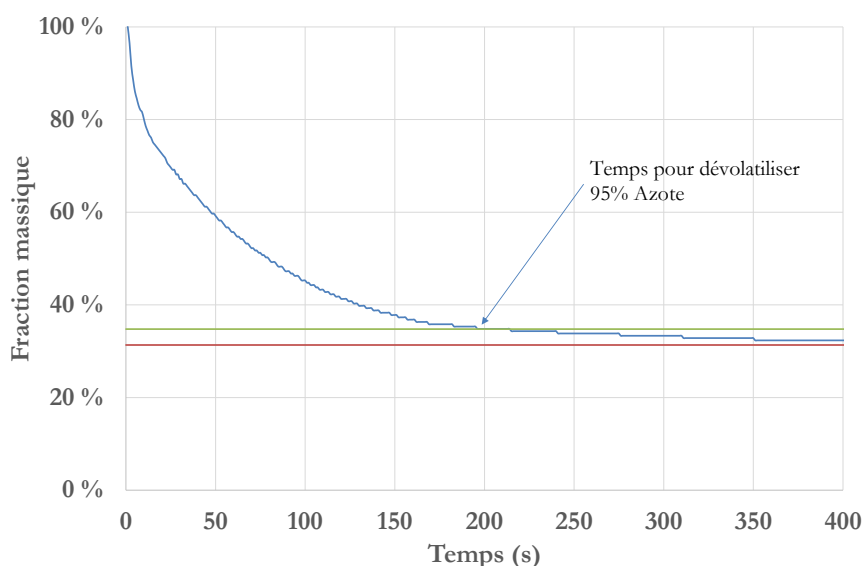


Figure 56 : dévolatilisation simulée par la vaporisation de l'azote liquide imprégnée dans une particule de charbon de bois

Ces essais permettent de voir qu'il est possible d'imprégner des particules de charbon avec de l'azote liquide. La fraction massique de matières volatiles dans le bois est de l'ordre de 80 % lors d'une pyrolyse rapide, tandis que dans ces expériences les particules imprégnées ont un taux de matières volatiles de 69 % en moyenne. Le temps de dévolatilisation de l'azote est légèrement plus long que le temps de pyrolyse (Jand et Foscolo¹⁷⁵), environ 200 secondes pour ces essais contre 40 à 160 secondes dans les conditions de pyrolyse. Cependant il est important de noter que ces essais sont réalisés pour une particule isolée sans mouvement d'air. Dans le cas d'un lit fluidisé, il y aura

une intensification du transfert de matière entre la particule imprégnée et le lit, on peut donc s'attendre à obtenir des temps de dévolatilisation plus faibles en condition in situ.

Cette technique de « particule active » pourrait être couplée à un système d'injection de particules par le bas du lit, afin de voir l'impact de la dévolatilisation sur la ségrégation des particules de biomasse. Ce système d'injection de la biomasse a été dessiné et fabriqué, il n'a cependant pas été utilisé pour faire ces essais avec les particules actives à cause du manque de moyens de mesures permettant une acquisition dynamique des états de mélange.

Cette technique mériterait d'être approfondie et développée, notamment en la couplant à un système permettant une mesure instantanée de la position des particules (traçage radioactif par exemple). Elle pourrait donner des informations complémentaires intéressantes. Le temps et les moyens techniques ont manqué pour effectuer ce travail.

Le paragraphe suivant détaillera l'ensemble des essais effectués avec la maquette froide et les particules présentées précédemment.

IV. Campagnes d'essais

L'objectif des essais est d'effectuer des mesures de l'hydrodynamique globale du lit en s'intéressant plus particulièrement à la localisation des particules de biomasse au sein du lit fluidisé d'olivine. L'enjeu de ce travail est double : il permet de produire des résultats de ségrégation, et également de générer des points expérimentaux hydrodynamiques afin de valider le modèle global de lit fluidisé de gazéification de la biomasse. Dans ce paragraphe le lit sera analysé en tranches numérotées de 0 à n pour l'état fluidisé et de 0 à m pour le lit au repos.

IV.1 Principe

Le principe de l'ensemble des essais est de fluidiser des mélanges olivine/bois avec des olivines et des bois différents afin de voir l'impact de la présence du bois dans le lit. Afin d'avoir une référence, des essais ont été effectués avec des lits d'olivine seule. Il aurait pu également être intéressant de faire des fluidisations avec des lits uniquement composés de particules de bois, cependant leur vitesse minimum de fluidisation étant très élevée, le matériel utilisé ne permettait pas de faire ces essais. Les seules particules de bois éventuellement fluidisables avec notre installation sont les petites particules de balsa, mais leur nombre étant limité, ces essais n'ont pas été effectués.

La majorité de ces essais a été effectués dans la maquette froide de lit fluidisé présentée ci-dessus. Quelques essais complémentaires ont été effectués sur une maquette chaude présentée ci-après.

IV.1.1 Méthode

Avant chaque essai le réacteur est entièrement vidé et nettoyé afin de garantir la validité des masses mises en jeu. Le logiciel d'acquisition est paramétré pour effectuer les manipulations, c'est-à-dire que : (1) le choix des voies à enregistrer pour la manipulation est effectué, (2) la mise à zéro des capteurs de pressions est effectuée, (3) le nom du fichier est enregistré. Le lancement de l'acquisition se fait après la préparation et la mise en régime du lit.

Pour l'ensemble des essais la masse de sable n'évolue pas au cours de l'essai, mises à part les quelques particules qui sont éluées. Cette part de particule est relativement faible, et ne concerne que les très petites particules (issus de l'attrition de l'olivine) car les vitesses de fluidisation sont peu élevées. La perte de masse par envol peut être négligée vis-à-vis de la masse d'olivine utilisée.

Pour chaque essai la composition du lit diffère : la masse d'olivine (m_{ol}) et la masse de bois (m_b) sont préparées dans des récipients distincts.

Des essais préliminaires ont été effectués pour évaluer l'impact du point d'injection de la biomasse sur l'état de mélange à l'état stationnaire. Dans notre étude trois cas ont été étudiés, (a) injection de la biomasse au-dessus du lit, (b) préparation du lit avec la biomasse sous l'olivine avant fluidisation, (c) injection de la biomasse au bas du lit. Le point d'injection n'a pas d'impact sur le mélange à l'état stationnaire, cependant lorsque la biomasse est injectée au fond du réacteur avant fluidisation (b), elle forme un « bouchon » qui n'est pas fluidisé. Il est donc important d'injecter la biomasse pendant la fluidisation ou au-dessus du lit.

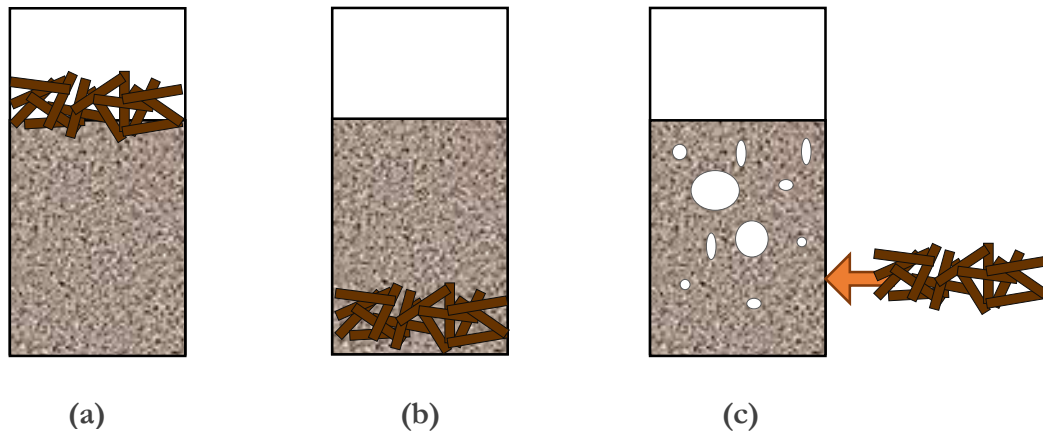


Figure 57 : cas d'injection de la biomasse

L'olivine est versée dans le réacteur par le dessus, et la biomasse est versée sur l'olivine. Ce mélange est fluidisé à la vitesse maximum que peut atteindre le ventilateur pendant 3 minutes. Cette phase de prémélange permet de décompacter le lit d'olivine, et de prémélanger les particules de bois. Sans cette phase de prémélange, les particules de bois ayant un petit facteur de sphéricité (les plaquettes) ont tendance à s'entremêler et à former un « bouchon » sur le dessus du lit qui ne se mélange pas à l'olivine (Figure 58).

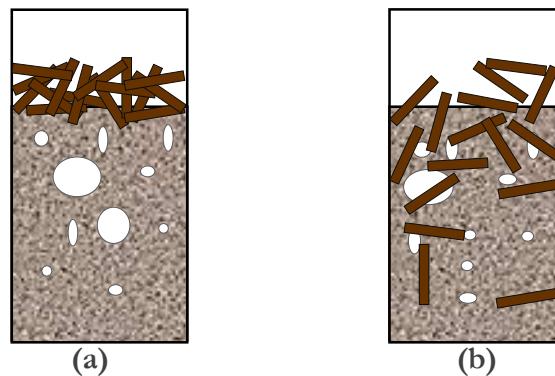


Figure 58 : état du lit avant prémélange rapide (a) et après prémélange rapide (b)

Lorsque le prémélange est effectué, le ventilateur est réglé afin de fournir la vitesse choisie pour l'essai. Lorsque la vitesse désirée est atteinte, c'est la phase de mise en régime. Cette phase dure environ 10 minutes, elle permet de mettre le lit dans un état stationnaire pour la vitesse choisie.

L'essai démarre après cette période de mise en régime. Au début de l'essai, il faut lancer l'acquisition sur le logiciel. La phase d'essai dure également 10 minutes. A la fin de l'essai, l'acquisition est arrêtée. Pour le cas d'un lit de plus de 313 mm d'épaisseur, il n'y a pas assez de capteurs disponibles pour pouvoir mesurer la perte de charge de l'ensemble des tranches (de 5cm), il est nécessaire de faire l'essai deux fois de suite en déplaçant les capteurs entre les deux essais.

Après cette phase d'essai, deux types de poursuites d'expérience sont possibles : (1) l'essai est terminé et dans ce cas le ventilateur est éteint (extinction normale) et la manipulation vidée, (2) l'analyse de la structure du lit est faite par prélèvement par tranche avec un tamisage pour analyser ladite tranche.

Le prélèvement-tamisage se fait après extinction de l'alimentation en air. Il est important que l'extinction n'engendre pas de réarrangement du lit. Lors de l'extinction « normale », la vitesse du ventilateur décroît et s'arrête en environ 6 secondes. Ce temps d'arrêt de la fluidisation est important, car durant la phase de défluidisation, les particules de biomasse peuvent se réorganiser. Pour limiter ce phénomène le choix a été fait d'arrêter brusquement la fluidisation en bloquant l'arrivée d'air du ventilateur à l'aide d'un bouchon, cela permet d'éteindre la fluidisation en une demie seconde (Figure 59).

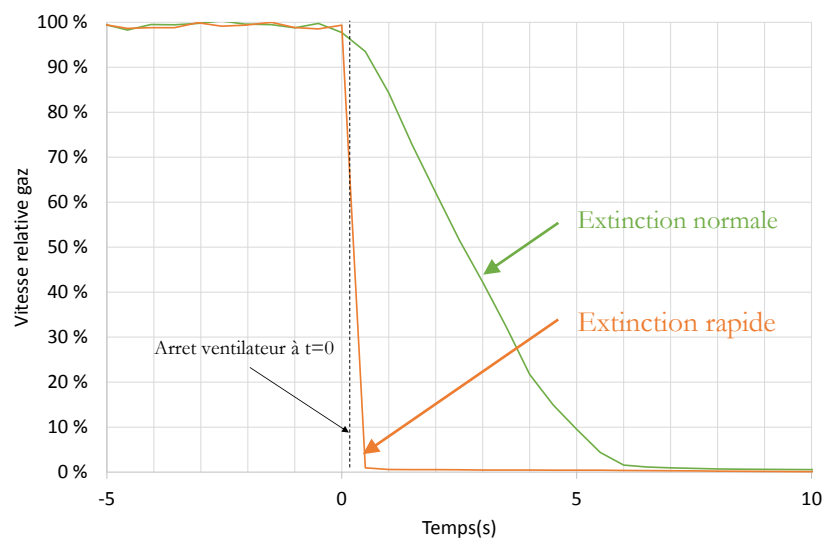


Figure 59 : comparaison des vitesses d'arrêt de la fluidisation

Durant cette extinction rapide, l'hypothèse est faite que les particules n'ont pas pu se réorganiser. L'analyse du lit par tamisage se déroule comme suit : la tranche « i » est prélevée à l'aide d'un aspirateur dédié⁴³. Avant le prélèvement, la cuve de l'aspirateur est tarée, après le prélèvement la cuve pleine est pesée afin d'obtenir la masse de la tranche (m_i). Le contenu de la cuve est versé sur le tamis présenté précédemment. L'olivine passe à travers les mailles de 0.75 mm alors que la biomasse reste sur le dessus (Figure 60).

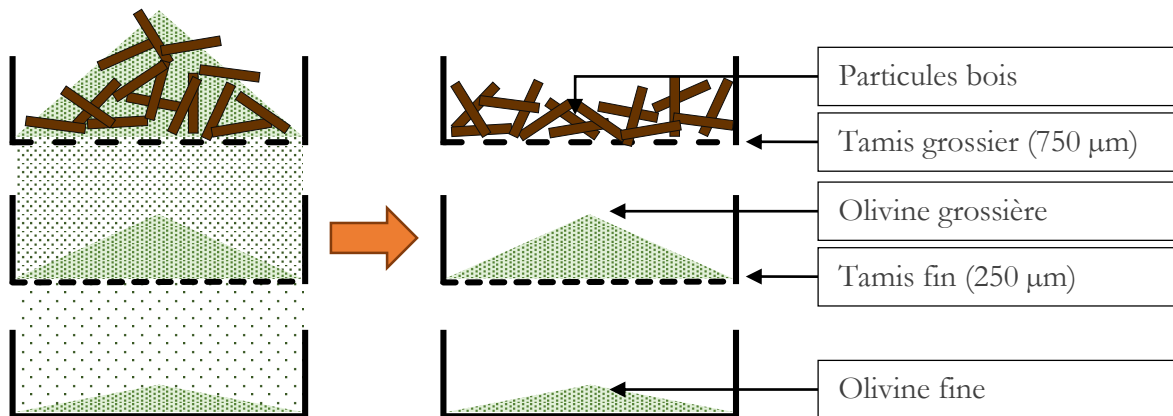


Figure 60 : tamissage d'une tranche prélevée

Le bois est récupéré et stocké dans une boîte, les particules de bois sont pesées à l'aide de la balance de précision, la masse de bois de la tranche est noté ($m_{b,i}$), la masse d'olivine ($m_{ol,i}$) peut être déduite de la masse de la tranche et de la masse de bois.

$$m_{ol,i} = m_i - m_{b,i} \quad (62)$$

Cette opération est faite pour l'ensemble des tranches (Figure 61). Les résultats obtenus permettent de caractériser l'état de mélange du lit.



Figure 61 : prélèvement tranche par tranche

Cette technique permet de bien caractériser l'état du lit. Ces manipulations ont été effectuées pour plusieurs types de mélanges (différentes masses et classes d'olivine, différents bois, différents ratios de bois/olivine, différentes vitesses de fluidisation). L'ensemble des paramètres sont présentés ci-après.

IV.1.2 Etude paramétrique

L'ensemble des essais ont été fait suivant la méthode ci-dessus, plusieurs paramètres ont été modifiés entre les différents essais.

Un paramètre important est la vitesse de fluidisation, de cette vitesse dépend un grand nombre de paramètre hydrodynamique (expansion du lit, diamètre des bulles, vitesse des bulles, régimes de fluidisation). D'après la bibliographie, la vitesse de fluidisation a également un impact sur la ségrégation. Fotovat et al ⁷⁵ montrent que la vitesse de fluidisation a tendance à augmenter le mélange des particules de biomasse dans le lit. Au contraire, Shen et al ¹⁷⁶ montrent que le lit est plus homogène à faible vitesse qu'à vitesse élevée. C'est pourquoi il a été décidé de travailler sur une gamme de vitesse la plus large possible. La vitesse dans le réacteur est caractérisée vis-à-vis de la vitesse minimum de fluidisation du matériau inerte seul (et pas de la vitesse minimum de fluidisation du mélange qui est une notion délicate à appréhender⁴³).

Comme présenté précédemment, le débit de fluidisation est relativement limité. Afin d'élargir la gamme de vitesses accessible, il a été décidé de travailler avec deux types d'olivine (paragraphe II) qui ont des vitesses minimum de fluidisation différentes. Ainsi il a été possible d'effectuer des essais pour des vitesses allant jusqu'à $6.5 U_{mf}$.

La majorité des essais a été menée avec un lit d'olivine de 20.9 kg, soit 268 mm de hauteur au repos (sans biomasse). Quelques essais ont également été effectués dans un lit de plus forte épaisseur : 30.9 kg soit 403 mm de hauteur au repos. Cette variation de masse de lit permet d'établir l'impact de la hauteur du lit sur la ségrégation des particules. Ces hauteurs initiales de lit représentent un ratio entre la hauteur du lit et le diamètre du lit de l'ordre de 1 à 1.5. Ce ratio correspond à celui observé dans le procédé EQTEC.

Les derniers paramètres étudiés sont ceux liés à la biomasse. Les biomasses utilisées sont celles présentées dans le paragraphe III. L'ensemble des paramètres variables sont présentés dans le tableau suivant :

Tableau 16 : paramètres des essais

Olivine	Granulométrie	Fine $d_{eff} = 210 \mu m$	Grossière $d_{eff} = 300 \mu m$	
	Masse volumique	3209 kg.m ⁻³	3202 kg.m ⁻³	
	Masse de lit (Hauteur au repos)	Lit fin 20.9 kg (268 mm) ou Lit épais 30.9 kg (403 mm)		
Biomasse	Type	Tourillons	Larges plaquettes	Petites plaquettes
	Granulométrie	$d_{eff} = 7.84 mm$	$d_{eff} = 3.75 mm$	$d_{eff} = 1.17 mm$
	Masse volumique (Essence)	685 kg.m ⁻³ (Hêtre)	685 kg.m ⁻³ (Hêtre) ou 159 kg.m ⁻³ (Balsa)	159 kg.m ⁻³ (Balsa)
Air de fluidisation	Vitesse	2.15 U_{mf} à 6.48 U_{mf}		2.15 U_{mf} à 3.38 U_{mf}

IV.1.3 Traitement des données

Quelques notations sont nécessaires pour présenter le traitement des données, soit P_i la pression en Pascal du capteur i , h_i la hauteur en mètre de la tranche i soit ϵ la porosité moyenne du mélange, soit ρ_b la masse volumique du bois et ρ_{ol} la masse volumique de l'olivine.

La première étape consiste à calculer pour chaque tranche, la perte de charge ΔP_i générée par la tranche i (Eq. (63))

$$\Delta P_i = P_{i+1} - P_i \quad (63)$$

A partir cette perte de charge, la masse volumique apparente $\rho_{app,i}$ peut être calculée (Eq.(64))

$$\rho_{app,i} = \frac{\Delta P_i}{h_i g} \quad (64)$$

Cette masse volumique apparente est la masse volumique moyenne de la tranche comprenant l'air, l'olivine et la biomasse.

La suite du traitement des données dépendra de ce que l'on souhaite étudier. Soit on travaille avec un lit d'olivine seule, dans ce cas la masse globale du lit et la porosité par tranche pourront être calculées. Soit l'essai se fait avec un mélange biomasse/olivine et dans ce cas on confrontera les résultats de pression aux données obtenues lors des prélèvements.

IV.2 Fluidisation de l'olivine

Dans cette partie nous allons nous intéresser à la fluidisation de l'olivine seule. Deux informations pourront être déduites, la masse du lit au-dessus du premier capteur, ainsi que la porosité tranche par tranche du lit.

IV.2.1 Masse globale de lit

Le lit peut se diviser en deux zones (Figure 62), la zone au-dessus du capteur 1, et celle en dessous de ce capteur. La masse d'olivine présente sous le capteur 1 ne peut pas être déduite des mesures de pression, elle est calculée comme présenté ci-après.

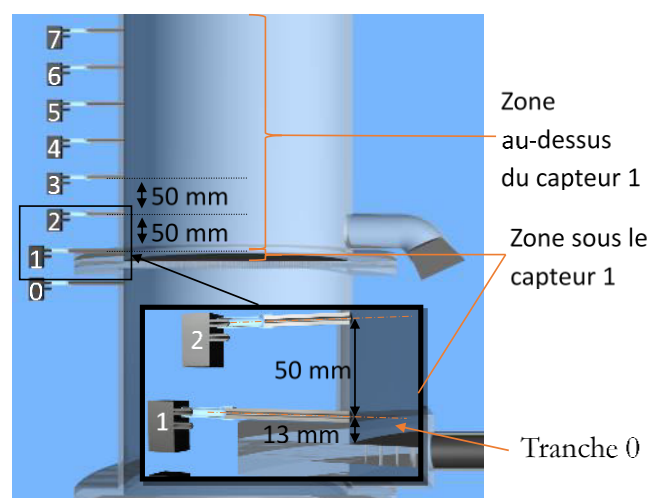


Figure 62 : détail de la tranche sous le premier capteur

L'espace entre le capteur 1 et le distributeur d'air (h_0) est de 13mm. L'installation est mise en marche sans olivine au-dessus du distributeur. Le système d'acquisition est mis en marche, la pression relevée par les capteurs est nulle (pas d'olivine).

De l'olivine est versée par le dessus du réacteur jusqu'à ce que le capteur 1 mesure une variation de pression. Cela signifie que ce capteur détecte la présence d'olivine et donc qu'il est recouvert par l'olivine. L'injection d'olivine est stoppée et la fluidisation arrêtée. On en déduit donc la masse d'olivine sous le premier capteur ($m_{ol,0}$), quand elle est fluidisée : elle est d'environ 900 g avec une vitesse d'air de 0.37 m.s^{-1} soit $U/U_{mf} = 2,7$. Ce résultat peut également être vérifié par le calcul (Eq. (65)), en considérant une porosité moyenne ($\epsilon_{moy} = 0,57$) du lit mesurée pour une vitesse de 0.37 m.s^{-1} .

$$m_{ol,0} = V_0 * \rho_{ol} * (1 - \epsilon_{moy}) = \frac{\pi d_{lit}^2}{4} * h_{l0} * \rho_{ol} * (1 - \epsilon_{moy}) = 822 \text{ g} \quad (65)$$

La masse d'olivine obtenue par le calcul est légèrement plus faible que celle mesurée précédemment, l'ordre de grandeur reste cependant correct. Ce surplus de masse est pris en compte pour le choix de la masse totale d'olivine, c'est pourquoi les essais ont été effectués avec 20.9 kg ou 30.9 kg d'olivine.

Lors de la fluidisation la masse au-dessus du capteur 1 se calcule à partir de la pression relative moyenne enregistrée par ce capteur. La masse du lit au-dessus de ce capteur se calcule d'après l'équation suivante :

$$m_{ol,lit} = \sum_{i=1}^{\text{nombre tranche}} m_{ol,i} = \frac{P_1 \pi d_{lit}^2}{4g} \quad (66)$$

Avec ces données il est donc possible d'effectuer le bilan de masse, c'est-à-dire de vérifier que les mesures effectuées permettent bien de « voir » l'ensemble de l'olivine fluidisée présente dans le lit. Le bilan de masse s'écrit :

$$m_{ol,tot} = \sum_{i=0}^{\text{nombre tranche}} m_{ol,i} = m_{ol,lit} + m_{ol,0} \quad (67)$$

La masse totale mesurée ($m_{ol,tot}$) est à comparer à la masse d'olivine initiale ($m_{ol,ini}$).

IV.2.2 Porosité du lit

Le second paramètre calculable à partir des mesures de pression est la porosité du lit (ϵ). La porosité correspond à la fraction d'air présente dans la tranche. Le mélange étudié est un mélange binaire composé d'olivine et d'air de masse volumique connu respectivement ρ_{ol} et ρ_{air} . La porosité de la tranche peut se calculer (Eq.(68)).

$$\epsilon_i = \frac{\rho_{ol} - \rho_{app}}{\rho_{ol} - \rho_{air}} \quad (68)$$

Ce calcul peut se faire uniquement pour les tranches complètes, c'est-à-dire l'ensemble des tranches excepté la tranche supérieure. Cette limitation provient du calcul de ρ_{app} (Eq.(64)) qui nécessite la connaissance de la hauteur de la tranche et que le lit occupe effectivement l'ensemble de la tranche analysée par les deux prises de pression qui l'entourent.

Les résultats de ces calculs permettent de générer un profil de porosité en fonction de la hauteur, il est également possible de calculer une porosité moyenne du lit d'olivine seule.

IV.3 Fluidisation de mélanges biomasse-olivine

Dans le cas d'un essai avec de l'olivine et de la biomasse, le calcul de la masse globale de lit peut s'opérer de la même manière que précédemment, cependant il n'est pas possible de calculer la porosité du lit. Dans ce cas le mélange est ternaire, il est donc nécessaire de connaître la fraction de bois dans la tranche pour calculer la porosité, ou de connaître la porosité pour calculer la fraction de bois.

IV.3.1 Mesures de pression

Dans le cas de lits composés d'olivine et de bois, le fichier des données sous VBA^f a été conçu pour calculer d'autres données. La masse volumique de chaque tranche « i » $\rho_{app,i}$ est calculée à partir des données de pression. La suite des calculs consiste à extraire des mesures de pression la fraction de bois dans chaque tranche. Pour ce mélange, la masse volumique peut se calculer avec l'équation (69), avec ρ_{part} la masse volumique moyenne des particules de solide présentes dans la tranche :

$$\begin{aligned}\rho_{app,i} &= \rho_{part,i}(1 - \epsilon_i) + \epsilon_i\rho_{air} \\ \rho_{part,i} &= \frac{\rho_{app,i} - \epsilon_i\rho_{air}}{1 - \epsilon_i}\end{aligned}\quad (69)$$

La masse volumique particulaire peut s'écrire en utilisant la fraction massique de bois ω_i parmi les particules de solides présents dans la tranche « i »,

$$\frac{1}{\rho_{part,i}} = \frac{\omega_i}{\rho_b} + \frac{(1 - \omega_i)}{\rho_{ol}}\quad (70)$$

La fraction massique de bois peut donc être calculée à partir de la masse volumique particulaire.

$$\omega_i = \frac{1 - \frac{\rho_{ol}}{\rho_{part,i}}}{1 - \frac{\rho_{ol}}{\rho_b}}\quad (71)$$

En couplant les équations (69) et (71) on obtient la fraction massique de bois en fonction de la masse volumique apparente.

$$\omega_i = \frac{1 - \frac{\rho_{app,i} - \epsilon_i\rho_{air}}{(1 - \epsilon_i)\rho_b}}{1 - \frac{\rho_b}{\rho_{ol}}}\quad (72)$$

^f VBA : Visual Basic for Applications

Pour résoudre cette équation, il est nécessaire de connaître la valeur de la porosité du lit. Cette donnée n'est pas connue, mais il est cependant possible de faire l'hypothèse que la présence des particules de biomasse n'impacte pas la porosité globale du lit. Cette hypothèse peut être acceptable quand la fraction massique de biomasse dans le lit est relativement faible (dans la majorité des cas moins de 2% en masse). A partir de la perte de charge de la tranche, la masse de la tranche (m_i) peut être calculée,

$$m_i = \frac{\Delta P_i \pi d_{lit}^2}{4g} \quad (73)$$

Avec le ratio de bois dans la tranche et la masse de la tranche, la masse de bois et la masse d'olivine de la tranche peuvent être calculées (Eq.(74)) :

$$\begin{aligned} m_{b,i} &= m_i \omega_i \\ m_{ol,i} &= m_i (1 - \omega_i) \end{aligned} \quad (74)$$

L'ensemble des calculs précédents ne peut être fait que lorsque la hauteur de la tranche est connue, c'est-à-dire pour toutes les tranches, la tranche supérieure exceptée. La solution utilisée consiste à compléter le bilan de masse sur le bois pour obtenir la masse de bois présente dans cette tranche. Soit $m_{b,0}$ la masse de bois injecté lors de l'essai. Soit $m_{b,i}$ la masse de bois dans la tranche « i » calculée avec les mesures de pression et $m_{b,sup}$ la masse de bois dans la tranche supérieure.

$$m_{b,sup} = m_{b,0} - \sum_{i=0} m_{b,i} \quad (75)$$

La même démarche peut être effectuée pour l'olivine, ainsi connaissant la masse d'olivine et la masse de biomasse, il est possible de calculer le ratio de biomasse dans cette tranche.

IV.3.2 Technique d'échantillonnage

Comme nous l'avons vu précédemment, les résultats des mesures de pression peuvent conduire à la détermination de la composition de chaque tranche en posant une hypothèse sur leur porosité. Ce paragraphe va permettre de mettre en avant une autre technique de mesure de la répartition du bois dans le lit sans faire d'hypothèse sur la porosité.

Les données utilisées sont celle mesurées lors du prélèvement et tamisage des tranches du lit. La masse d'olivine de chaque tranche « i » ($m_{ol,i}$) au repos et la masse de bois de chaque tranche « i » au repos ($m_{b,i}$) sont utilisées, ainsi que les mesures de pression.

Le premier calcul à effectuer est le bilan de masse de l'olivine et du bois à partir des masses prélevées. Il faut vérifier l'écart (δ_{ol}) entre la masse d'olivine injecté $m_{ol,inj}$ et la masse d'olivine prélevée (Eq. (76)).

$$\delta_{ol} = m_{ol,inj} - \sum_{i=0} m_{ol,i} \quad (76)$$

Le même calcul peut être effectué pour le bois (Eq. (77)) :

$$\delta_b = m_{b,inj} - \sum_{i=0} m_{b,i} \quad (77)$$

Pour la suite des calculs il est nécessaire de décrire les deux états du lit dans lesquels ont été faites les mesures. Le tamisage est fait à partir d'un lit au repos d'une hauteur (h_0), alors que les mesures de pression sont faites pour un lit en fluidisation d'une hauteur (h_f). Soit f_{exp} (Eq. (78)) le ratio de ces deux longueurs que l'on appellera facteur d'expansion :

$$f_{exp} = \frac{h_0}{h_f} \quad (78)$$

La hauteur du lit au repos (h_0) est obtenue à partir des données de tamisage. Lors de la défluidisation rapide la surface de la tranche « m » n'est pas horizontale, l'épaisseur ne peut pas être directement mesurée sur l'installation. Cette épaisseur est estimée (Eq. (79)) en faisant un ratio entre les masses moyennes des tranches dont on connaît la hauteur « h_l » égale à 5 cm (tranche de « 1 » à « m-1 »), et la masse de la dernière tranche « m_m ».

$$h_m = h_l \frac{m_m(m-1)}{\sum_{i=1}^{m-1} m_i} \quad (79)$$

La hauteur globale du lit au repos peut être calculée (Eq. (80))

$$h_0 = \sum_{i=0}^m h_i \quad (80)$$

Dans l'état fluidisé, le lit comporte « n » tranches ($n \geq m$). La hauteur du lit en fluidisation est estimée à partir des mesures de pression. Le principe du calcul se base sur la constatation que la pression évolue pratiquement linéairement dans le lit. On trace l'approximation linéaire des résultats expérimentaux et ainsi il est possible de lire la hauteur approchée du lit en fluidisation (Figure 63).

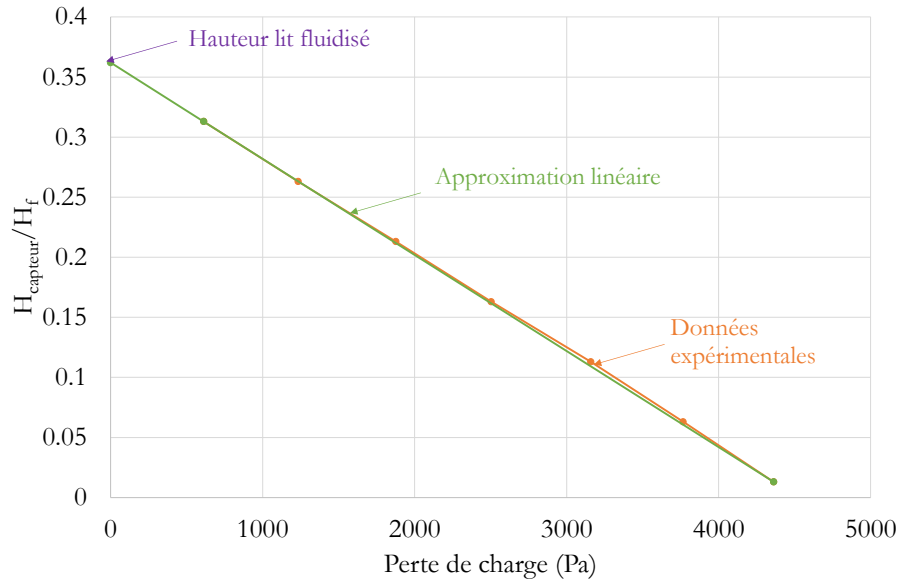


Figure 63 : évolution de la pression en fonction de la hauteur

Mathématiquement, cela revient à calculer l'ordonnée à l'origine de la courbe approximant la pression dans le lit, h_f est calculé avec l'équation (81) :

$$h_f = H_n - P_n \left(\frac{H_n - H_1}{P_n - P_1} \right) \quad (81)$$

avec H_i la hauteur du capteur i .

La différence de hauteur du lit entre le cas fluidisé et le cas au repos provient de la présence de l'air de fluidisation. Lors de la défluidisation rapide du lit, le lit tombe brusquement en perdant l'air interstitiel excédentaire introduit par la fluidisation. Le calcul qui va suivre va permettre de réintégrer la présence de la fraction d'air dans le cas fluidisé.

Le facteur d'expansion f_{exp} permet de générer à partir des échantillonnages au repos une répartition de biomasse pour le cas du lit fluidisé. Le calcul consiste à découper chacune des tranches en 10 sous-tranches, chacune de ces 10 sous-tranches auront donc une hauteur d'un dixième de la tranche initiale. La composition (en biomasse et en olivine) de chacune de ces sous-tranches provient des résultats de prélèvement (Figure 64).

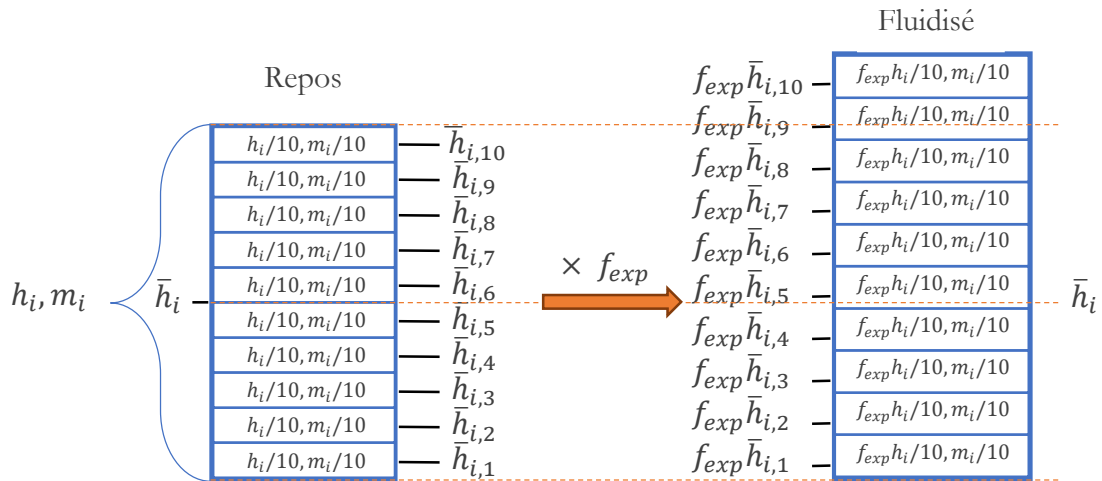


Figure 64 : principe de restauration de l'expansion du lit par le calcul

La suite du travail consiste à reformer les tranches du lit fluidisé c'est-à-dire que pour la tranche i fluidisée, on recalcule la masse de bois et la masse d'olivine et donc la fraction massique de bois ω_i .

On obtient ainsi la répartition du mélange dans le lit fluidisé à partir des prélèvements et tamisages. La Figure 65 permet de voir l'impact de la manipulation sur la répartition de biomasse dans le lit. Il représente l'évolution du ratio de bois « ω_i » (masse de bois dans la tranche « i » / masse de la tranche i) en fonction de la hauteur du milieu de la tranche (hauteur milieu tranche « i » / hauteur du lit fluidisé).

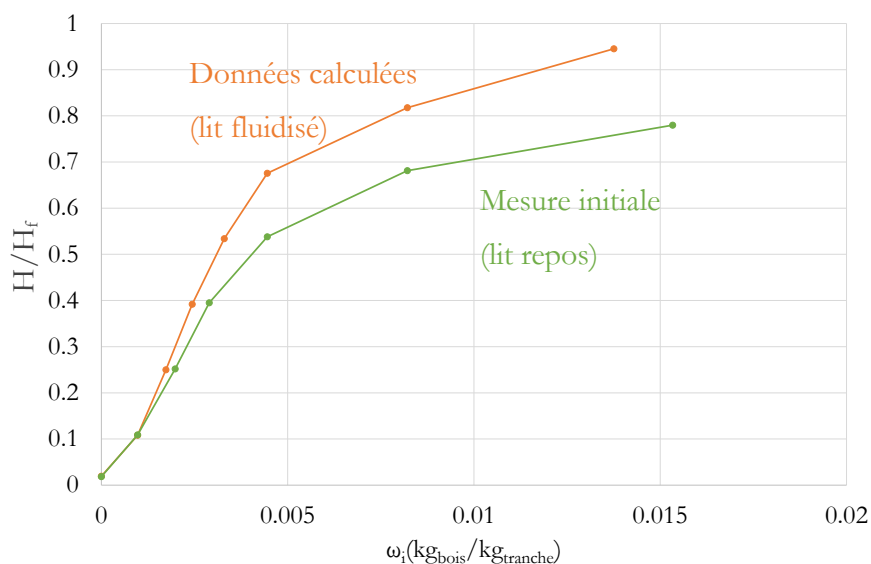


Figure 65 : répartition du bois au repos (mesurée) et fluidisé (calculée)

Après ces calculs, la masse de bois et d'olivine dans chaque tranche est connue, il est maintenant possible de déduire la porosité (ϵ) du lit à l'état fluidisé (Eq. (82)). La porosité peut se calculer à partir de la masse volumique $\rho_{app,i}$ et de la fraction massique de bois ω_i de la tranche.

$$\epsilon_i = \frac{\rho_{app,i} - \rho_b \omega_i - \rho_{ol}(1 - \omega_i)}{\rho_{air} - \rho_b \omega_i - \rho_{ol}(1 - \omega_i)} \quad (82)$$

La masse volumique de chacune des tranches du lit à l'état fluidisé est calculée à partir des données de pression comme présenté à l'équation (64).

Le schéma ci-dessous (Figure 66) permet de présenter d'où proviennent les informations calculées.

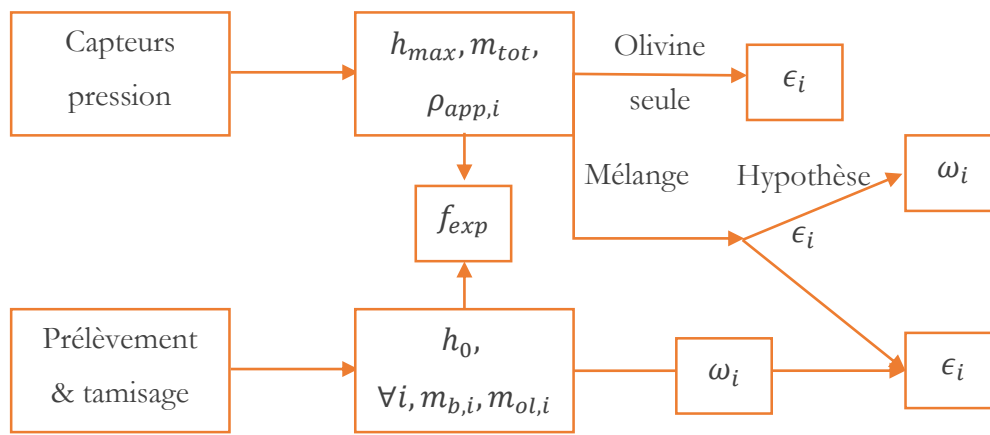


Figure 66 : représentation schématique des calculs

L'ensemble des essais présentés ci-dessus ont été effectués sur la maquette froide d'Epinal. Il est intéressant de pouvoir comparer les résultats obtenus sur cette maquette avec ceux obtenus sur un autre dispositif expérimental afin de garantir l'indépendance des résultats vis-à-vis de la maquette. L'installation mise en place au LRGP dans le cadre du projet GAMECO est utilisée pour comparer les résultats.

V. Maquette chaude

Cette maquette (Figure 67) a été conçue pour réaliser des essais de gazéification de biomasse à chaud. Elle est utilisée ici pour effectuer la fluidisation d'olivine à différentes températures (20-900°C). L'objectif ici est de vérifier l'impact de l'utilisation d'une installation différente sur les résultats de porosité, mais également de voir l'influence de la température sur la porosité mesurée à partir des mesures de pression.

Le fonctionnement de cette installation est similaire à la maquette froide. Elle est constituée d'une source d'alimentation en air, d'un distributeur d'air, et d'un corps de réacteur. Les piquages de pression sont présents tous les 5cm, mais répartis de part et d'autre du corps du réacteur. Cette installation est prévue pour fonctionner en température, le corps du lit est entouré par des coques chauffantes électriques asservies sur la température de paroi du réacteur. Le haut du réacteur est raccordé à un système de nettoyage des gaz. Dans notre étude ce système de nettoyage des gaz n'est pas utilisé.

Cette maquette diffère de la maquette froide par plusieurs points : le diamètre interne du réacteur n'est que de 0.102 m. L'alimentation en air se fait à l'air comprimé et le débit d'air à température ambiante est réglé avec un régulateur de débit massique. Il n'est pas possible de fluidiser à haute vitesse le lit lorsqu'il est froid (maximum $2.6 U_{mf}$ pour l'olivine grossière).

Pour ces essais, le lit utilisé est de masse plus faible (4 kg), ce qui représente un lit d'une hauteur d'environ 300 mm. Les calculs à effectuer sont ceux présentés au paragraphe IV.2.

Comme pour le cas de l'olivine seule dans la maquette froide, les calculs permettent de déterminer la porosité du lit en fonction de la hauteur.

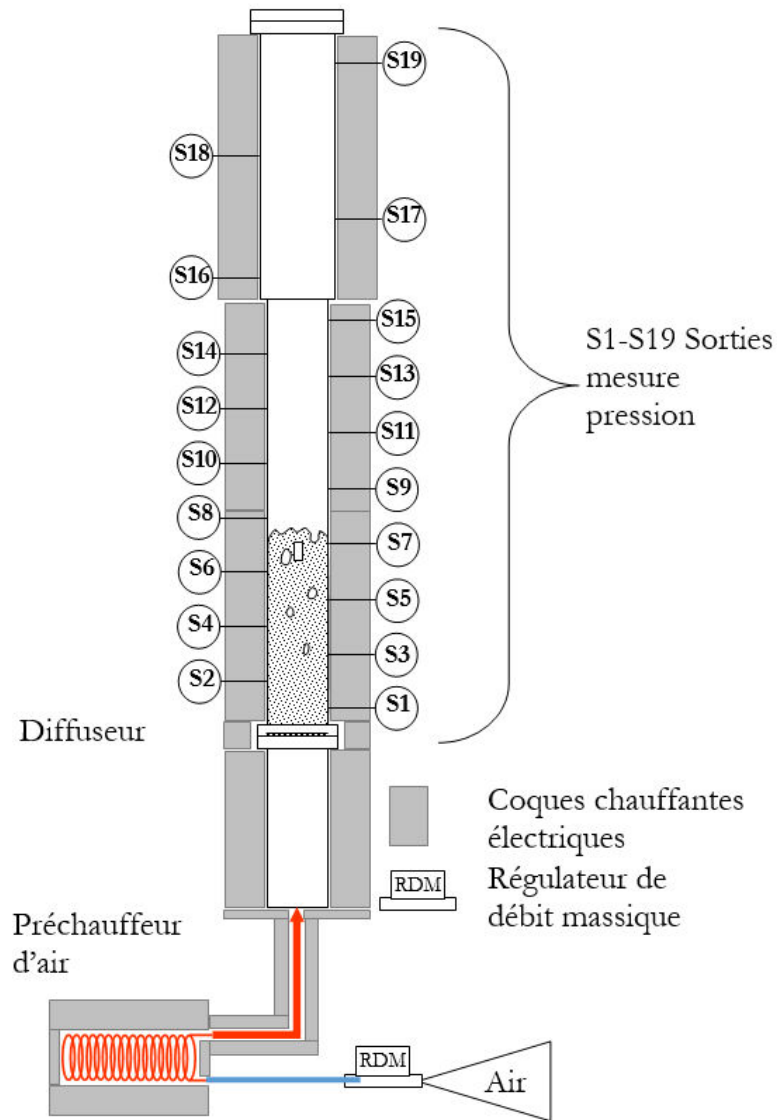


Figure 67 : schéma de la maquette chaude du LRGP

L'ensemble des calculs et des données des manipulations étant présentés, le chapitre suivant va détailler les résultats obtenus pendant les différentes manipulations.

Chapitre III : Résultats de l'étude hydrodynamique

I. Résultats expérimentaux

Ce chapitre présente l'ensemble des résultats expérimentaux et simulés de l'étude hydrodynamique. L'étude a porté sur la caractérisation d'un lit fluidisé composé uniquement d'olivine avant de s'intéresser au comportement d'un lit fluidisé comprenant de l'olivine et de la biomasse.

I.1 Fluidisation de l'olivine

La caractérisation du lit d'olivine (fine ou grossière) sans biomasse a produit des données qui seront utilisées par la suite pour valider le modèle hydrodynamique. Cette étude a permis également de valider les mesures effectuées avec les capteurs de pression.

I.1.1 Masse globale

Comme présenté dans le chapitre « Matériels et méthodes », la masse de matériau de lit peut être mesurée à partir des mesures de pressions. Les données enregistrées permettent d'évaluer la masse moyenne dans chaque tranche ainsi que la masse moyenne globale dans le lit quand les solides sont fluidisés.

Pour l'ensemble des essais présentés, la masse d'olivine utilisée est de 20.9 kg et pour être plus précis pour cette discussion, de 20.922 kg. En effet d'après ce qui a été présenté précédemment, la masse d'olivine sous le premier capteur de pression ne peut pas être détectée. Or elle varie entre 842 g et 994 g en fonction de la vitesse de fluidisation et du type d'olivine, et 922 g en moyenne. Pour des vitesses élevées, cette masse est plus importante que 922 g estimés précédemment, alors que pour des vitesses faibles la masse sous le premier capteur est plus faible. Cette variation peut être due au fait que lorsque la vitesse est élevée, les bulles forment des chaînes et la tranche inférieure devient moins fluidisée il y a formation de zones mortes. La masse d'olivine fluidisée vue par les capteurs varie donc entre 19.928 kg et 20.08 kg selon les essais, ce qui représente un écart inférieur à 0.4%. L'observation de zones mortes a également été effectuée dans le cas des essais effectués avec un diffuseur à tuyères. Ce diffuseur n'a pas été conservé par la suite car les zones mortes étaient fortement dépendantes de la vitesse et représentaient une masse de solide comprise entre 1 kg et 3 kg, ceci ne permettant pas d'effectuer les mesures souhaitées.

I.1.2 Porosité du lit

La mesure de pression permet de calculer la masse volumique en vrac du lit fluidisé. Connaissant la masse volumique particulière du solide, la porosité du lit peut être déduite.

I.1.2.1 Résultats

Les essais ont été réalisés pour les deux olivines (fine et grossière) à différentes vitesses de fluidisation. Les résultats obtenus diffèrent légèrement entre les deux olivines. Les barres d'erreurs correspondent aux erreurs liées à la précision du capteur.

Dans le cas de l'olivine fine (Figure 68), le profil de porosité est dépendant de la vitesse. L'accroissement de vitesse entraîne une diminution de l'uniformité du profil de porosité. Pour une vitesse de $2.72 U_{mf}$ la porosité dans la tranche du bas est d'environ 0.56 alors que pour une vitesse de $7 U_{mf}$ elle dépasse les 0.6. La porosité de la tranche supérieure (complète) dépend également de la vitesse : elle est de 0.59 pour une vitesse de $2.75 U_{mf}$ et de 0.65 pour une vitesse de $7 U_{mf}$.

Lorsque la vitesse de fluidisation est faible, la porosité diminue légèrement dans le milieu du lit avant d'augmenter de nouveau vers la surface. Ce phénomène s'amplifie pour des vitesses plus importantes. Plus la vitesse est élevée plus la diminution de porosité des tranches intermédiaires est importante. Pour la vitesse la plus élevée, la porosité minimum (0.52) est atteinte pour h/h_f de 0.4. Pour une fluidisation à $5 U_{mf}$, la porosité minimum (0.54) se retrouve également à un h/h_f de 0.4. On remarque un phénomène de compensation, c'est-à-dire que lorsque la porosité est plus faible dans le milieu du lit, elle est plus importante dans le bas et le haut du lit.

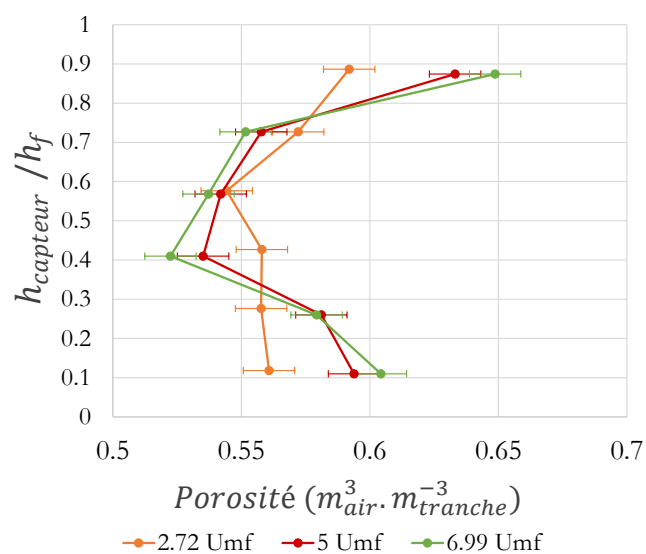


Figure 68: porosité du lit fluidisé d'olivine fine

Pour l'olivine grossière, les essais n'ont pas pu être effectués pour la même gamme de vitesses pour des questions de capacités insuffisantes de soufflage. Les deux courbes représentent des vitesses de $2.16 U_{mf}$ et de $3.38 U_{mf}$ (Figure 69).

Pour les deux vitesses, les tendances des courbes sont semblables, avec une moindre porosité de la partie intermédiaire du lit et une expansion importante du haut du lit. L'augmentation de vitesse entraîne une translation de la courbe de porosité vers la droite, c'est-à-dire que la porosité moyenne du lit est plus importante pour $3.38 U_{mf}$ que pour $2.15 U_{mf}$. Contrairement à l'olivine fine, on ne retrouve pas de phénomène de compensation. Ce phénomène n'est peut-être observable que pour des vitesses plus élevées, mais nous n'avions pas les moyens de soufflage pour réaliser ces essais dans nos installations.

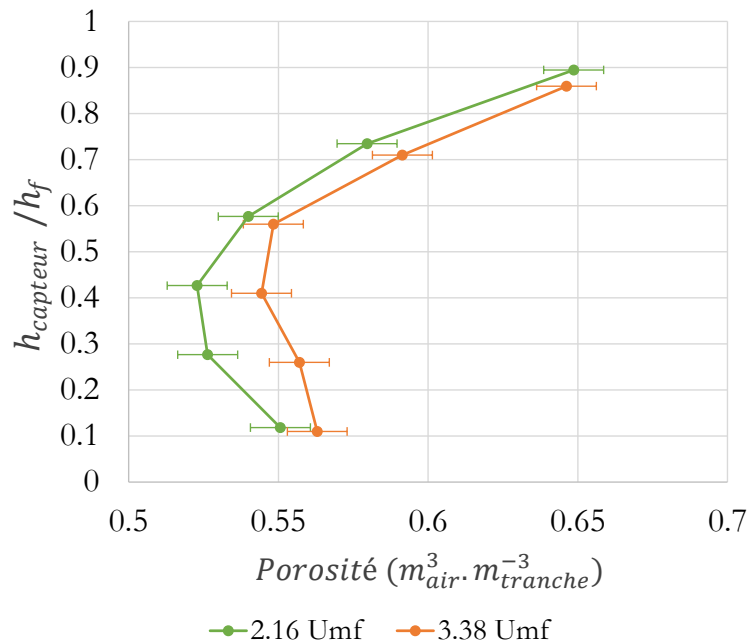


Figure 69 : porosité du lit fluidisé d'olivine grossière

Des essais ont également été effectués sur la maquette chaude du LRGP avec l'olivine grossière. Cette étude a permis d'évaluer l'impact de la vitesse et de la température sur la porosité du lit. Ces essais avaient un double objectif ; le premier consistant à valider la méthode opératoire, l'objectif étant de vérifier que les résultats obtenus étaient semblables dans les deux installations. Le second objectif étant de tester l'impact de différents facteurs sur la porosité.

La vitesse minimum de fluidisation mesurée de l'olivine est dépendante de la température : à 200°C elle vaut $0.109 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et à 400°C elle vaut $0.095 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$.

Comme on peut le voir sur le graphique ci-dessous (Figure 70), la température semble peu influencer la porosité. En effet, une augmentation de 200°C provoque un léger glissement de la courbe vers la droite c'est à dire que la porosité des essais à une température plus élevée est légèrement supérieure que celle mesurée à température inférieure. En revanche, l'influence de la vitesse de fluidisation est plus importante car pour une température donnée les profils de porosité à différentes vitesses sont clairement distincts : la porosité globale du lit est d'autant plus élevée que la vitesse est grande. Cette différence de porosité entre un essai à basse vitesse et un essai à haute vitesse s'observe particulièrement dans les tranches supérieures du lit.

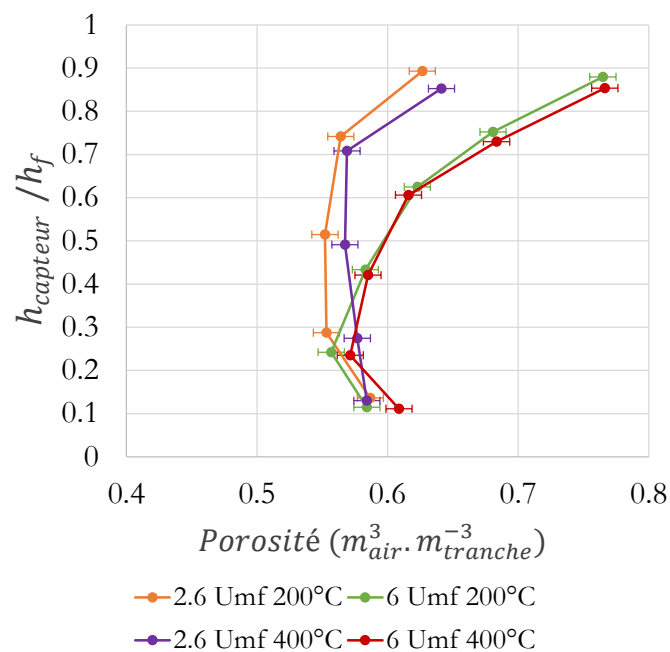


Figure 70 : porosité d'un lit fluidisé d'olivine grossière en maquette chaude

Dans le cas d'une fluidisation à faible vitesse (Figure 71), on voit que les profils de porosité évalués sur les deux maquettes sont relativement semblables, entre les essais à température ambiante sur la maquette froide et les essais à froid et à 200 °C sur la maquette chaude.

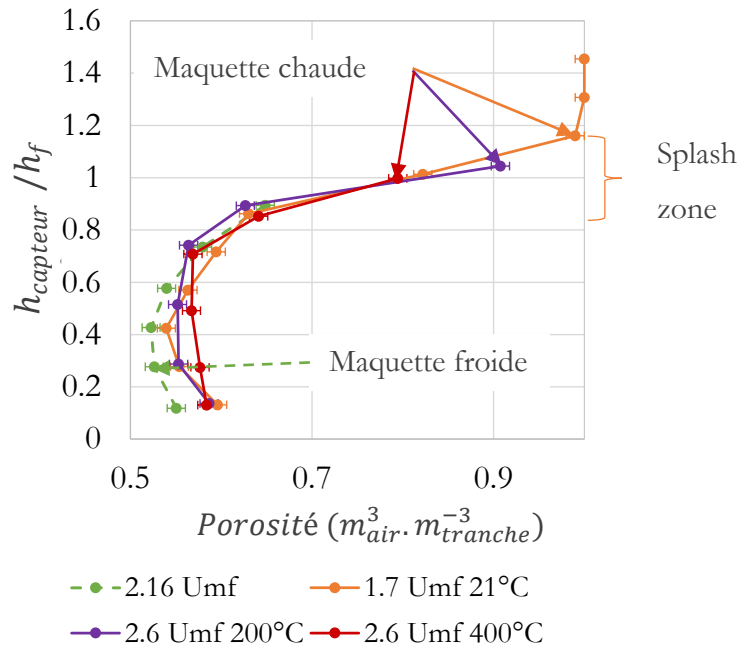


Figure 71 : porosité du lit fluidisé d'olivine grossière à faible vitesse sur la maquette froide et sur la maquette chaude à différentes températures (21°C, 200°C, 400°C)

I.1.2.2 Discussion

La masse obtenue par analyse de pression est cohérente avec la masse initialement injectée dans le lit.

Nos résultats de porosité paraissent surprenants au regard des résultats et des corrélations usuels de la littérature (Figure 88). En effet le profil de porosité décroît le plus souvent avec la hauteur dans le lit alors que d'après nos résultats expérimentaux, la porosité augmente avec la hauteur dans le lit.

Quelles que soient les conditions expérimentales des différents essais réalisés (vitesses, olivines de granulométries diverses, installations variées ...), nos résultats suivent les mêmes tendances. Nous avons également effectué des essais identiques et vérifié que les résultats sont semblables. Ils sont donc considérés comme valides. La différence de porosité constatée entre les corrélations de la littérature et nos résultats expérimentaux pourrait provenir d'un phénomène de fractionnement des bulles en haut du lit. Au fur et à mesure de leur montée, les bulles pourraient grossir (sous l'effet de la loi de Mariotte et de la coalescence). Elles seraient donc d'autant plus susceptibles d'être déformées par les forces de cisaillement générées par les mouvements des particules. A noter que ces mouvements particuliers sont eux-mêmes générés par la montée des bulles^{80,176}, mais aussi par

les phénomènes de projections/retombées au niveau de la splash zone¹⁷⁷. Ces mouvements particuliers sont donc de plus en plus intenses lorsqu'on s'approche du haut du lit.

L'analyse des expériences avec l'olivine comme unique « composant » étant terminée, la suite de l'étude a porté sur des lits composés de mélanges de particules de biomasse et d'olivine.

I.2 Fluidisation de mélanges biomasse-olivine

L'étude des mélanges d'olivine et de biomasse va permettre d'évaluer la ségrégation ou le mélange des particules de biomasse avec l'olivine, et la porosité des lits composés de biomasse et d'olivine. La reproductibilité des expériences a été vérifiée à partir des mesures de pressions et non des prélèvements. Nous avons effectuées les expériences à plusieurs reprises et enregistré les pressions moyennes lors des essais ce qui nous a permis de caractériser la masse volumique moyenne de chaque tranche. Ces essais nous ont permis de mettre en évidence que les essais étaient bien reproductibles.

I.2.1 Critère de ségrégation

Dans cette étude, différents paramètres ont été choisis afin d'analyser leurs impacts sur la répartition des particules de biomasse au sein du réacteur. La vitesse de fluidisation, les caractéristiques de la biomasse, les caractéristiques du sable et la proportion biomasse/olivine ont été les paramètres variables de ces essais.

Afin de comparer les résultats entre eux, il est nécessaire d'utiliser un critère de représentation de l'état de mélange des particules de biomasse au sein du lit. Dans le chapitre « Matériels et méthodes » une sélection de critères a été présentée. Nous souhaitons utiliser un indice de mélange variant entre 0 % et 100 %, qui serait « peu impacté » par l'épaisseur des tranches prélevées. Aucun des indices de mélanges trouvés dans la littérature ne nous permettait de respecter ces deux critères. Nous avons préféré mettre en place un indice noté H_{moy} qui permet de représenter la position moyenne du bois dans le lit et non une représentation de l'état de mélange. Cette indice se calcul selon l'équation (83)

$$H_{moy} = \frac{\sum_{i=0}^n x_i \left(H_i + \frac{(H_{i+1} - H_i)}{2} \right)}{H_{lit}} \quad (83)$$

Cet indice correspond à la « cote moyenne où se trouve le bois[§] » divisée par la hauteur du lit fluidisé, il est exprimé en pourcentage afin de faciliter la lecture. Lorsque H_{moy} se rapproche de 100%, cela revient à dire que la biomasse a un comportement *floatsam* alors que lorsque H_{moy} se rapproche de 0%, cela revient à dire que la biomasse a un comportement *jetsam*.

Ce paramètre très simple permet de caractériser globalement le mélange en localisant la position moyenne de la fraction (toujours très minoritaire) de biomasse au sein du lit d'olivine.

[§] moyenne des cotes des tranches pondérées par la fraction massique de bois de chaque tranche

I.2.1.1 Vitesse de fluidisation

La répartition des particules de biomasse dans le réacteur est influencée par la vitesse de fluidisation. Prenons l'exemple (Figure 72) d'un mélange contenant 7.5 % en volume de tourillons de hêtre (volume biomasse/volume olivine + biomasse) où la ligne verticale correspond à un état « parfaitement mélangé ». Pour l'ensemble des vitesses étudiées, la biomasse est présente dans la quasi-totalité du lit, avec cependant une plus forte proportion dans la partie supérieure du lit. La fraction de biomasse est bien fonction de la vitesse, mais la relation entre fraction et vitesse dépend de la position dans le lit : au sommet du lit la fraction décroît fortement lorsque la vitesse augmente, alors que dans le reste du lit, la fraction augmente légèrement lorsque la vitesse augmente.

Pour une vitesse de $2.7 U_{mf}$, $H_{moy}=80.9\%$, alors que pour une vitesse de $6.48 U_{mf}$ $H_{moy}=61.3\%$, la biomasse est donc mieux répartie au sein du lit pour une vitesse élevée. Pour la vitesse intermédiaire de $4.96 U_{mf}$, le H_{moy} vaut 63.5% . Cette observation permet de mettre en avant le fait que la différence de qualité du mélange est relativement faible entre $4.96 U_{mf}$ et $6.48 U_{mf}$.

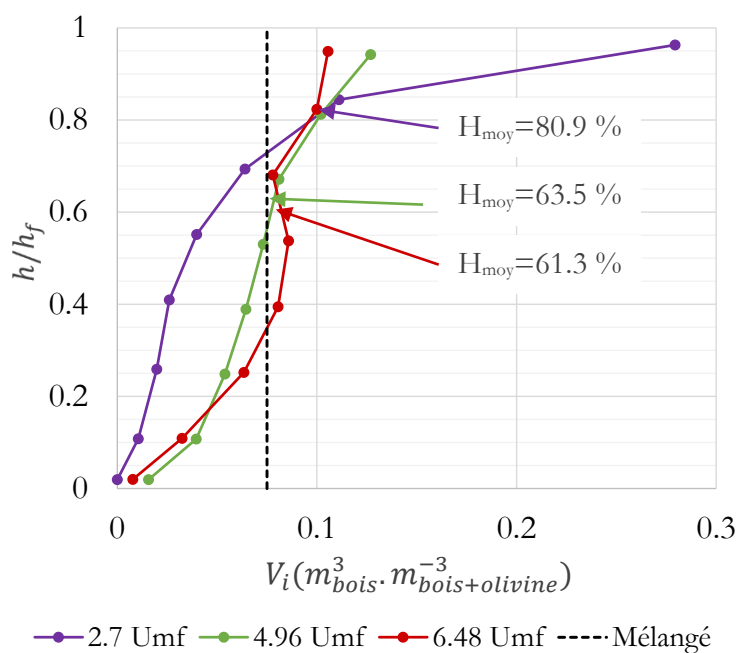


Figure 72 : impact de la vitesse pour un mélange de 7.5% en volume de tourillons de hêtre fluidisé avec de l'olivine fine

L'impact de la vitesse de fluidisation est en accord avec les publications^{75,76,82}, cependant nos essais n'ont pas pu être effectués à des vitesses suffisantes pour visualiser une nouvelle ségrégation à plus haute vitesse⁷⁶ des particules de bois. La suite des essais consiste à étudier l'impact des caractéristiques de la biomasse sur le mélange.

I.2.1.2 Biomasses

Les paramètres liés à la biomasse sont de deux natures, la fraction de biomasse dans le lit ainsi que les paramètres physiques de la biomasse (densité, forme, taille).

Le premier critère étudié est la fraction volumique de biomasse dans le réacteur. La Figure 73 permet de comparer l'évolution du taux de biomasse en fonction de la hauteur dans le lit pour deux fractions volumiques différentes 7.5 % et 18 %.

Les deux courbes étant assez différentes, on en déduit que la fraction de biomasse impacte la qualité du mélange.

Pour un faible ratio de biomasse (7.5 %), le H_{moy} vaut 61.3 %, d'après le graphique, on remarque qu'au-dessus de 35 % de la hauteur du lit la fraction de bois est proche de la fraction de bois moyenne, ce qui revient à dire que le lit est globalement homogène. A contrario, pour le lit avec un fort ratio de biomasse, le H_{moy} vaut 71.2 %, et il est clair que le mélange n'est pas bien réparti, le taux de biomasse étant sensiblement plus important dans la partie haute du lit que dans la partie basse du lit.

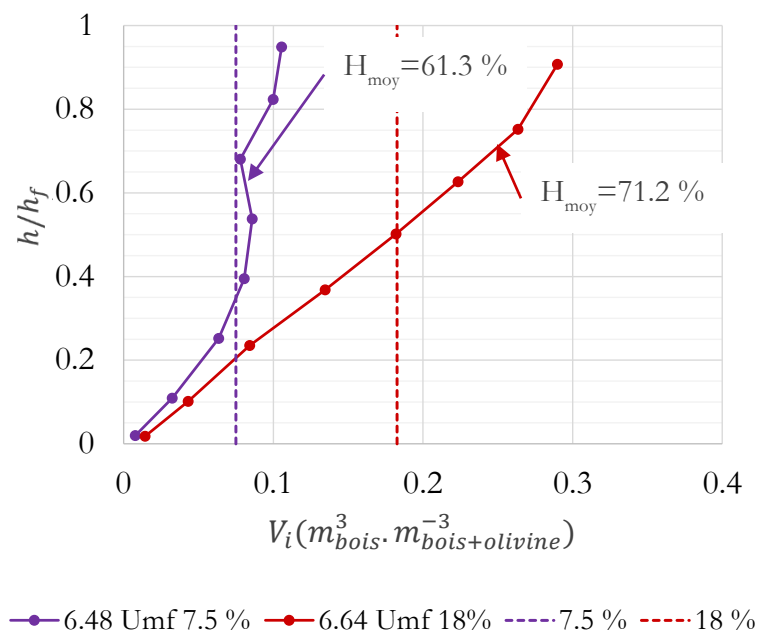


Figure 73 : impact de la fraction de bois sur la ségrégation en lit fluidisé composé d'olivine fine et de tourillons de hêtre et comparaison avec un mélange homogène

La suite des essais concerne directement les paramètres physiques de la biomasse, c'est-à-dire la forme, la densité et la taille des particules. On utilisera une fraction volumique de biomasse constante de l'ordre de 8 %.

Le premier critère étudié a été la forme des particules de biomasse (Figure 74). Pour ce faire trois essais ont été réalisés : deux essais avec des « chips » de hêtre à $2.25 U_{mf}$ et $3.47 U_{mf}$ et un essai avec des tourillons de hêtre à $2.77 U_{mf}$. La vitesse de fluidisation utilisée pour l'essai avec les tourillons est donc comprise entre les vitesses utilisées pour les essais avec les chips.

Dans les trois essais, la répartition des particules de biomasse reste la même avec une présence importante de ces particules dans le haut du lit. On remarque cependant que la ségrégation des tourillons se rapproche plus de l'essai à haute vitesse avec les chips.

Dans les deux premières tranches au bas du réacteur, il y a globalement plus de biomasse lorsque ce sont les chips qui sont utilisés. Par contre dans les deux tranches supérieures, la proportion de tourillons est plus importante.

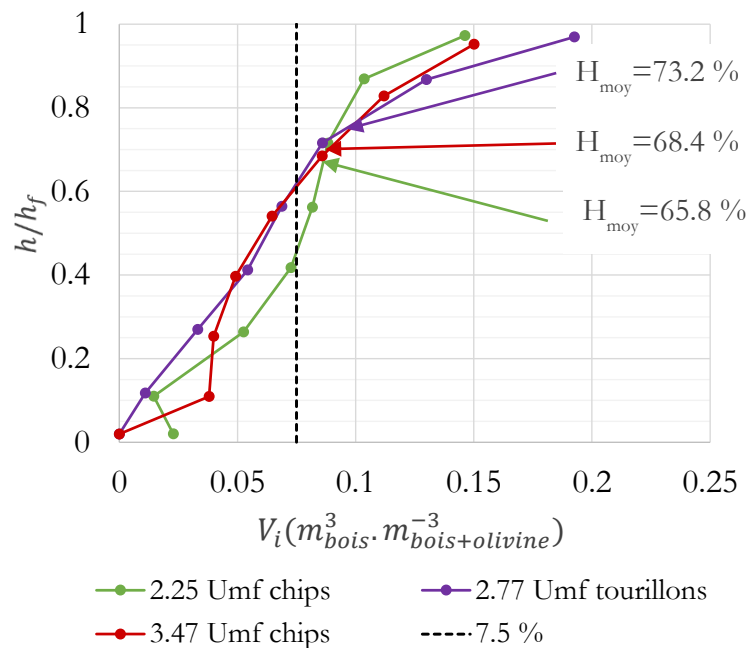


Figure 74 : impact de la forme des particules de biomasse(hêtre) sur le mélange dans un lit fluidisé d'olivine grossière

Le deuxième critère étudié est la densité de la biomasse (Figure 75), les particules de biomasse utilisées dans les deux cas sont des chips de mêmes dimensions, mais de natures différentes (balsa

et hêtre), l'olivine utilisée est l'olivine grossière. Les essais ont été effectués à une vitesse de l'ordre de $2.15 U_{mf}$.

Pour les deux essais, la fraction volumique de biomasse est légèrement différente (7.5 % pour le hêtre contre 8.7 % pour le balsa), cette différence n'est pas significative au regard des observations effectuées. Le comportement des deux mélanges est très différent : dans le cas du mélange contenant le balsa, les particules de biomasse se retrouvent principalement dans la partie supérieure du lit alors que pour les chips de hêtres, les particules sont réparties plus uniformément. Le H_{moy} est de 85.5 % pour le balsa et de 65.7 % pour le hêtre, cette différence significative montre qu'une densité faible comparée à celle de l'olivine, diminue l'homogénéité du mélange à faible vitesse.

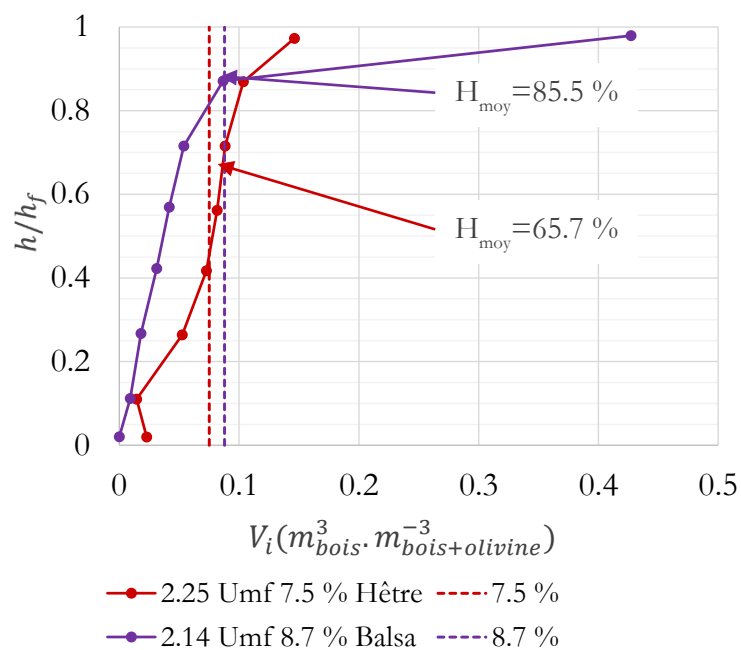


Figure 75 : impact de la densité de la biomasse pour des lits fluidisés d'olivine grossière contenant des chips de hêtre ou de balsa

Le troisième paramètre étudié est celui de la taille des particules. Les particules utilisées sont des chips de balsa de forme identique mais de tailles différentes. Le diamètre équivalent volumique est de 13.4 mm pour les chips contre 7.6 mm pour les petits chips. Les phénomènes ont été observés pour deux vitesses, une vitesse « lente », $2,14 U_{mf}$ (Figure 76 (a)) et une vitesse « intermédiaire » de $3,35 U_{mf}$ (Figure 76 (b)).

Essais à vitesse « lente » : lorsque les particules sont de grandes dimensions, la proportion des particules de biomasse est plus importante dans la partie haute du lit. Le paramètre H_{moy} vaut 85.5 % pour les grandes particules alors qu'il vaut environ 72.1 % pour les petites particules. Les particules

de petites dimensions se répartissent donc de manière plus homogène dans le lit. On note qu'à proximité du distributeur d'air la quantité de biomasse est dans les deux cas proche de 0.

La distribution de la biomasse est globalement linéaire jusqu'à 80 % de la hauteur du lit. La tranche supérieure a un comportement différent : elle contient dans les deux cas une proportion plus importante de biomasse. Cette part de biomasse est environ, deux fois plus importante pour le mélange contenant les grandes particules.

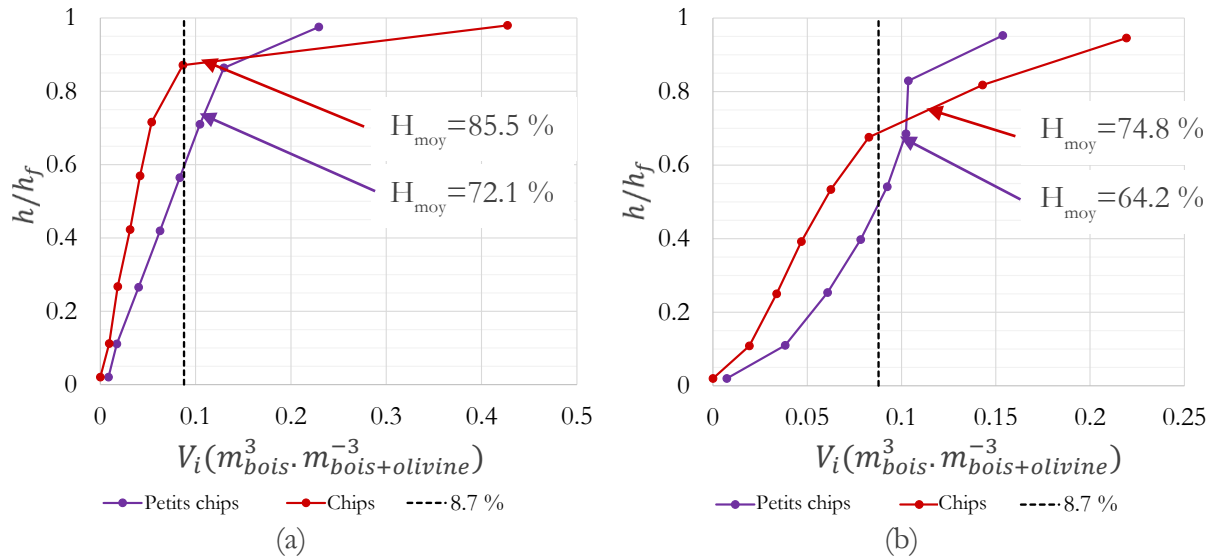


Figure 76 : impact de la taille de la biomasse pour des lit fluidisés d'olivine grossière contenant des chips de balsa de tailles différentes à (a) $2.14 U_{mf}$, (b) $3.35 U_{mf}$

Essais à vitesse élevée (Figure 76 (b)) : les observations sont similaires au cas précédent, puisque les particules de petites dimensions se répartissent de manière plus homogène dans le lit. Pour ces essais le H_{moy} vaut 74.8 % pour les grandes particules contre 64.2 % pour les petites particules. Dans la tranche à proximité du distributeur, la fraction volumique de biomasse reste similaire quelle que soit la taille des particules, proche de 0. Dans la tranche supérieure, la fraction de grandes particules est d'environ 22.5 % contre seulement 16 % pour les petites.

La comparaison des deux séries d'essais précédents permet de voir l'influence de la vitesse sur le mélange des particules et de constater que plus la vitesse est élevée, meilleur est le mélange des particules car, pour les grandes particules, H_{moy} passe de 85.5 % à 74.8 %, et pour les petites particules H_{moy} passe de 72.1% à 64.2 %

I.2.1.3 Matériau de lit : diamètre moyen et masse

Deux types d'essais ont été effectués concernant le matériau de lit, des essais comparant le type d'olivine (fine ou grossière) (Figure 77) et des essais comparant la masse d'olivine (donc la hauteur du lit) (Figure 78).

Le type d'olivine induit une légère variation de la distribution des particules de biomasse. Dans les deux cas, le mélange est composé de 20.922 kg d'olivine et de 7.5 % en volume de tourillons de hêtre. La vitesse de fluidisation est de $2.7 U_{mf}$.

Comme les deux olivines ont des diamètres moyens différents, les valeurs de leur U_{mf} sont différentes ($0.079 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $0.138 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$). Les vitesses de fluidisation utilisées sont différentes, pour l'olivine grossière elle vaut $0.37 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ contre seulement $0.213 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour l'olivine fine.

La répartition des particules de biomasse est meilleure dans le cas de la fluidisation avec l'olivine grossière ; le H_{moy} vaut 73.2 % contre 80.9 % pour l'olivine fine. Dans les deux cas, on remarque une absence de biomasse dans la tranche inférieure et une forte présence de biomasse dans la partie supérieure du lit.

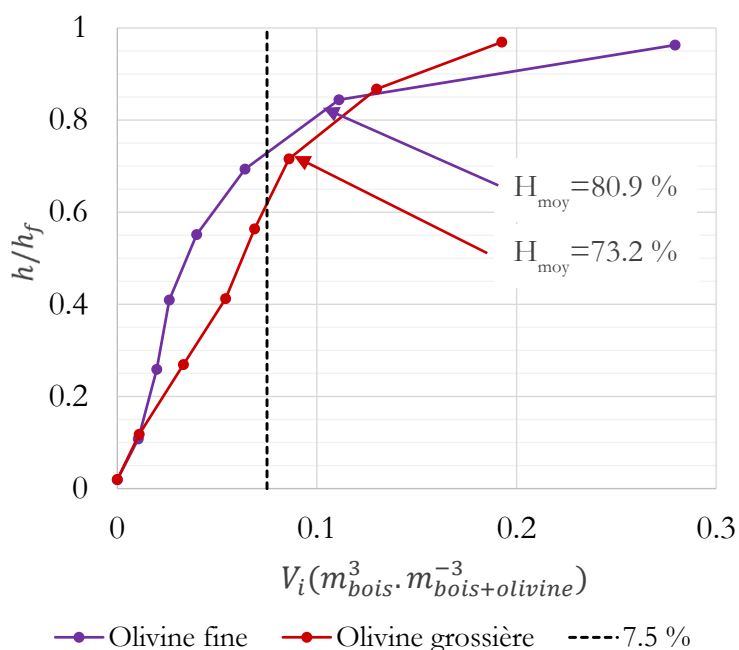


Figure 77 : impact de la granulométrie de l'olivine sur la ségrégation dans un mélange avec 7.5% en volume de tourillons de hêtre fluidisé à $2.7 U_{mf}$

Le paramètre suivant est l'inventaire du lit d'olivine.

Les essais ont été effectués pour des fractions volumiques de bois légèrement différentes pour des raisons expérimentales ; 7.5 % pour le petit lit et 9.9 % pour le lit le plus haut, ce qui n'est pas l'idéal pour établir l'influence de la masse de sable. Ces essais montrent néanmoins que la biomasse est mieux répartie dans le lit de grande hauteur. Le H_{moy} vaut 63.8 % pour le lit de grande hauteur contre 80.9 % pour le « petit lit ». Dans les deux cas, la fraction la plus importante de biomasse se trouve dans la tranche supérieure.

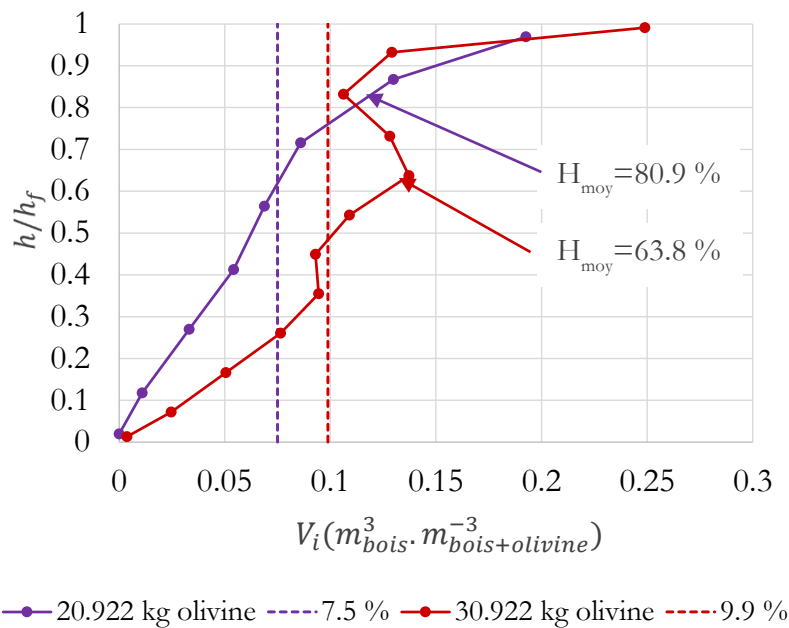


Figure 78 : impact de la masse du lit sur la répartition de la biomasse pour un lit fluidisé d'olivine grossière à $2.7 U_{mf}$ contenant des tourillons de hêtre

L'ensemble des résultats de ségrégation vient d'être explicité ci-dessus. Ces mesures de ségrégation couplées aux mesures de pression ont ensuite permis de caractériser la porosité du lit en présence de biomasse, caractérisation développée ci-dessous.

I.2.2 Porosité

Dans ce paragraphe est étudié l'impact de la présence de biomasse sur la porosité du lit fluidisé. Les données utilisées dans ce paragraphe proviennent des essais précédents, c'est-à-dire avec différents mélanges contenant de la biomasse (différentes densités, formes, tailles, fractions massiques) et de l'olivine (différentes tailles). L'impact de la vitesse est également étudié.

A la Figure 79 on constate une porosité moyenne constante de 0.57 quelle que soit la vitesse. Cette observation est conforme aux résultats de la littérature³³. En effet pour des lits de particules de classe B l'expansion et donc la porosité évolue peu avec la vitesse

La présence du bois impacte la porosité notamment dans les parties extrêmes du lit (haut et bas). La présence de bois entraîne une augmentation de la porosité dans la couche inférieure du lit et une diminution de la porosité dans la couche supérieure, donnant un profil axial plus « plat » que sans le bois, sans toutefois impacter la porosité des couches intermédiaires.

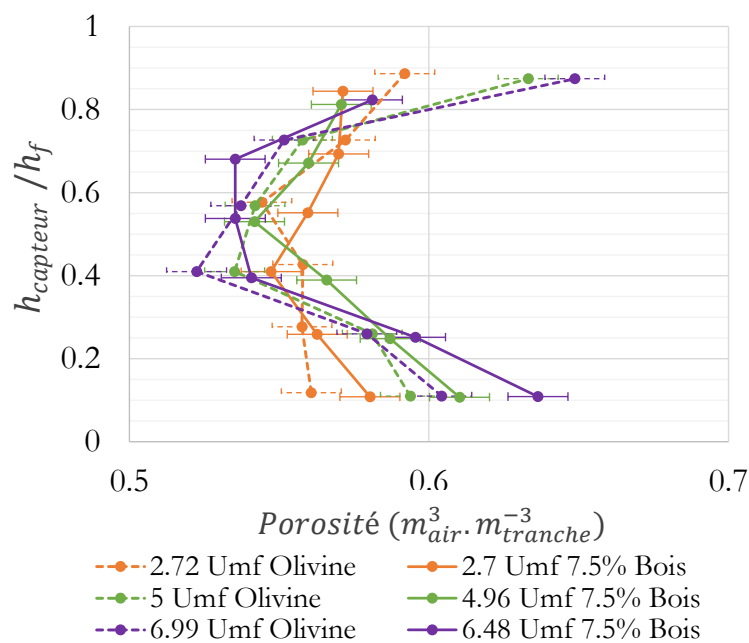


Figure 79 : impact de la vitesse de fluidisation pour un lit fluidisé d'olivine fine avec ou sans tourillons de hêtre

La fraction de bois impacte la porosité du lit (Figure 80) : pour une faible quantité de bois (7.5 %), la porosité est semblable à la porosité d'un lit composé uniquement d'olivine. La couche inférieure du lit a simplement une porosité plus élevée en présence de bois, tandis que la couche supérieure a une porosité moins élevée en présence de bois.

En revanche, lorsque la fraction de bois est importante (18 %), la porosité du mélange est sensiblement différente. Dans ce cas, on observe simplement une décroissance continue de la porosité du mélange le long de la hauteur du lit.

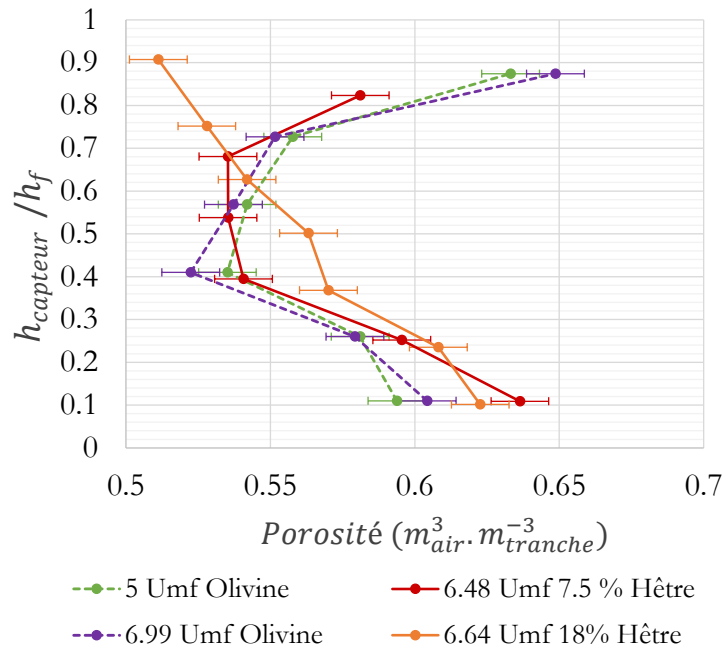


Figure 80 : impact de la fraction de biomasse pour un lit fluidisé d'olivine fine avec ou sans tourillons de hêtre

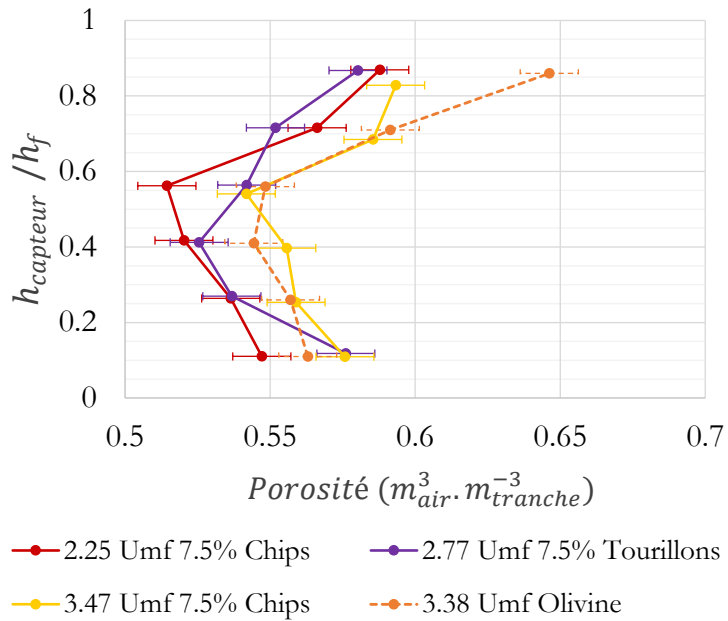


Figure 81 : impact de la forme des particules de biomasse pour des lits fluidisés d'olivine grossière avec ou sans chips ou tourillons de hêtre

La Figure 81 présente les résultats de porosité pour différents mélanges contenant des particules de hêtre de différentes formes. Pour les trois essais présentés, la tendance générale est la même avec une diminution de la porosité dans le milieu du lit.

La Figure 82 présente l'impact de la densité des particules de biomasse sur la porosité du mélange. La porosité globale des lits contenant les particules plus légères de balsa est légèrement plus importante que celle du lit contenant des particules plus lourdes de hêtre.

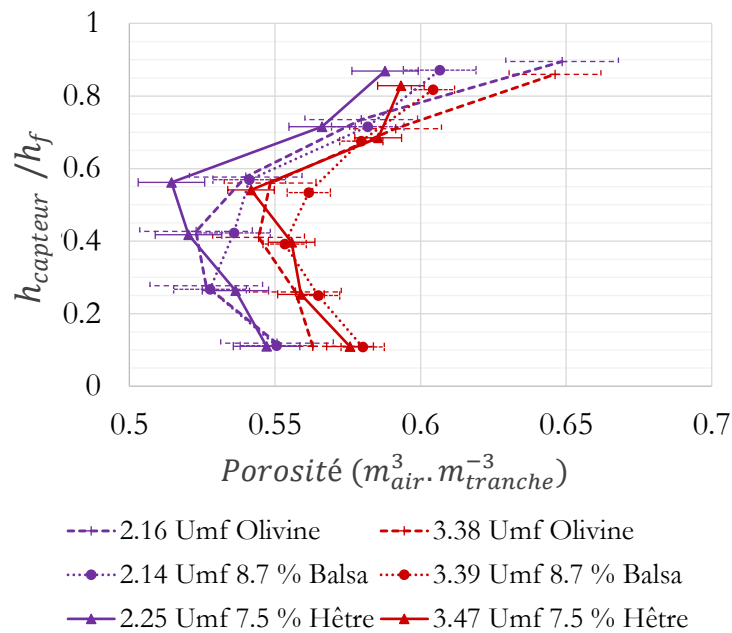


Figure 82 : impact de la masse volumique des particules de biomasse dans le cas de lits fluidisés d'olivine grossière avec ou sans chips de balsa ou de hêtre

Pour l'essai à faible vitesse de fluidisation, la présence des particules de bois n'impacte pas la porosité de la tranche inférieure en comparaison à l'olivine seule, par contre la porosité de la tranche supérieure est plus faible lorsqu'il y a de la biomasse dans le réacteur.

Pour l'essai à environ 3.45 U_{mf} , la présence de la biomasse entraîne une plus forte porosité dans la partie basse du lit, et une plus faible porosité dans la tranche supérieure, et donc un profil axial de porosité plus « plat ».

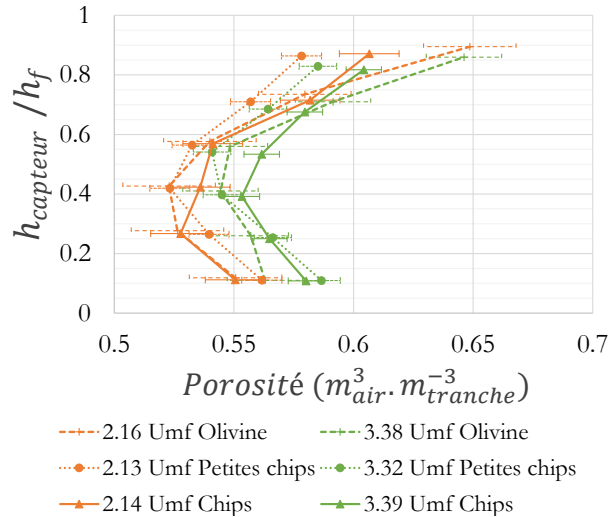


Figure 83 : impact de la taille des particules de biomasse sur la porosité de lits fluidisés d'olivine grossière avec ou sans balsa (8.7%)

La Figure 83 présente les essais réalisés pour évaluer l'impact de la présence de particules de tailles différentes sur la porosité d'un lit fluidisé d'olivine grossière et de biomasse. Deux vitesses sont étudiées pour ces essais, une vitesse lente de 2.14 U_{mf} et une vitesse plus rapide d'environ 3.35 U_{mf}.

Pour l'essai à faible vitesse, la présence des petites particules entraîne une augmentation de la porosité dans la tranche du bas alors que les grosses particules n'impliquent pas de variation de la porosité. Pour la tranche supérieure, on constate que, plus les particules sont de petites dimensions, plus la porosité de cette tranche est faible.

Pour les essais à plus haute vitesse, pour la tranche inférieure, plus les particules sont de petites dimensions, plus la porosité est importante. En revanche pour la tranche supérieure, plus la taille des particules est faible, plus la porosité est faible.

I.2.3 Discussion

I.2.3.1 Ségrégation

Les essais de ségrégation présentés dans le paragraphe I.2.1 ont permis d'étudier l'impact des principaux facteurs sur la ségrégation des particules de biomasse dans le lit d'olivine.

Dans l'ensemble des essais réalisés, la biomasse se retrouve globalement plus présente dans le haut du lit que dans le bas du lit (comportement « floatsam »). Pour l'ensemble des essais réalisés la tranche au contact avec le distributeur ne contient pratiquement pas de biomasse. Ce phénomène peut provenir du distributeur utilisé qui est composé d'une plaque à trous surmontée d'un tissu. Ce

distributeur peut entraîner une génération uniforme de bulles de petites dimensions qui empêcherait la biomasse de descendre dans la tranche inférieure (Figure 84).

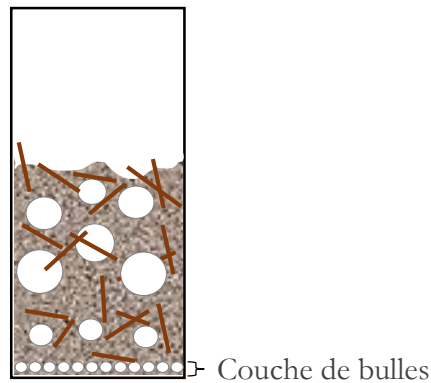


Figure 84 : impact des bulles à proximité du distributeur

La vitesse entraîne une variation du régime de ségrégation. Pour $2.7 U_{mf}$, les particules ont tendance à fortement migrer vers le haut du réacteur. A cette vitesse la biomasse a une présence sensiblement plus importante dans le haut du lit. Au contraire, pour des vitesses plus importantes ($5 - 6.48 U_{mf}$), la biomasse se répartit mieux, le lit devient globalement mélangé malgré une proportion de biomasse qui reste plus marquée dans le haut du lit. La comparaison de l'essai à $5 U_{mf}$ aux essais à $2.7 U_{mf}$ et $6.48 U_{mf}$, met en avant le fait que le profil de ségrégation du lit à $5 U_{mf}$ est très proche du profil obtenu à $6.48 U_{mf}$. Cette observation suggère que, pour des vitesses supérieures à $5 U_{mf}$, le lit se rapproche d'un état de mélange optimal (qui reste encore bien loin de l'état de mélange parfait). Cette observation est en accord avec les observations de Zhang et al⁷⁶ : ceux-ci considèrent que cet état optimal se trouve aux alentours de $5 U_{mf}$.

La fraction volumique de biomasse dans le lit influence également les profils de ségrégation. Lorsque la quantité de biomasse est faible (7.5 %), elle peut être mélangée correctement au lit si la vitesse de fluidisation le permet (Figure 8). A contrario, si la fraction de biomasse est plus élevée (18%), les particules de biomasse se répartissent beaucoup moins bien même si la vitesse du gaz est élevée. Cette altération de la répartition de la biomasse avec l'augmentation de sa fraction volumique pourrait être liée au fait que les particules de biomasse interagissent les unes avec les autres entraînant la formation d'une « structure » interne empêchant le mouvement des particules les unes par rapport aux autres. Ce phénomène limite la quantité de particules qui descendent dans le fond du réacteur.

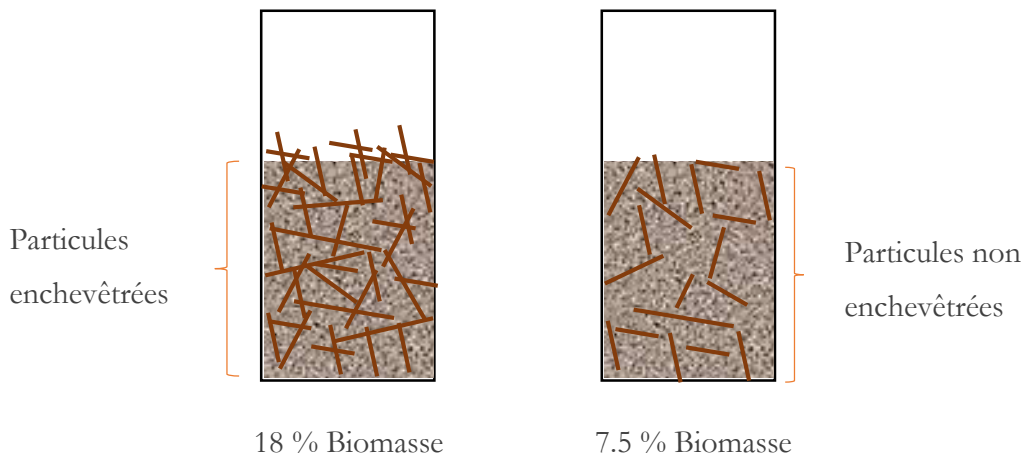


Figure 85 : schéma de l'impact de la fraction de biomasse sur la formation d'enchevêtrement des particules de biomasse

La forme des particules est également un facteur impactant la ségrégation. Les particules utilisées ont des facteurs de forme de 0.77 pour les tourillons et de 0.5 pour les chips. Il apparaît qu'un facteur de forme « petit » (c'est-à-dire une faible sphéricité) tend à légèrement améliorer le mélange des particules de biomasse. L'impact de la forme de la biomasse reste cependant faible, au regard des autres paramètres, sur leur ségrégation.

A contrario, la masse volumique des particules de biomasse a plus d'impact, notamment à faible vitesse (environ $2.2 U_{mf}$). Les particules de faible masse volumique sont dans leur grande majorité dans la partie supérieure du lit, alors que les particules de plus forte densité se retrouvent plus mélangées dans le lit. Les particules de balsa ont une masse volumique beaucoup plus faible (159 kg.m^{-3}) que la masse volumique moyenne du lit ($\approx 1600 \text{ kg.m}^{-3}$). Or pour des faibles vitesses, les mouvements de circulation au sein du lit sont faibles⁷⁹ et les phénomènes prédominants sont la poussée d'Archimède et l'ascension des bulles. Pour les particules de faible densité, le rapport entre la poussée d'Archimède et le poids des particules est plus élevé que pour les particules de plus forte densité.

La taille des particules de biomasse est également un paramètre important. Les essais, montrent que les petites particules ont tendance à être beaucoup plus mélangées que les plus grosses. Cela peut être lié au fait que l'énergie cinétique fournie par les chocs de l'olivine sur le bois à plus d'impact sur les petites particules que sur les grosses. L'olivine dans l'émulsion subit un mouvement descendant qui entraînerait plus facilement les petites particules vers le bas.

La suite des observations concerne l'olivine. La taille de l'olivine ne semble impacter que faiblement la répartition des particules de biomasse. La biomasse est mieux mélangée dans le lit d'olivine

grossière que dans le lit d'olivine fine. D'après les corrélations de vitesses de montée des bulles, les bulles migrent plus vite dans des lits de particules fines. Or pour de faibles vitesses, le facteur prépondérant sur la montée des particules est la vitesse des bulles¹⁷⁸, c'est pourquoi la ségrégation des particules de biomasse est plus marquée pour le lit d'olivine fine. Cette observation a également été effectuée par Ghaly et al⁷⁸.

Pour résumer les observations, la vitesse de fluidisation, la taille et la densité des particules de biomasse semblent être prépondérantes dans les phénomènes de ségrégation, contrairement à la forme des particules de biomasse et à la taille de l'olivine qui impactent plus faiblement la ségrégation.

Le Tableau 17 permet de résumer l'ensemble des essais en les classant par H_{moy} croissant, c'est à dire de l'essai présentant le moins de ségrégation axiale de la biomasse à celui en présentant le plus.

Tableau 17 : récapitulatif de la ségrégation observée au cours des essais

U / U_{mf}	Type olivine	Masse lit (kg)	Masse volumique du bois (kg/m^3)	Forme	\bar{V}_l (%) ^h	H_{moy} (%)
7	fine	20.922	685	tourillons	7.5	61.3
5	fine	20.922	159	petits chips	8.7	61.8
5	fine	20.922	685	tourillons	7.5	63.5
2.62	fine	30.922	685	tourillons	9.9	63.9
3.2	grossière	20.922	159	petits chips	8.7	64.2
2.25	grossière	20.922	685	chips	7.5	65.7
7	fine	20.922	685	chips	7.5	67.4
3.47	grossière	20.922	685	chips	7.5	68.4
7	fine	20.922	685	tourillons	18	71.2
2.123	grossière	20.922	159	petits chips	8.7	72.1
2.77	grossière	20.922	685	tourillons	7.5	73.2
2.72	fine	20.922	159	petits chips	8.7	73.5
3.39	grossière	20.922	159	chips	8.7	74.8
2.72	fine	20.922	685	tourillons	7.5	80.9
2.14	grossière	20.922	159	chips	8.7	85.5

^h \bar{V}_l correspond à la fraction volumique moyenne de bois dans le lit

I.2.3.2 Extrapolation au lit fluidisé de gazéification

L'ensemble des résultats précédents peut être transposé au cas du lit fluidisé de gazéification. Dans le cadre du projet GAMECO, les particules de biomasse utilisées sont des granulés de 8 mm de diamètre. La masse volumique des granulés (1127 kg.m^{-3}) est plus importante que celle des tourillons (685 kg.m^{-3}). Le charbon produit par la pyrolyse de ces granulés aura une masse volumique de l'ordre de 0,2, et une taille inférieure à 6 mm (si l'on considère que le solide se contracte de 25 %). Il peut également se fragmenter en fines particules sous l'effet des contraintes mécaniques et de sa gazéification/oxydation progressive. Les cendres « grises » (minéraux + carbone résiduel) produites par l'oxydation du charbon seront éluées hors du lit fluidisé lorsque leur taille sera suffisamment faible (de l'ordre de $300 \mu\text{m}$ pour une fluidisation à $6.5 U_{mf}$ ⁱ).

Si la biomasse a le temps de se répartir dans le lit avant d'être complètement pyrolysée, on pourrait observer le type de comportement suivant. Pour une vitesse de fluidisation de l'ordre de $6.5 U_{mf}$ (vitesse à laquelle la biomasse semble être la mieux répartie), la tranche directement au-dessus de la grille ne comporterait pratiquement pas de biomasse. Le bas du lit comporterait une fraction de biomasse croissante avec la hauteur jusqu'à 30 % de la hauteur relative. La fraction de biomasse resterait quasi constante dans la partie haute du réacteur (de 30 à 100 % en hauteur relative). Cette projection serait valable dans le cas où la fraction de biomasse avoisine 8 % en volume. Les grosses particules de charbon plus légères que la biomasse pourraient se rassembler vers le haut du lit. Cependant les particules fines de charbon (inférieures à 1mm) seront de mieux en mieux mélangées au fur et à mesure que leur taille décroîtra.

ⁱ Calcul effectué pour une particule de charbon de 200 kg.m^{-3} pour un essai en maquette chaude à 800°C

II. Modélisation de l'hydrodynamique

La modélisation de l'hydrodynamique est effectuée sur la base des données relevées dans la littérature. Ce paragraphe expose l'ensemble du modèle hydrodynamique utilisé. Ce modèle est codé dans MatLab® pour le résoudre numériquement.

II.1 Approche corrélative

L'approche corrélative semi-empirique a été retenue car l'objectif du projet est de mettre en place un modèle prédictif permettant de fournir rapidement et simplement les résultats escomptés. Du point de vue de l'ingénierie, il est nécessaire de mettre en place un modèle robuste représentant le réacteur complet. Ces contraintes imposent l'utilisation d'un modèle corrélatif car la résolution des modèles physiques par CFD-DEM est souvent très consommatrice en temps et puissance de calcul

II.2 Hypothèses

Les hypothèses utilisées pour ce modèle sont les suivantes :

- modélisation en régime stationnaire par un modèle unidimensionnel ;
- l'agent de fluidisation est de l'air ;
- le matériau inerte est de l'olivine considérée comme un solide mono-disperse ayant pour diamètre le diamètre moyen de Sauter de l'olivine réelle ainsi que la sphéricité estimée expérimentalement ;
- la biomasse est caractérisée par sa fraction massique dans le réacteur ;
- le réacteur fonctionne à pression atmosphérique au niveau du distributeur.

II.3 Données d'entrée et de sortie

Les données d'entrée du modèle sont :

- Les caractéristiques géométriques du réacteur :
 - o dimensions
 - o type et caractérisation du distributeur
- les caractéristiques de la biomasse
 - o taille des particules
 - o masse volumique de la particule

- quantité
- masse volumique vrac
- les caractéristiques du matériau du lit
 - diamètre moyen de Sauter
 - masse volumique de la particule
 - facteur de sphéricité des particules
 - quantité
- les caractéristiques de l'air de fluidisation
 - composition
 - débit
 - température

Les données de sortie sont :

- les données globales pour le réacteur
 - hauteur du lit fluidisé
 - porosité moyenne du lit
- les données hydrodynamiques pour chaque tranche
 - débit volumique du gaz
 - diamètre moyen et vitesse moyenne de bulles
 - fraction de bulles
 - porosité du lit, et de l'émulsion
 - masse de sable
 - pression
 - ratio U/U_{mf}
- les données de répartition de la biomasse
 - fraction volumique de biomasse dans chaque tranche

II.4 Sélection des corrélations

Ce paragraphe mentionne rapidement les corrélations utilisées dans ce modèle. Le choix a été effectué à partir des données de la littérature.

L'utilisation des corrélations nécessite l'usage de deux nombres adimensionnels :

- le nombre de Reynolds au minimum de fluidisation Re_{mf} ;
- le nombre d'Archimède Ar .

II.4.1 Vitesse minimum de fluidisation

La vitesse minimum de fluidisation est calculée selon les recommandations de Kunii et Levenspiel³³ : le choix de la corrélation dépend du diamètre moyen des particules. La corrélation de Wen et Yu¹²⁶ est utilisée pour les diamètres inférieurs à 100 μm (Eq. (84)) alors que celle de Chitester et al¹²⁹ est utilisée pour des particules de diamètre supérieur à 100 μm (Eq. (85)) :

$$\text{si } d_p < 100\mu\text{m } Re_{mf} = (33.7^2 + 0.0408 Ar)^{0.5} - 33.7 \quad (84)$$

$$\text{si } d_p \geq 100\mu\text{m } Re_{mf} = (28.7^2 + 0.494 Ar)^{0.5} - 28.7 \quad (85)$$

La vitesse minimum de fluidisation (Eq. (86)) est ensuite déduite de la définition du nombre de Reynolds grâce à :

$$U_{mf} = \frac{Re_{mf}\mu_g}{\rho_g d_p} \quad (86)$$

La masse volumique et la viscosité du gaz sont dépendantes de la pression et de la température.

II.4.2 Bulles

Les bulles sont caractérisées en taille et en vitesse d'ascension dans le lit. Ces caractéristiques ont une influence importante sur l'ensemble du modèle avec notamment les paramètres suivants qui dépendent des caractéristiques des bulles : porosité, hauteur du lit et répartition des particules de biomasse.

II.4.2.1 Diamètre moyen

Le diamètre moyen des bulles est calculé à partir des caractéristiques du solide et de la vitesse de fluidisation. Le premier calcul consiste à estimer la taille des bulles au niveau du distributeur. Les maquettes sont constituées d'une plaque perforée.

L'équation proposée par Miwa et al ¹³⁵ est utilisée.

$$d_{bulle,0} = 0.347 \left(\frac{A_{lit}(U - U_{mf})}{n_{or}} \right)^{0.4} \quad (87)$$

Le diamètre moyen des bulles en fonction de la hauteur est ensuite calculé grâce à la corrélation proposée par Mori et Wen¹⁴⁰ (Eq. (88)) car c'est la relation qui est recommandée³³ pour des plaques perforées et pour des particules de classe B.

$$d_{bulle}(z) = d_{bulle,max} - e^{-\frac{0.3z}{d_{lit}}} (d_{bulle,max} - d_{bulle,0}) \quad (88)$$

Avec le diamètre maximum de bulle tel que :

$$d_{bulle,max} = 0.652 A_{lit}(U - U_{mf})^{0.4} \quad (89)$$

si $d_{bulle,max} > d_{lit}$ alors $d_{bulle,max} = d_{lit}$

A partir de cette évolution du diamètre de bulle selon z, la vitesse locale des bulles peut être définie.

II.4.2.2 Vitesse

La littérature¹³⁶, recommande d'utiliser la corrélation de Wallis est pour calculer la vitesse de montée d'une bulle isolée (Eq.(90)) :

$$U_{br} = 0.711 \sqrt{g d_{bulle}} 1.2e^{-\frac{1.49d_{bulle}}{d_{lit}}} \quad (90)$$

Le calcul de la vitesse locale des bulles (Eq.(91)) au sein du lit se fait d'après la corrélation proposée par Davidson et Harrison¹⁷⁹

$$U_b(z) = U_{br} + (U - U_{mf}) \quad (91)$$

Ces caractéristiques des bulles étant calculées, il est maintenant possible de calculer la fraction de bulles dans le lit.

II.4.2.3 Fraction de bulles

La fraction de bulles (Eq.(92)) est calculée selon la théorie à deux phases modifiée par Hillgardt et Werther¹²⁴. Le coefficient de déviation (Eq.(93)) utilisé est celui proposé par Wu et Baeyens⁶⁶ :

$$\delta(z) = \frac{2.27Ar^{-0.21}(U - U_{mf})}{U_b} \quad (92)$$

$$Y = 2.27Ar^{-0.21} \quad (93)$$

La fraction de bulles permet de calculer la porosité globale du lit.

II.4.3 Porosité du lit

La première porosité qui doit être calculée est la porosité au minimum de fluidisation, elle est calculée d'après la relation semi empirique d'Ergun (Eq. (94)) :

$$Ar = \frac{1.75}{\epsilon_{mf}^3 \Phi_s} Re_{mf}^2 + \frac{150(1 - \epsilon_{mf})}{\epsilon_{mf}^3 \Phi_s^2} Re_{mf} \quad (94)$$

Dans le cadre la théorie à deux phases, la porosité de l'émulsion est considérée comme étant égale à la porosité au minimum de fluidisation :

$$\epsilon_{e,inerte} = \epsilon_{mf}$$

La porosité du lit ($\epsilon_{lit,inerte}$) peut être définie à partir de la porosité de l'émulsion et de la fraction de bulle d'après la théorie à deux phases (Eq.(95)).

$$\epsilon_{lit,inerte}(z) = \delta(z) + (1 - \delta(z))\epsilon_{e,inerte} \quad (95)$$

Les données hydrodynamiques étant caractérisées, le profil hydrodynamique du lit peut maintenant être modélisé en fonction de la position le long de sa hauteur. Cette modélisation est effectuée pour un lit d'olivine seule puis un lit contenant de la biomasse.

II.4.4 Mélange des solides

Dans le cas d'un lit d'olivine contenant de la biomasse, après les calculs effectués précédemment, il est nécessaire de calculer la répartition de biomasse au sein du lit. Le principe du modèle de Fotovat et al. est ici utilisé⁷⁵ même si les relations utilisées précédemment diffèrent de celles utilisées par Fotovat et al⁷⁵, avec des différences dans le choix des corrélations permettant de calculer les grandeurs hydrodynamiques (fraction de bulles, diamètre et vitesse des bulles, porosité du lit).

La Figure 86 schématise une cellule du lit fluidisé avec les flux entrant et sortant de cette cellule.

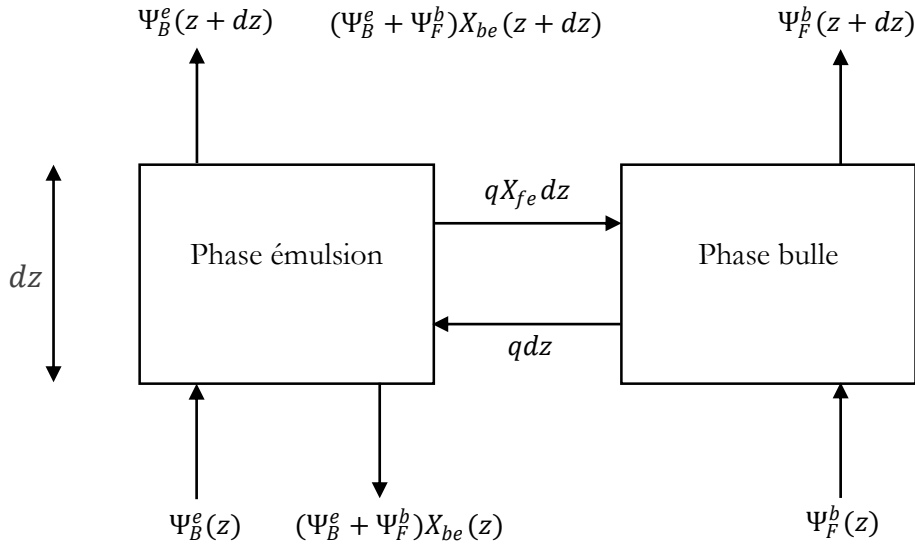


Figure 86 : cellules du modèle hydrodynamique de mélange des particules

Ce calcul se base sur l'intégration de l'équation différentielle (Eq. (96) qui décrit l'évolution de X_{be} , la fraction volumique de biomasse dans l'émulsion :

$$\frac{dX_{be}(z)}{dz} = \frac{q(z)X_{be}(z)}{\Psi_F^b + \Psi_B^e(z)} \quad (96)$$

L'intégration de cette équation nécessite le calcul de l'ensemble de ses termes.

Soit Ψ_F^b le flux volumique ascendant d'inerte dans la phase bulle.

$$\Psi_F^b(z) = U_b(z)\delta(z)F_w(1 - \epsilon_{e,inerte})A_{lit} \quad (97)$$

Ce flux d'inerte est calculé à partir de la vitesse des bulles (U_b), de la fraction de nuage derrière la bulle (F_w) et de la porosité de l'émulsion du lit d'inerte $\epsilon_{e,inerte}$.

La fraction de nuage des bulles est posée comme constante par Fotovat et al⁷⁵ (Eq.(98)) :

$$F_w = 0.185 \quad (98)$$

Soit Ψ_B^e le flux volumique de biomasse ascendant dans la phase émulsion :

$$\Psi_B^e = 0.2U_b(1 - \epsilon_{me})(1 - \delta)A_{lit}X_{be} \quad (99)$$

La méthode de calcul du coefficient 0.2 permettant de corrélérer le flux ascendant de biomasse à la vitesse des bulles n'est pas détaillée dans les travaux. Ce paramètre pourrait donc être utilisé comme paramètre ajustable.

Il reste à calculer ϵ_{me} la porosité de l'émulsion contenant la biomasse.

$$\epsilon_{me} = 1 - \frac{1 - \epsilon_b}{X_{be}} \text{ si } X_{be} > \frac{1 - \epsilon_b}{1 - \epsilon_{lit,inerte}} \text{ sinon } \epsilon_{me} = \epsilon_{lit,inerte} \quad (100)$$

La porosité mesurée ϵ_b d'un lit ne contenant que de la biomasse est une donnée d'entrée.

Enfin le dernier paramètre à calculer est le coefficient d'échange ($m^2.s^{-1}$) d'inerte entre la phase bulle et la phase émulsion :

$$q = K_w \delta (1 - \epsilon_{lit,inerte}) A_{lit} \quad (101)$$

Pour cela il est nécessaire de calculer le coefficient d'échange entre la phase bulle et la phase émulsion K_w (Eq.(102)) :

$$K_w = \frac{0.081}{2\epsilon_{mf}d_{bulle}} \quad (102)$$

Les données nécessaires pour la résolution de l'équation différentielle ont donc été calculées. Il manque uniquement les conditions initiales, soit X_{be0} la fraction de biomasse dans l'émulsion au-dessus du distributeur, qui est calculée à partir de la fraction massique moyenne (x_b) de bois dans le lit et de la vitesse de fluidisation⁷⁵ par la corrélation empirique (Eq. (103)) :

$$X_{be0} = 2x_b^{1.2}U^{1.6} \quad (103)$$

La fraction de biomasse dans le lit est considérée comme constante dans les cinquante premiers millimètres au-dessus du distributeur (Eq. (20)).

$$X_{be}(z) = X_{be0} \quad \forall z < 50mm \quad (104)$$

La fraction volumique de biomasse (X_b) peut être calculée à partir de la fraction volumique de biomasse dans l'émulsion (X_{be}) :

$$X_b = \frac{(1 - \delta)(1 - \epsilon_{me})X_{be}}{(1 - \delta)(1 - \epsilon_{me}) + F_w \delta (1 - \epsilon_{lit,inerte})} \quad (105)$$

Ainsi l'ensemble des calculs sont effectués pour caractériser le lit de sable et le lit de mélange sable/olivine.

II.5 Description de la méthode de calcul

Ce paragraphe a pour objectif de présenter très brièvement la méthode de calcul des paramètres hydrodynamiques.

Deux sous-modèles sont réalisés à partir des corrélations ci-dessus. Un sous-modèle nommé « hydro » permettant de calculer l'ensemble des données hydrodynamiques pour le lit d'olivine seule (paragraphe II.4.1, II.4.2, II.4.3). Le second sous-modèle « xbe » reprend l'ensemble des données calculées dans le paragraphe (II.4.4), excepté le calcul de X_b . Ce sous-modèle est utilisé pour le calcul de X_{be} .

La modélisation est fractionnée en différents sous-programmes permettant de calculer les différentes grandeurs hydrodynamiques. L'ensemble de ces sous-programmes sont utilisés par un programme principal. Les données d'entrées sont l'ensemble des informations nécessaires aux calculs(II.3).

Le programme principal permet de récupérer l'ensemble des données d'entrée. Il génère les cellules qui composent le lit. Chaque cellule a une épaisseur identique. Les températures et les pressions sont initialisées aux conditions expérimentales. A partir des caractéristiques de la biomasse, et du *ratio*ⁱ choisi compte tenu de l'application choisie de gazéification, le débit de gaz de fluidisation est calculé.

Par la suite, une boucle est mise en place pour calculer pour chaque cellule l'ensemble des grandeurs hydrodynamiques provenant du sous-modèle « hydro ». Dans cette boucle, une fonction est incrémentée permettant de calculer la masse d'olivine dans chaque tranche. Ainsi un bilan de masse peut être effectué à chaque boucle afin d'arrêter les calculs propres au lit dense lorsque l'ensemble de l'olivine a été « répartie » dans les tranches inférieures.

Lorsque l'ensemble de l'hydrodynamique est calculé pour le lit d'olivine, la répartition des particules de biomasse peut être calculée. Le calcul consiste en la résolution de l'équation différentielle contenue dans le sous-modèle « xbe ».

Le dernier point consiste à calculer à partir des données précédentes les informations pouvant être comparées aux données expérimentales. Le programme effectue un calcul pour un nombre de cellules beaucoup plus important que le nombre de tranches analysées expérimentalement. Pour que la comparaison puisse être faite, une moyenne sur plusieurs tranches de calcul est effectuée à

ⁱ *equivalent ratio*=ER=débit d'air de l'essai/débit d'air nécessaire pour la combustion ; pour de la gazéification ER≈0.3

partir des données de la modélisation. Ces données sont, pour chaque tranche de mesure la fraction de bois, la porosité de la tranche et la pression au niveau du capteur.

III. Comparaison calculs-expériences

Dans cette partie une comparaison rapide sera effectuée entre les résultats expérimentaux obtenus sur la maquette froide et le modèle mis en place sous MatLab[®]. Les corrélations du modèle proviennent de la littérature, sans aucun calage de paramètre pour ajuster le modèle aux résultats expérimentaux. Il est cependant important de noter que la majorité de ces corrélations proviennent de calages proposés par leurs différents auteurs. Les données comparées seront la porosité et la pression dans le réacteur en fonction de la hauteur pour le cas de l'olivine seule. Pour le cas de l'olivine mélangée au bois, une distribution des particules de bois sera présentée.

III.1 Fluidisation de l'olivine

Deux types d'olivines ont été utilisés et pour chacune des olivines, deux vitesses ont été étudiées. La Figure 87 présente les résultats du modèle pour le profil axial de pression. Cette figure montre que la pression est correctement modélisée. Dans l'ensemble des cas, la pression dans le bas du lit correspond bien à la masse d'olivine présente dans le lit.

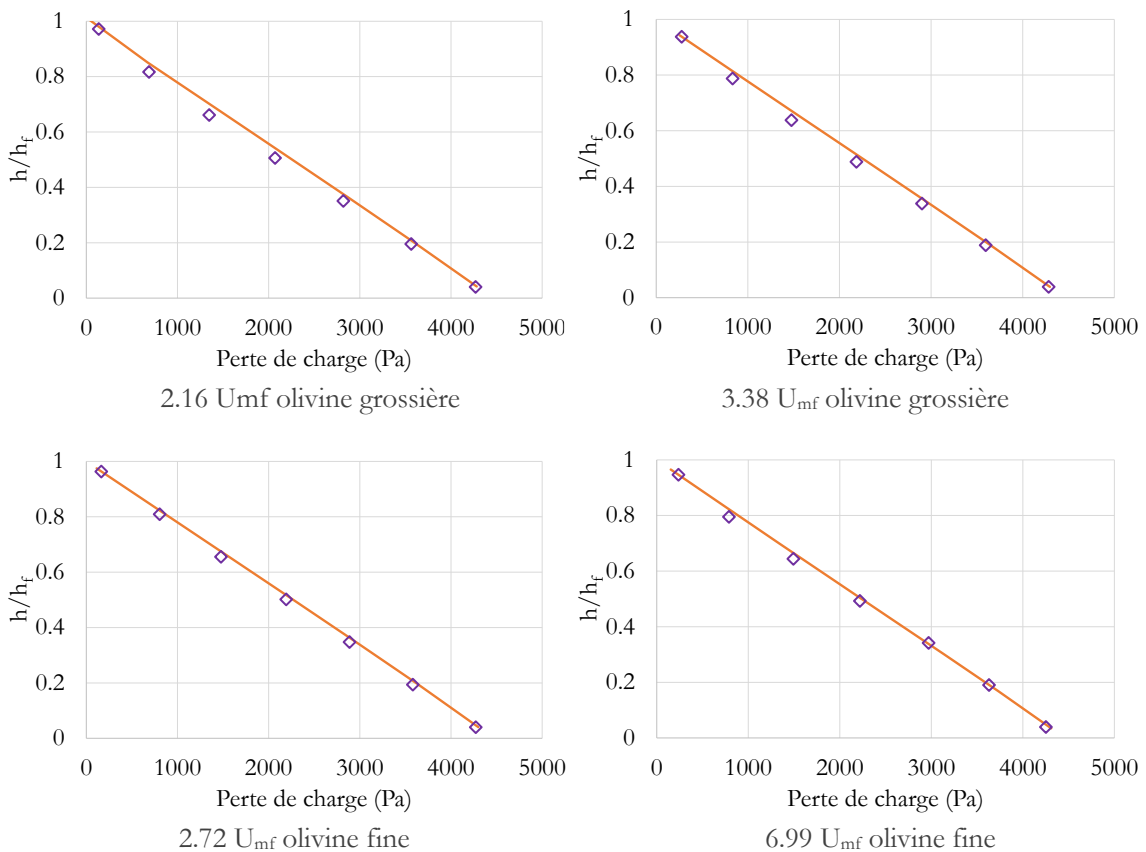


Figure 87 : pression expérimentale et modélisée pour la maquette froide (— modèle, \diamond expérience) pour les olivines grossière et fine

Les résultats pour les porosités des différents essais sont présentés en Figure 88. Pour l'ensemble des essais, on observe une différence entre les résultats expérimentaux et les résultats de modélisation. Les corrélations utilisées pour la modélisation ne sont pas capables de représenter l'augmentation importante de la porosité dans le haut du lit. Pour les trois cas où la vitesse est inférieure à $3.5 U_{mf}$ (A,B,C)), la porosité moyenne prédite par le modèle est correcte (Tableau 18). A contrario pour l'essai à plus haute vitesse, la porosité moyenne est surestimée.

Tableau 18 : comparaison des porosités moyennes du lit calculées par le modèle avec celles déduites des expériences

essai	$2.72 U_{mf}$ fine	$6.99 U_{mf}$ fine	$3.38 U_{mf}$ grossière	$2.16 U_{mf}$ grossière
expérience	0.564	0.57	0.575	0.561
modèle	0.561	0.62	0.576	0.546

Pour les deux essais à faible vitesse, le profil de porosité prédit pour le bas du lit est correct. En revanche dans le haut du lit, l'estimation de la porosité est trop faible.

Pour l'essai (B)) la tendance du modèle est correcte pour le bas du lit, mais les valeurs de porosité sont trop élevées. A contrario pour le haut du lit, la tendance n'est pas respectée et la valeur est sous-estimée.

Pour le cas (D)), la modélisation prédit une décroissance de la porosité entre 0 et $0.4 h/h_f$ et une augmentation très légère de la porosité entre 0.4 et $1 h/h_f$. Cette évolution de porosité se retrouve également dans les essais expérimentaux. En revanche les variations de la porosité sont beaucoup plus prononcées dans les mesures. Le modèle prédit une porosité qui varie entre 0.66 et 0.62 alors qu'expérimentalement la porosité obtenue varie entre 0.64 et 0.52.

Il est intéressant de noter que la porosité dans le haut du lit pour l'essai à haute vitesse a tendance à augmenter. Ce phénomène n'est généralement pas prédit avec les modèles. Cette évolution de la porosité provient du fait que la corrélation de Wallis et al¹⁴⁴ a été choisi et cette corrélation entraîne une diminution de la vitesse des bulles lorsque le diamètre des bulles devient trop grand vis-à-vis de la taille (largeur ou diamètre) du réacteur.

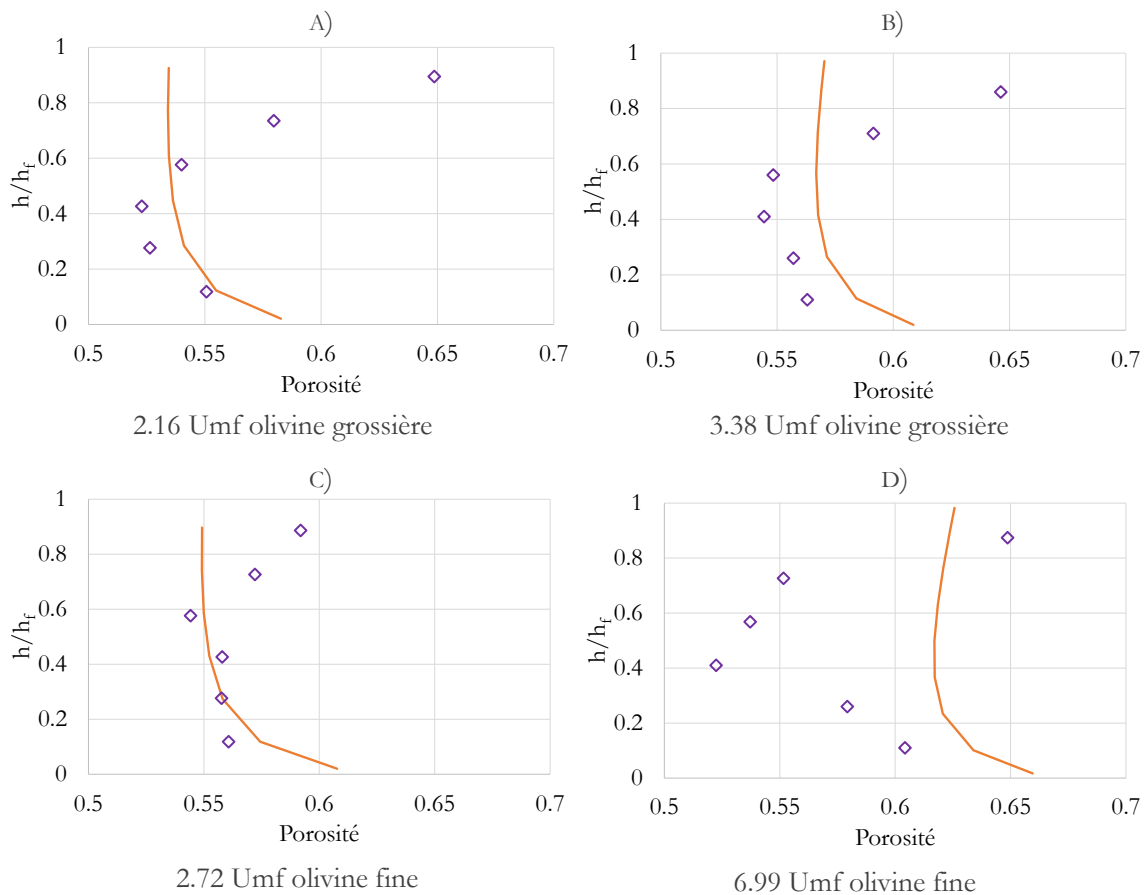


Figure 88 : profil axial de porosité déduit des mesures en maquette froide et calculé par le modèle (— modèle, \diamond expérience)

La suite des comparaisons entre les résultats expérimentaux et ceux du modèle concernent des mélanges biomasse/olivine.

III.2 Fluidisation de mélanges biomasse-olivine

Les résultats présentés en (Figure 89) correspondent au modèle proposé par Fotovat et al⁷⁵. Les résultats sont présentés sous forme de volume par tranche. Ce type de représentation est dépendant de la hauteur de la tranche. Dans les cas présentés (B), C), D), E)), la dernière tranche a une épaisseur plus faible que les autres tranches, ceci explique la diminution brusque du volume de bois prédit par le modèle dans la tranche supérieure. Les hauteurs des tranches sont fixées, la dernière exceptée qui est calculée par le modèle.

Pour les cas (B), C), D)) la tendance proposée par le modèle est en accord avec les résultats expérimentaux. Le modèle prédit bien une augmentation de la proportion de biomasse avec la hauteur.

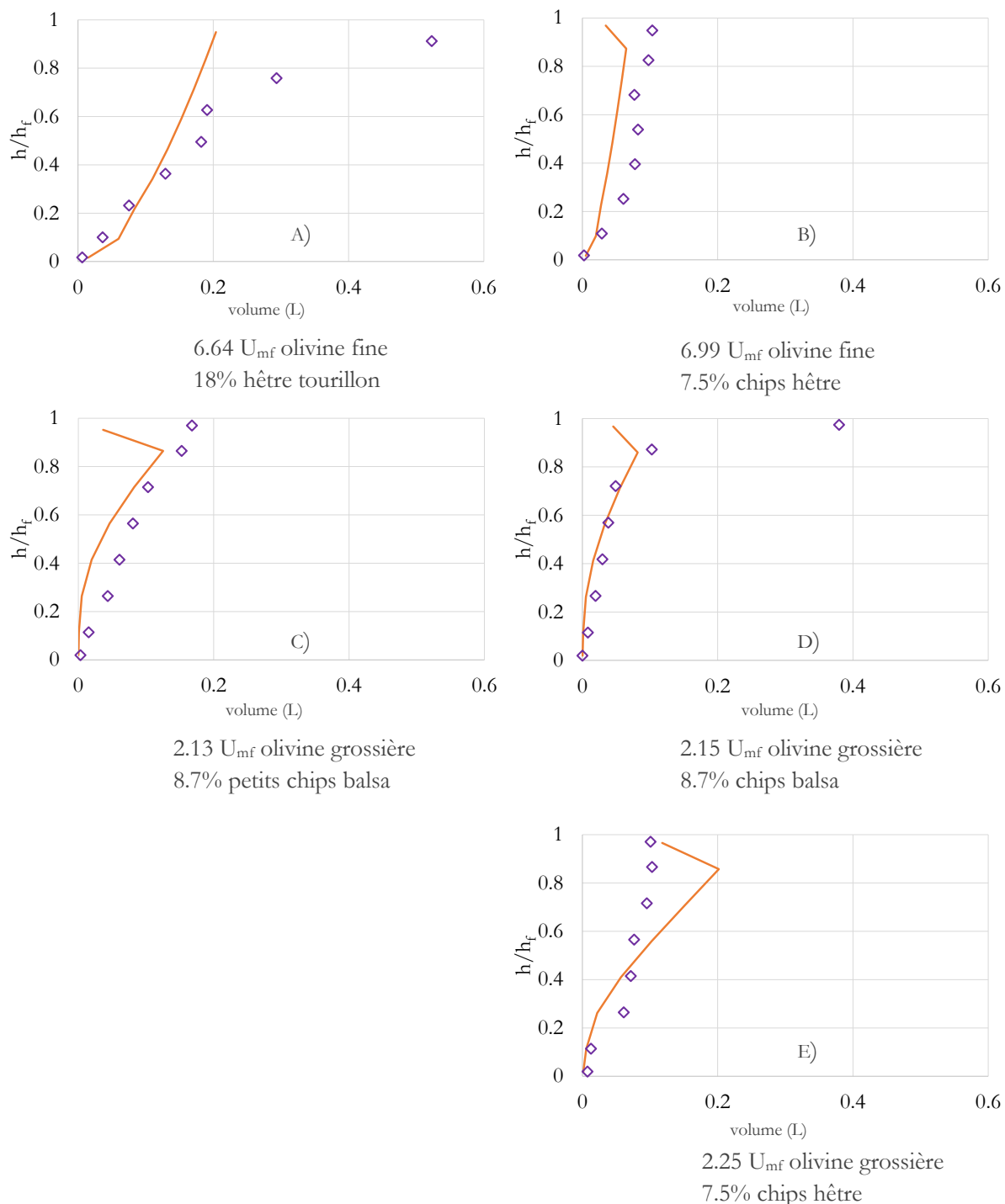


Figure 89 : comparaison de la répartition de biomasse mesurée et calculée par le modèle d'après Fotovat et al. (— modèle, \diamond expérience)

Le modèle de Fotovat et al⁷⁵ prédit bien l'augmentation de la fraction de bois avec la hauteur, cependant il ne permet pas de garantir que le volume de bois distribué dans le lit correspond au volume de bois réellement présent. En effet prenons le cas E), l'estimation du modèle génère une quantité de biomasse plus importante que la quantité réelle de biomasse. A l'inverse, dans le cas D), le modèle sous-estime le volume total de biomasse.

Afin de prendre en compte cette observation, le modèle de Fotovat a été modifié pour garantir le bilan de masse sur le bois. Le modèle de Fotovat et al⁷⁵ est utilisé pour calculer la répartition de biomasse dans les tranches de 0 à 7 ce qui permet de générer pour chaque tranche « i » un volume de bois $V_{b,i}$. Ensuite le volume de bois « manquant » dans la répartition donnée par le modèle est déterminé par différence entre le volume total injecté et le volume total réparti par le modèle dans les tranches de 0 à 6. Le résultat de cette différence donne le volume de bois de la septième tranche :

$$V_{b,7} = V_{b,tot} - \sum_{i=0}^6 V_{b,i} \quad (106)$$

Ce choix de modèle provient des observations expérimentales. En effet dans la majorité des cas, on observe une différence de l'évolution du volume de bois entre la tranche supérieure et le reste du lit. On observe une augmentation plus ou moins linéaire (pointillés verts) dans le lit et une forte augmentation du volume de bois dans la tranche supérieure (pointillés orange). Ce choix de modélisation est fortement dépendant de l'épaisseur de chacune des tranches du lit. Dans notre modèle la hauteur de la dernière tranche n'est pas constante, elle dépend de la vitesse de fluidisation. Si cette dernière tranche est très fine, dans ce cas le modèle sous-estimera la biomasse dans la tranche alors qu'il y aura en réalité l'ensemble des particules qui « flotte » à la surface. A contrario si la tranche supérieure est très épaisse, le modèle prédira une quantité de biomasse plus importante qui sera probablement plus en accord avec les expériences.

Les résultats suivants (Figure 90) correspondent au modèle de Fotovat et al⁷⁵ modifié pour prendre en compte cette observation.

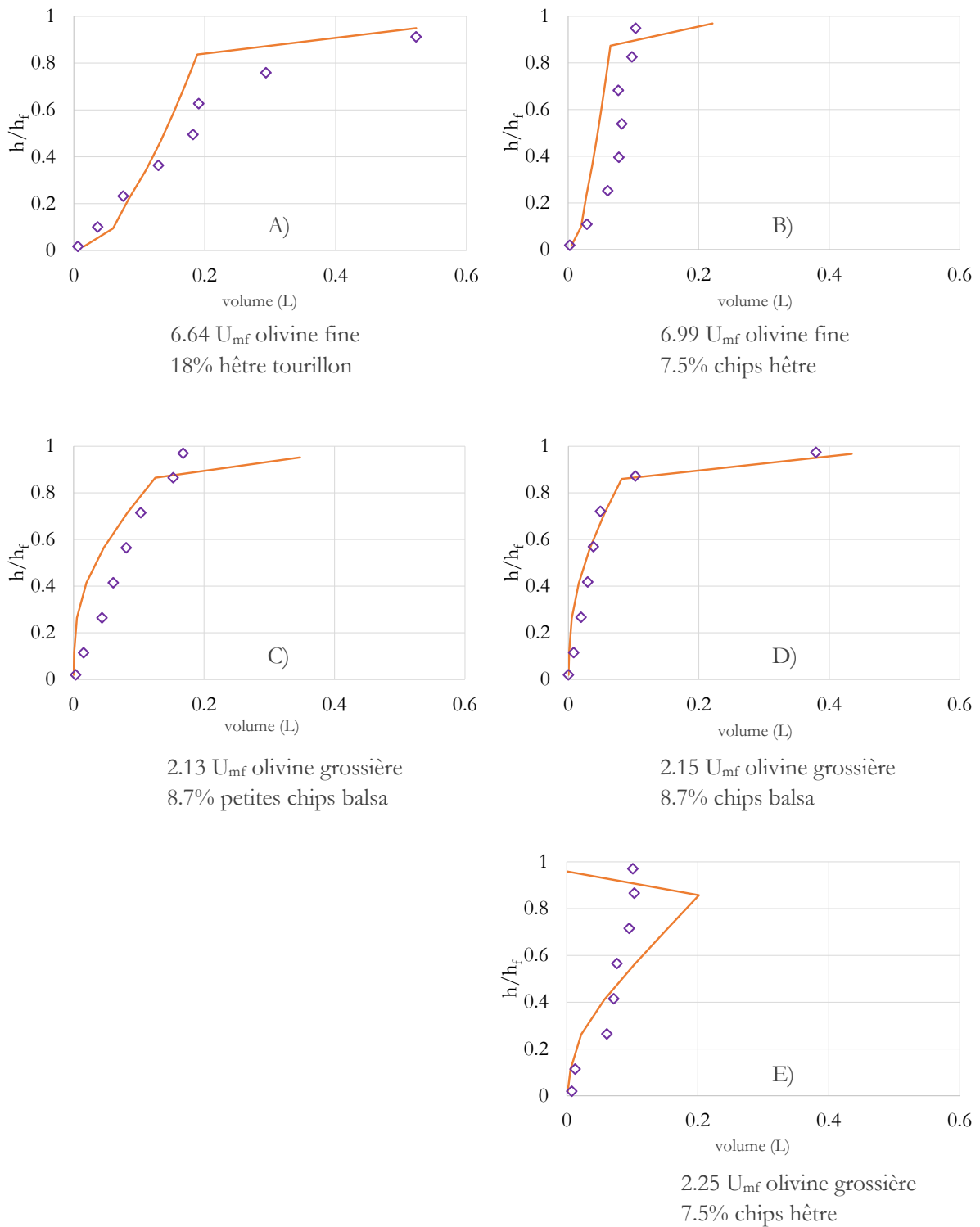


Figure 90 : comparaison du profil axial de répartition de la biomasse mesurée et calculée par le modèle modifié d'après Fotovat et al. (— modèle, \diamond expérience)

Dans ce cas, les résultats du modèle sont plus en accord avec nos résultats expérimentaux. Cette modification permet d'obtenir des répartitions de biomasse plus réalistes. Le modèle est correct pour les essais à faible vitesse contenant des particules de balsa. Il permet également de générer des profils acceptables pour les essais contenant du hêtre à vitesse plus élevée ($6.5 U_{mf}$). Ce modèle sera utilisé pour la suite des travaux pour générer un profil de répartition de bois et de charbon (Voir Chapitre IV).

IV. Synthèse

Les travaux réalisés dans cette thèse ont permis de mesurer des profils de répartition des particules de biomasse au sein d'un lit fluidisé pour différentes conditions expérimentales (vitesse, type olivine, masse de lit, type et quantité de biomasse). Dans l'ensemble des cas, la biomasse se retrouve répartie dans l'intégralité du lit, mais le volume de biomasse dans chaque tranche évolue très sensiblement avec la hauteur dans le lit : dans la tranche à proximité du distributeur la présence de biomasse est anecdotique, alors que pour les autres tranches une quantité significative de biomasse est présente. Deux comportements distincts semblent être présents dans le lit, une distribution de la biomasse dans l'ensemble des tranches sauf dans la tranche supérieure. Et une accumulation de la biomasse restant « flottant » dans la tranche supérieure.

Afin de prendre en compte ce phénomène, le modèle de Fotovat et al⁷⁵ a été modifié pour tenir compte de cette accumulation de biomasse dans le haut du lit. La modification permet également de garantir le bilan de masse de biomasse. Ce choix de modification du modèle peut être critiqué notamment sur le fait que le profil sera dépendant de l'épaisseur des tranches utilisées pour représenter le lit. Dans notre modèle, l'ensemble des tranches composant le lit ont une dimension similaire, excepté la dernière tranche ; cette tranche a une hauteur qui varie en fonction de la vitesse de fluidisation

Cette estimation de la répartition de la biomasse dans le lit sera utilisée pour la modélisation globale développée dans le chapitre suivant.

Chapitre IV : Modélisation globale

La modélisation en génie des procédés se caractérise par une approche pluridisciplinaire ainsi que par sa flexibilité et son pragmatisme. Le degré de complexité est ainsi adapté à l'objectif poursuivi et à la qualité des prédictions attendues et à la précision des données disponibles.

Dans ce travail intégré au projet GAMECO, un objectif est d'associer, dans le cadre de la modélisation, les données expérimentales obtenues relatives, d'une part au comportement thermochimique des goudrons^k et, d'autre part, à l'écoulement gaz-solide^l. L'approche de modélisation unidimensionnelle et en régime stationnaire vise à caractériser, pour des données d'entrée variables, les profils axiaux de composition dans le réacteur de gazéification afin d'évaluer la qualité du syngaz produit.

Le modèle global de gazéification de la biomasse à l'air en lit fluidisé a été développé avec le logiciel de simulation de procédés Aspen Plus[®] (version 8.6). Plusieurs solutions logicielles étaient envisageables pour ce modèle (MatLab[®], Fortran[®], Aspen Plus[®] ...). Le choix s'est porté sur Aspen Plus[®] car le réacteur de gazéification n'est qu'un élément de l'ensemble des opérations unitaires de l'unité de gazéification. Il est donc particulièrement utile de constituer un modèle pouvant être par la suite intégré dans un modèle global du procédé de gazéification^{159,180}. En outre, Aspen Plus[®] intègre une base de données des propriétés des corps purs et des mélanges, une bibliothèque d'opérations unitaires et de méthodes numériques ainsi qu'un environnement de simulation associé à une interface utilisateur.

Aspen Plus[®] ne permettant pas de modéliser la ségrégation des particules de biomasse et l'ensemble des réactions de pyrolyse prévues dans le cadre de cette modélisation, MatLab[®] a été utilisé de façon complémentaire pour effectuer les modélisations de la ségrégation et de la pyrolyse couplée au séchage de la biomasse.

^k En termes de vitesses et de produits de réaction

^l Lois de mélange et de ségrégation

I. Hypothèses

Les principales hypothèses de modélisation sont listées ci-dessous.

I.1 Ecoulement gaz-solide

- La hauteur du lit fluidisé est ajustée en modulant la porosité au minimum de fluidisation afin d'obtenir une hauteur de lit en fluidisation équivalente aux mesures expérimentales. Ce paramètre doit être modifié car la porosité calculée par défaut par le modèle est très surestimée.
- Les solides, charbon et olivine, sont parfaitement mélangés et répartis dans l'ensemble du lit dense^m, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de profil de composition du solide en fonction de la hauteur dans le lit. Aspen Plus[®] ne permet pas de prendre en compte une ségrégation des particules solides, et cette hypothèse étant par ailleurs raisonnable, l'olivine et le charbon seront considérés comme parfaitement mélangés.

I.2 Ségrégation

- La biomasse sèche est représentée par un mélange de cellulose, d'hémicellulose et de lignines formant par pyrolyse du charbon et des produits volatiles.
- Les produits volatils sont injectés dans le réacteur selon le profil de répartition de biomasse obtenu par le modèle d'écoulement gaz-solide.

I.3 Schémas cinétiques

- La description des réactions chimiques est effectuée à l'aide de schémas cinétiques basés sur des lois de vitesse obéissant à la loi d'Arrhenius.
- La cinétique de décomposition de la biomasse (caractérisée par sa composition élémentaire et biochimique) est principalement dépendante des vitesses intrinsèques des réactions des composés initiaux et intermédiaires, mais aussi du transfert thermique au sein de la particuleⁿ. Le modèle de pyrolyse basé sur les travaux de Corbetta et al.¹⁵⁸ est détaillé dans

^m cette hypothèse découle du modèle d'opération unitaire d'Aspen Plus[®].

ⁿ décrit par un modèle 1D en géométrie sphérique, cylindrique ou plane

Authier et al.¹⁵⁴ Ce choix de modélisation apporte de la flexibilité dans le modèle applicable à des biomasses différentes en composition et en forme.

- Les réactions en phase gaz se font en régime chimique, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de limitation due aux phénomènes de transport. Les vitesses de réaction des gaz légers sont issues de Wang et al.¹⁶⁸ tandis que les cinétiques radicalaires permettant la décomposition des produits primaire de pyrolyse proviennent des travaux de Ranzi et al¹⁸¹.
- Les réactions d'oxydation et de vapo-gazéification du charbon sont également considérées en régime chimique¹⁵⁵.

I.4 Bilan de matière et d'énergie

- Les températures sont imposées dans le réacteur. La température du lit dense est constante alors que la température du freeboard décroît avec la hauteur. Cette hypothèse est justifiée par le fait que, sur la maquette chaude, les pertes à travers l'enveloppe du système n'ont pas été mesurées. Les températures imposées proviennent des mesures locales effectuées dans la maquette chaude. Pour les modélisations ultérieures de l'unité-pilote d'Epinal, le réacteur pourra être considéré comme adiabatique compte-tenu de sa conception et les bilans énergétiques seront donc effectués pour calculer la température homogène du lit dense d'une part, et le profil de température du freeboard d'autre part.
- Ce modèle est basé sur la conservation globale de la matière, mais aussi sur celle de la conservation des atomes de carbone, hydrogène et oxygène.

I.5 Particules solides

- Le matériau de lit est caractérisé par sa granulométrie et par sa densité. Les phénomènes d'évolution de la structure (attrition, fragmentation, agglomération, ...) ne sont pas pris en compte.
- Les particules de charbon sont consommées selon un modèle de cœur rétrécissant, c'est-à-dire que leur volume diminue mais que leur densité reste constante. Le nombre de particules réactives est considéré constant car l'alimentation en charbon est constante et continue. La granulométrie du charbon est fixée à un diamètre moyen de 500 μm , suivant une répartition normale avec les mêmes classes granulométriques que celles utilisées pour l'olivine.

Le lit fluidisé est divisé en deux zones, une zone lit dense et une zone freeboard. La zone lit dense est caractérisée par une forte concentration en solides alors que la zone freeboard est la zone dans laquelle la concentration en solide décroît rapidement avec la hauteur. En première approche, le lit dense est modélisé comme un lit bouillonnant d'après les travaux de Werther et Wein¹⁸². Le freeboard est modélisé selon l'approche proposée par Kunii et Levenspiel³³. Ces modèles systémiques intégrés dans Aspen Plus[®] sont couplés à des corrélations de la littérature choisies par l'utilisateur. Ces dernières permettent uniquement de décrire la concentration du solide dans le freeboard et de calculer la hauteur de la zone de désengagement. Dans notre cas, la relation proposée par George et Grace¹⁸³ est utilisée pour calculer la hauteur de la zone de désengagement et la corrélation de Geldart et al¹⁸⁴ pour estimer le coefficient d'élutriation.

Le lit est divisé en cellules (définies par l'utilisateur) selon la hauteur, contenant des quantités différentes de solides. Chaque cellule est considérée comme un réacteur parfaitement agité (RPA) pour le gaz, cette succession de RPA étant similaire à un « écoulement piston dispersif » pour la phase gaz (Figure 91).

Pour la résolution des bilans de matière, chaque cellule est définie comme étant un mélange parfait du gaz et des solides. Les coefficients de transferts entre les phases bulle et émulsion ne sont donc pas considérés. Vis-à-vis de la représentation des réactions contrôlées par les phénomènes de transfert et de transport, les paramètres cinétiques utilisés seraient ceux de réactions apparentes. Dans le cas où les limitations dues au transfert et au transport sont négligeables, les paramètres cinétiques sont ceux des réactions intrinsèques.

La Figure 92 représente le modèle d'agencement sous forme Aspen Plus[®]. Le lit dense est représenté dans le bloc « lit fluidisé (LF) » d'Aspen Plus[®]. La hauteur du lit fluidisé dans le bloc LF est fixée à une valeur proche de la hauteur expérimentale du lit dense. Le freeboard est modélisé par un réacteur piston externe au bloc LF. Le flux de charbon est calculé à partir du flux de biomasse et du rendement en charbon d'après le modèle de pyrolyse.

II.2 Description de la ségrégation

Dans le bloc LF, les solides (charbon + olivine) sont considérés comme parfaitement mélangés sur toute la hauteur du lit. Il n'est pas possible de représenter la ségrégation des particules solides dans le réacteur. En revanche, ce bloc permet de créer un profil d'injection de gaz le long du réacteur.

La biomasse est représentée par ses produits de pyrolyse, c'est-à-dire du charbon et des produits volatils.

L'objectif du modèle étant de prendre en compte l'impact de la ségrégation des particules de biomasse sur la composition du gaz, les produits gazeux constituant le flux principal de produits de pyrolyse sont injectés dans le réacteur à différentes hauteurs^o selon la répartition provenant des expériences de ségrégation.

Le charbon est considéré comme parfaitement mélangé et réparti sur la hauteur du lit.

^o Huit points d'injection ont été définis dans le modèle.

II.3 Transferts de matière et d'énergie

La comparaison des résultats du modèle est réalisée avec les résultats expérimentaux de référence obtenus sur la maquette chaude du LRGP. Cette maquette instrumentée n'est pas parfaitement adiabatique et les pertes thermiques ne sont pas connues. Afin de pouvoir comparer les données, il a été choisi d'imposer le profil de température dans le modèle comme donnée d'entrée.

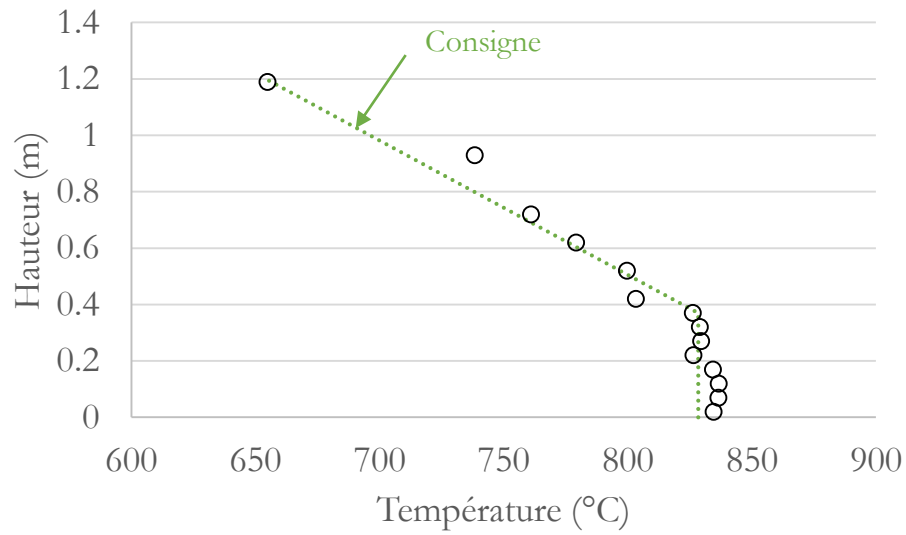


Figure 93 : consigne et mesures de température

II.4 Schémas cinétiques

Les réactions chimiques sont divisées en deux groupes : les réactions de pyrolyse de la biomasse d'une part ; et les réactions de conversion des produits de pyrolyse d'autre part.

Comme expliqué précédemment, la pyrolyse est effectuée sous MatLab[®] alors que les réactions de conversion des produits de pyrolyse sont simulées sous Aspen Plus[®].

II.4.1 Pyrolyse de la biomasse MatLab[®]

La biomasse utilisée est une biomasse humide. La première étape de transformation correspond au séchage de la particule par élimination de l'eau libre et de l'eau liée. Cette étape est représentée par une pseudo-réaction (Eq. (121)).

Réaction	Vitesse de réaction ($kg \cdot s^{-1}$)	Réf	N°
$H_2O_{liq} \rightarrow H_2O_{vap}$	$r_{(121)} = 5.13 \cdot 10^{10} e^{\frac{-88000}{RT}} m_{H_2O}$	185	(107)

Le bois sec est caractérisé comme un mélange de cellulose (CELL : $C_6H_{10}O_5$), d'hémicellulose (HCE : $C_5H_8O_4$) et de trois types de lignine (LIG-C : $C_{15}H_{14}O_4$ + LIG-H : $C_{22}H_{28}O_9$ + LIG-O : $C_{20}H_{22}O_{10}$) selon l'approche développée depuis 2008 à l'Ecole polytechnique de Milan dans l'équipe du Pr. Ranzi. Cette pseudo-composition bio-chimique peut être calculée à partir de la composition élémentaire de la biomasse selon la méthode indiquée par Calonacci et al¹⁸⁶.

Le schéma cinétique de pyrolyse utilisé est celui établi en 2014 par Corbetta et al¹⁵⁸ (voir annexe 4). Le schéma cinétique de pyrolyse est basé sur trente-neuf composés intervenant dans vingt-cinq réactions et produisant vingt espèces gazeuses. Ce schéma cinétique détaillé a été développé afin de prédire la composition des produits de pyrolyse en assurant la conservation de la matière en éléments carbone, hydrogène et oxygène ainsi que la conservation de l'énergie. L'approche constitue un progrès sensible dans la mesure où les modèles de pyrolyse restaient souvent approximatifs en termes de chaleur de réaction et de composition détaillée des produits. Le modèle prédit que, dans les conditions d'un lit fluidisé de gazéification, les seuls produits de la pyrolyse de biomasse sont les vingt espèces gazeuses et du charbon, considéré comme du carbone pur et des cendres^p.

Les produits injectés dans le modèle Aspen Plus[®] sont issus de la décomposition thermique des vingt produits gazeux formés par la pyrolyse du solide. Cette décomposition primaire est obtenue

^p il n'y a plus de composés intermédiaires dans le solide après quelques dizaines de secondes de pyrolyse

à l'aide du logiciel Chemkin IV en utilisant les cinétiques radicalaires proposées par Ranzi¹⁸¹. L'hypothèse retenue est que ces réactions ont lieu sans oxygène. En effet, nous avons déterminé que le temps de craquage de ces composés est court (moins de 100 ms) à la température du réacteur de gazéification (typiquement supérieure à 800°C). Les réactions ont donc préférentiellement lieu au sein des pores de la particule ou à proximité immédiate de cette dernière en l'absence d'oxygène. Le gaz formé par le craquage thermique primaire contient les onze espèces suivantes : H₂, H₂O, CO₂, CO, CH₄, C₂H₄, C₂H₂, C₂H₆, C₆H₆, C₇H₈, C₁₀H₈. La fraction massique de chacune de ces espèces est déterminée pour un temps caractéristique de craquage de 90 ms.

II.4.2 Réactions au sein du bloc Aspen Plus®

Le charbon ainsi que les onze espèces gazeuses issues de la pyrolyse et du craquage primaire sont injectées dans le module LF sous Aspen plus®. Les réactions subies par ces espèces sont détaillées ci-après. Deux types de réactions ont lieu dans le réacteur : des réactions hétérogènes (Tableau 19), c'est-à-dire des réactions entraînant la consommation du charbon, et des réactions homogènes (Tableau 20), qui sont l'ensemble des réactions mettant en jeu les composés gazeux. Dans ce cas, les réactions prennent bien en compte la présence d'oxygène dans le réacteur puisque les onze espèces gazeuses sont considérées comme mélangées dans le gaz.

Tableau 19 : cinétiques des réactions hétérogènes

Réaction	Vitesse de réaction ($kmol\ m^3\ s^{-1}$)	Réf	N°
$C + O_2 \rightarrow CO_2$	$r_{(108)} = 1.2\ 10^{10} e^{-\frac{135234}{RT}} C_C C_{O_2}$	155	(108)
$C + 0.5\ O_2 \rightarrow CO$	$r_{(121)} = 2.5\ 10^{11} e^{-\frac{159936}{RT}} C_C C_{O_2}^{0.78}$	155	(109)
$C + H_2O \rightarrow CO + H_2$	$r_{(121)} = 2.5\ 10^9 e^{-\frac{217714}{RT}} C_{H_2O}^{0.7} C_C^{0.5}$	155	(110)

Tableau 20 : cinétiques des réactions homogènes

Réaction	Vitesse de réaction ($kmol\ m^3\ s^{-1}$)	Réf	N°
$C_{10}H_8 \rightarrow 9C + 1/6C_6H_6 + 7/2H_2$	$r_{(111)} = 3.4\ 10^{14} e^{-\frac{350000}{RT}} C_{C_{10}H_8}^{1.6} C_{H_2}^{-0.5}$	162	(111)
$C_6H_6 + H_2O \rightarrow 3C + 2CH_4 + CO$	$r_{(112)} = 4\ 10^{16} e^{-\frac{443000}{RT}} C_{C_6H_6}^{1.3} C_{H_2}^{-0.4} C_{H_2O}^{0.2}$	162	(112)
$C_7H_8 + H_2 \rightarrow C_6H_6 + CH_4$	$r_{(113)} = 1.04\ 10^{12} e^{-\frac{247000}{RT}} C_{C_7H_8} C_{H_2}^{0.5}$	162	(113)
$CO_2 \rightarrow CO + 0.5\ O_2$	$r_{(114)} = 1.1\ 10^{13} T^{-0.97} e^{-\frac{328000}{RT}} C_{CO_2} C_{H_2O}^{0.5} C_{O_2}^{-0.25}$	166	(114)
$CO + 0.5\ O_2 \rightarrow CO_2$	$r_{(115)} = 2.24\ 10^6 e^{-\frac{42000}{RT}} C_{O_2}^{0.25} C_{CO} C_{H_2O}^{0.5}$	166	(115)
$CO_2 + H_2 \rightarrow CO + H_2O$	$r_{(116)} = 6.71\ 10^{10} e^{-\frac{114000}{RT}} C_{CO_2} C_{H_2}$	168	(116)
$CH_4 + 1.5O_2 \rightarrow CO + 2H_2O$	$r_{(117)} = 5.03\ 10^{11} e^{-\frac{200000}{RT}} C_{CH_4}^{0.7} C_{O_2}^{0.8}$	169	(117)
$H_2O \rightarrow 0.5O_2 + H_2$	$r_{(118)} = 2.51\ 10^{14} e^{-\frac{398000}{RT}} C_{H_2O}$	167	(118)
$H_2 + 0.5O_2 \rightarrow H_2O$	$r_{(119)} = 5.69\ 10^{11} e^{-\frac{146000}{RT}} C_{O_2}^{0.5} C_{H_2}$	168	(119)
$CH_4 + H_2O \rightarrow CO + 3H_2$	$r_{(120)} = 3\ 10^8 e^{-\frac{125000}{RT}} C_{CH_4} C_{H_2O}$	169	(120)
$CO + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2$	$r_{(121)} = 2.75\ 10^9 e^{-\frac{84000}{RT}} C_{H_2O} C_{CO}$	187	(121)

L'ensemble de ces réactions permet de représenter les principaux phénomènes chimiques présents dans un réacteur de gazéification de biomasse.

Les réactions mettant en jeu les « C₂ » ne sont pas prises en compte dans le modèle.

Le paragraphe suivant permet de résumer l'ensemble des données d'entrée nécessaires au modèle et l'ensemble des données de sortie.

III. Données d'entrée et de sortie

III.1 Données d'entrée

Le modèle global nécessite l'utilisation de deux sous-modèles aux données d'entrée différentes. La présentation des données d'entrée est faite pour chaque partie du modèle.

Pour le modèle de séchage et pyrolyse (MatLab[®]) :

- données de la biomasse
 - o forme (sphérique, cylindrique ou plaquette semi-infinie) et dimension caractéristique (diamètre ou épaisseur)
 - o composition élémentaire « CHO » sur base sèche et sans cendres
 - o teneur en cendres sur base sèche
 - o teneur en eau sur base humide
 - o masse volumique d'une particule de biomasse sèche
- conditions opératoires
 - o température initiale de la biomasse et température du lit fluidisé
 - o coefficient de transfert de chaleur externe entre le lit fluidisé et la surface de la biomasse
 - o temps de séjour de la biomasse dans le lit fluidisé

Pour le modèle de ségrégation (MatLab[®]) voir chapitre III.II.2.

Pour le modèle global de gazéification (Aspen Plus[®]) :

- géométrie du réacteur
 - o hauteur et diamètre de lit dense
 - o hauteur et diamètre du freeboard
 - o type de distributeurs et caractéristiques (nombre et diamètre des orifices, perte de charge)
- caractéristiques des solides inertes
 - o type dans la classification de Geldart
 - o granulométrie
 - o U_{mf}
 - o porosité au minimum de fluidisation
- conditions opératoires
 - o masse de lit
 - o profil de température dans le lit et le freeboard

- données issues des modèles de pyrolyse et ségrégation
 - débit massique de charbon
 - débit massique, composition massique et points d'injection du gaz de pyrolyse

A partir de ces informations, les calculs peuvent être réalisés. Ceux-ci nous conduisent aux données de sortie ci-dessous.

III.2 Données de sortie

Les données de sortie générées sont celles utilisées dans la suite de l'étude pour la comparaison entre le modèle et l'expérience. Deux catégories de données de sorties sont produites, des données concernant l'hydrodynamique du lit et des données concernant la composition du gaz dans le réacteur.

- données hydrodynamiques
 - profil de perte de charge du lit
 - profil de porosité
 - hauteur du lit dense
- données de composition du gaz
 - composition du syngaz en sortie du réacteur
 - gaz permanents
 - pouvoir calorifique du gaz
 - concentration en goudrons aromatiques
 - composition du gaz suivant la hauteur

IV. Comparaison des résultats du modèle aux résultats expérimentaux

Ce paragraphe permet de mettre en avant la comparaison des résultats avec les données expérimentales. Plusieurs simulations ont été effectuées avec différents objectifs. Dans un premier temps, des lits d'olivine seule à température ambiante puis à chaud ont été modélisés pour comparer les résultats hydrodynamiques proposés par Aspen Plus[®] aux données expérimentales. Dans un second temps, des simulations d'expériences à chaud avec la prise en compte de la présence de biomasse ont été effectuées.

IV.1 Simulation de la maquette froide

Les données mesurées sur la maquette froide sont les hauteurs du lit (au repos et fluidisé), les pertes de charges moyennes de l'essai et les porosités en fonction de la hauteur.

Pour ces essais les résultats utilisés proviennent d'un lit composé uniquement d'olivine.

Quatre cas ont été étudiés. Pour l'ensemble des essais, la masse de lit est de 20.9 kg. En revanche le type d'olivine en termes de granulométrie, et la vitesse de fluidisation diffèrent.

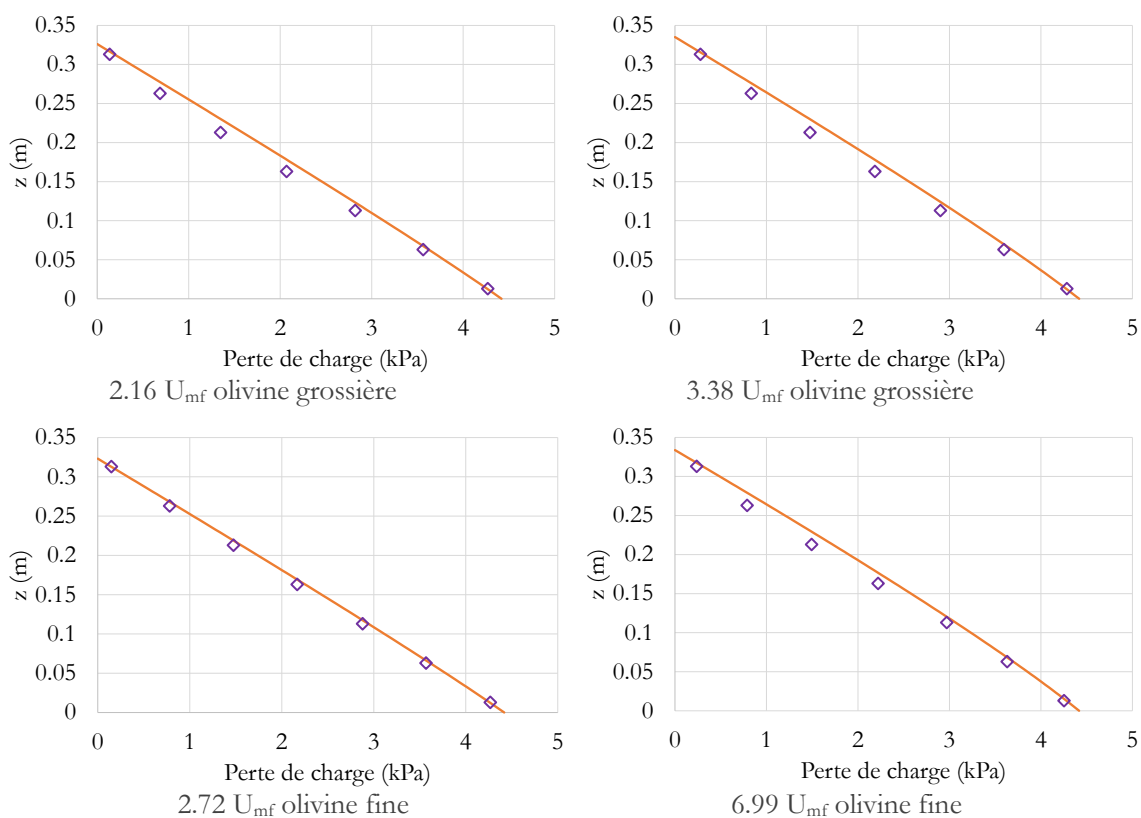


Figure 94 : profil de pression expérimental et modélisé pour la maquette froide (— modèle, \diamond expérience)

La Figure 94 présente les résultats des expériences et des calculs pour le cas de la maquette froide. Ces résultats montrent que, pour l'ensemble de ces cas la pression est correctement représentée. Les pressions modélisées dans le haut et dans le bas du lit sont correctes, en revanche pour les essais à « haute vitesse » la pression dans le cœur du lit semble légèrement surestimée par le modèle. Cette légère déviation du modèle provient de l'estimation de la porosité.

La Figure 95 présente les résultats expérimentaux et calculés pour la porosité.

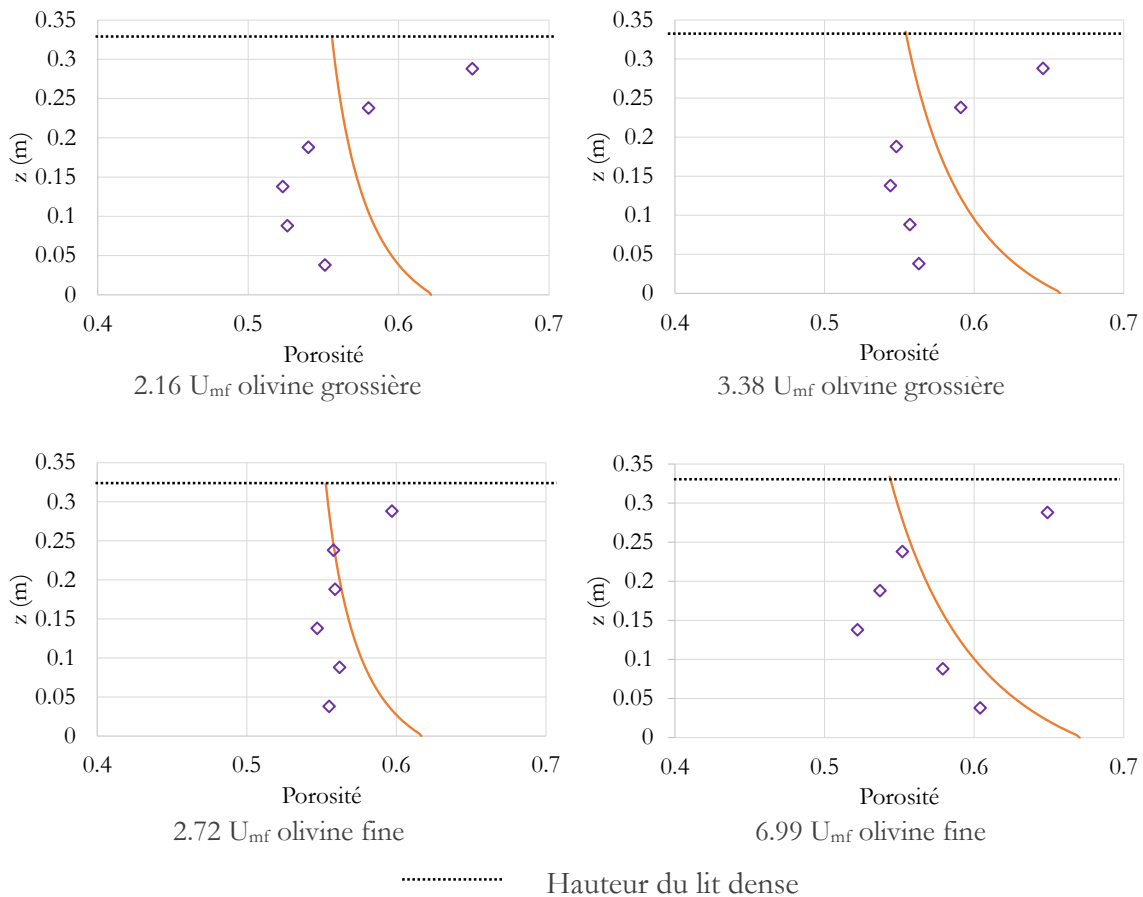


Figure 95 : profil de porosité expérimental et modélisé pour la maquette froide (— modèle, \diamond expérience)

Les résultats de porosité font apparaître des différences sensibles entre les expériences et le modèle. Dans l'ensemble des cas, la porosité prédite par le modèle est plus élevée que les données expérimentales. La différence principale réside dans la tendance des courbes. Pour l'ensemble des expériences, la porosité dans le haut du lit augmente. Cette augmentation n'est pas démontrée dans le modèle hydrodynamique retenue dans Aspen Plus® car les relations de la littérature ne sont pas en mesure de produire ce résultat, et qu'il n'est pas évident d'ajouter simplement des relations hydrodynamiques dans le bloc lit fluidisé d'Aspen Plus® ou dans un module propre.

IV.2 Expérience en maquette chaude

Comme pour le cas de la maquette froide, les profils de pression et la hauteur du lit ont été mesurés. Il est également possible de mesurer des profils de composition de gaz à un instant donné, ainsi que l'évolution temporelle de la composition du gaz en sortie.

Les essais sont effectués avec un lit de 4 kg d'olivine. La biomasse utilisée est du miscanthus sous forme de granulés. La caractérisation du miscanthus est présentée en (Annexe 5).

IV.2.1 Résultats expérimentaux

IV.2.1.1 Résultats de porosité

Les expériences en maquette chaude sont de plusieurs natures.

Des expériences avec un lit uniquement composé d'olivine ont permis de vérifier l'hydrodynamique du lit à température élevée (Chapitre III.I.1).

Dans l'ensemble des cas, l'olivine est identique en terme de granulométrie (olivine grossière). En revanche les conditions de température et de vitesse du gaz de fluidisation sont variables.

La Figure 96 représente les profils de pression au sein du lit pour les différentes conditions.

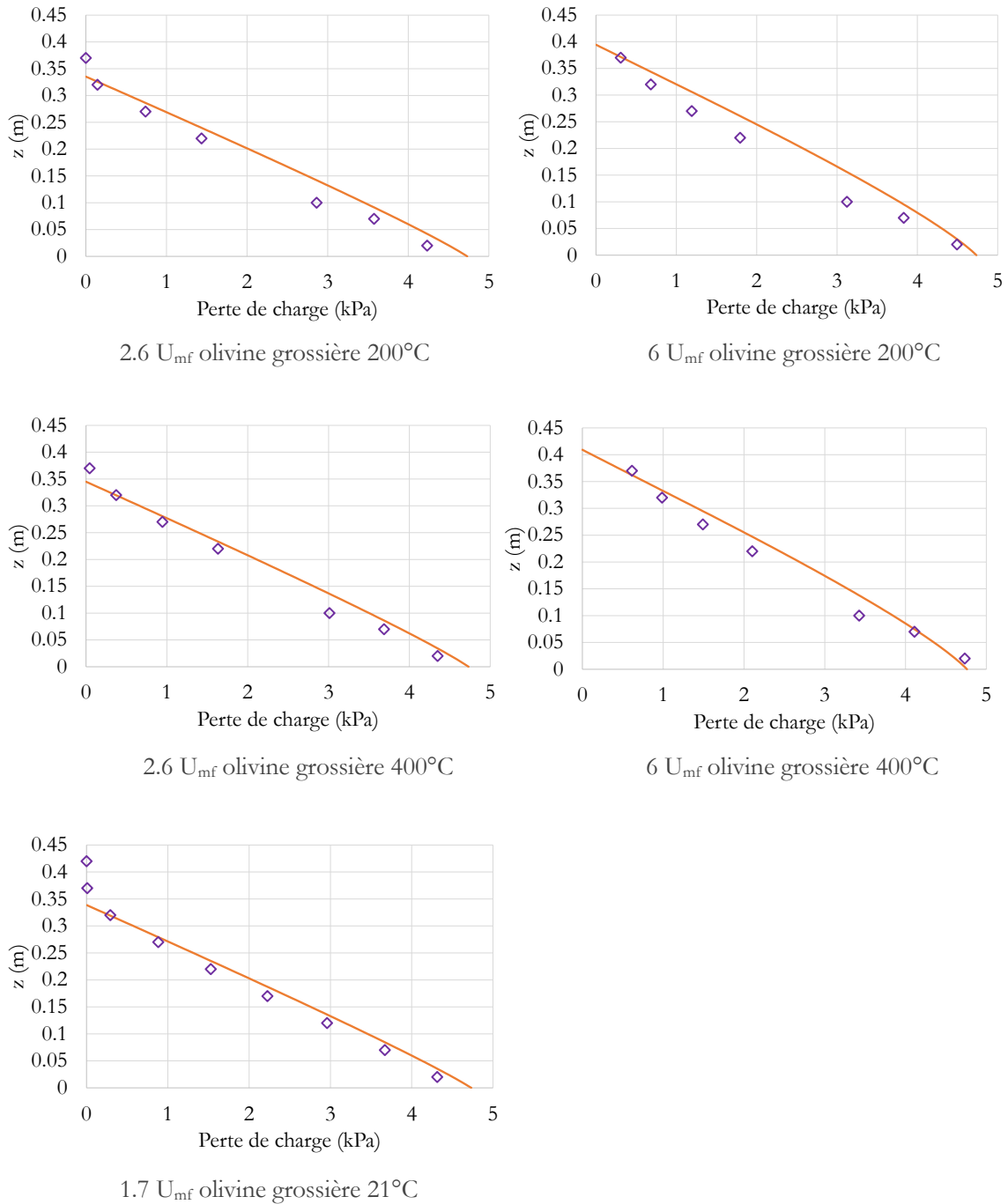


Figure 96 : profils de pression expérimentaux et modélisés (maquette chaude)

Comme pour les résultats en maquette froide, les prédictions du modèle pour la perte de charge au sein du lit sont en accord avec les résultats expérimentaux. On observe une légère différence de pression dans le cœur du lit, pour des vitesses élevées. Cet écart de pression est légèrement plus important que pour le cas à faible vitesse.

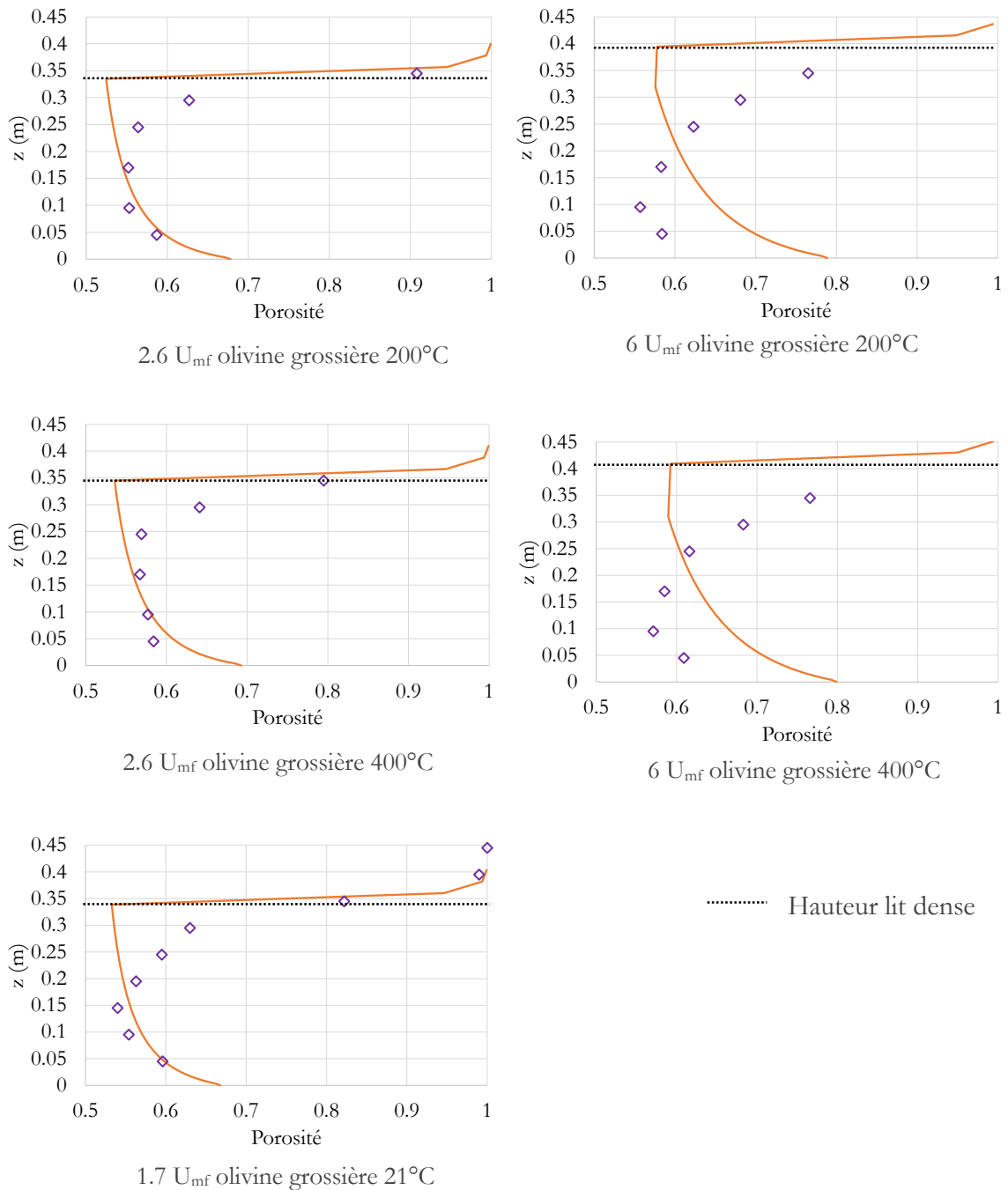


Figure 97 : porosité expérimentale et modélisée pour la maquette chaude

Dans ces essais (Figure 97), la porosité est tracée pour une hauteur supérieure à la hauteur du lit dense qui explique que la porosité dans le haut du graphique tend vers 1. Comme pour les essais dans la maquette froide, la tendance de porosité n'est pas bien représentée par le modèle, c'est-à-dire que la diminution de densité dans les tranches supérieures du lit dense n'est pas prédite par le modèle dans Aspen Plus®.

Le modèle représente fidèlement la porosité dans le bas du lit pour des vitesses de fluidisation faibles. En revanche, comme pour le cas précédent, à plus haute vitesse la porosité estimée n'est pas représentative des données expérimentales.

Ces résultats permettent de montrer que l'estimation du modèle d'écoulement est satisfaisante à l'échelle globale alors que des écarts sensibles sont observés pour la porosité à l'échelle locale.

IV.2.1.2 Gazéification de la biomasse

Les expériences de gazéification de la biomasse ont été réalisées au LRGP par Georges Lardier sur la maquette chaude présentée dans le Chapitre II-V. La biomasse est injectée par le haut du lit et tombe par gravité à la surface du lit dense. Les données présentées dans ce chapitre sont basées sur un essai réalisé en juillet 2014 et reproduit en octobre pour évaluer la reproductibilité des mesures.

Les conditions expérimentales sont présentées en Annexe 7.

Conformément aux données expérimentales (Figure 98), la température est considérée comme uniforme dans le lit dense, et décroissant linéairement dans le freeboard.

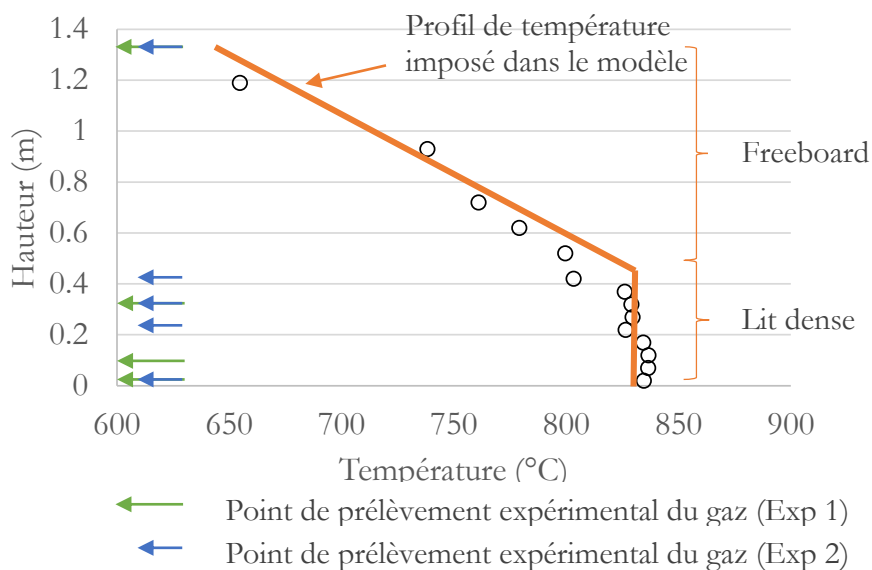


Figure 98 : évolution de la température avec la hauteur

Les prélèvements de gaz réalisés permettent de déterminer le profil de composition du gaz en fonction de la hauteur. Trois analyses de gaz ont été effectuées dans le réacteur, la quatrième étant réalisée en sortie de réacteur.

Les résultats expérimentaux sont directement présentés dans les graphiques (Figure 100 à Figure 104).

IV.3 Comparaison des résultats du modèle aux données expérimentales

Comme discuté précédemment, le gaz de pyrolyse dans l'approche de modélisation est injecté à différentes hauteurs en fonction du cas étudié ; le charbon est quant à lui parfaitement mélangé dans l'ensemble du lit avec le solide.

IV.3.1 Cas d'étude de la modélisation

Dans les modélisations effectuées, le point d'injection des gaz de pyrolyse a été modifié afin de mettre en évidence l'influence de la prise en compte de la ségrégation sur les caractéristiques du syngaz. Pour cela, quatre cas particuliers ont été étudiés (Figure 99) :

- Le cas « A » correspond à une ségrégation totale de la biomasse dans le haut du lit,
- le cas « B » correspond à une ségrégation totale en bas du lit,
- le cas « C » correspond à un mélange homogène,
- le cas « D » correspond à un cas représentant les résultats de ségrégation obtenus dans ce travail.

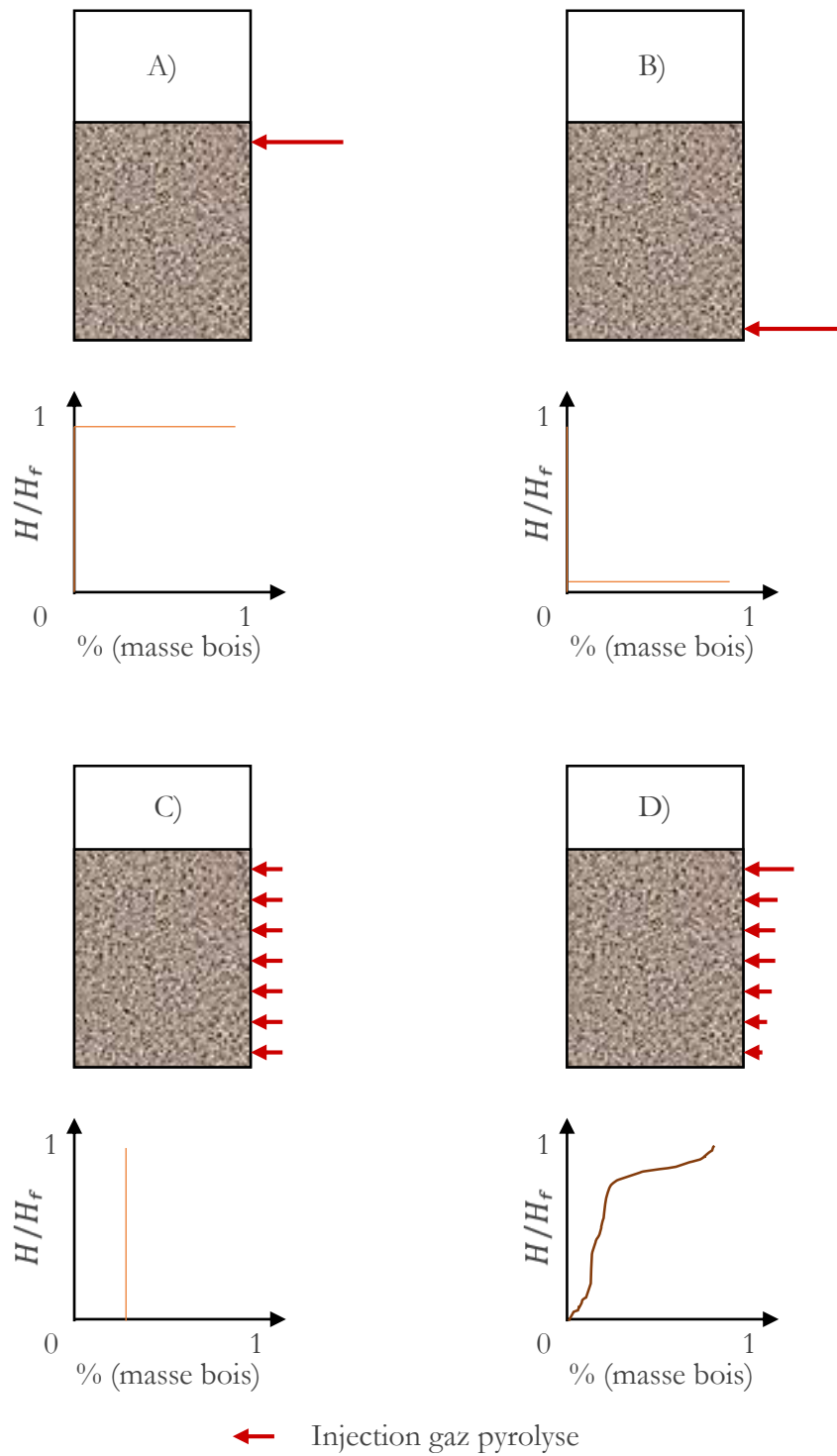


Figure 99 : cas d'étude de l'impact de la ségrégation du bois

IV.3.2 Résultats des calculs et comparaison aux expériences

Ce paragraphe permet de comparer la modélisation aux expériences. Seuls les gaz majoritaires en volume ont été retenus pour effectuer la comparaison. Les résultats ont été séparés sur deux graphiques afin d'en faciliter la lecture⁹. La comparaison des deux essais expérimentaux a permis de mettre en avant que les mesures sont reproductibles. La différence principale est pour la teneur en O₂ à 42 cm. Cette teneur semble trop élevée ; il se pourrait que cela vienne d'une erreur de mesure ou d'une infiltration partielle d'air dans le système de prélèvement.

IV.3.2.1 Injection du gaz en haut du lit

Dans le cas de la modélisation de la fluidisation de biomasse, il est parfois considéré que la biomasse migre immédiatement vers la surface lorsqu'elle est injectée dans le lit^{18,19,188} : ce cas correspond au cas A.

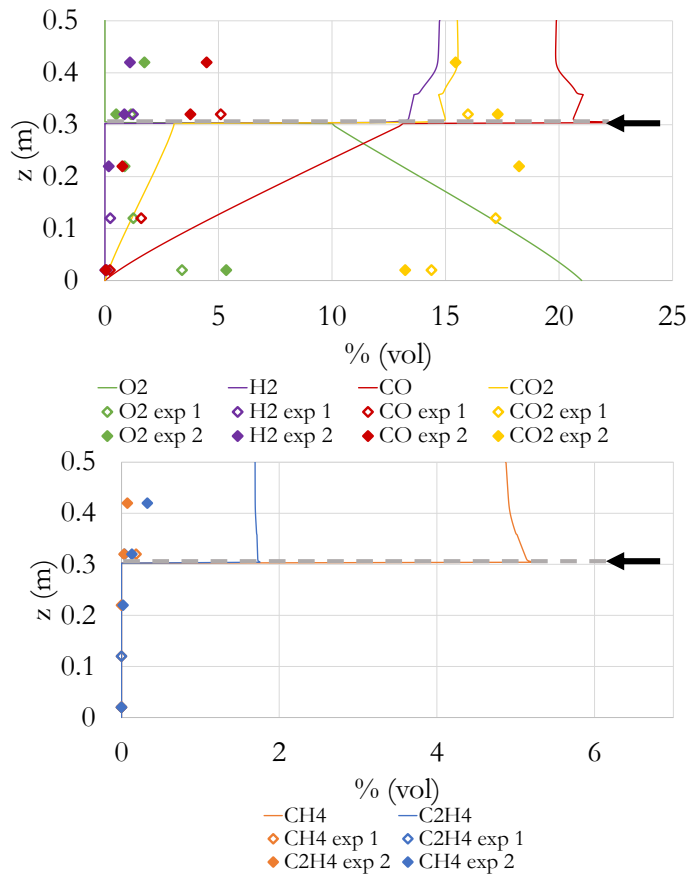


Figure 100 : injection du gaz de pyrolyse dans le haut du lit

⁹ Sur les figures, le trait en pointillé correspond à la hauteur du lit dense et les flèches représentent les points d'injection du gaz de séchage et de pyrolyse.

Le modèle (Figure 100) prédit une génération de CO et CO₂ ainsi qu'une consommation d'O₂ partielle au sein du lit dense, du fait de la gazéification du charbon qui est parfaitement mélangé dans le lit. La fraction de CO₂ prédite par le modèle est trop faible et, dans le même temps, les fractions d'O₂ et de CO sont trop élevées dans le lit. Ce type d'injection entraîne également une concentration en CH₄ et en C₂H₄ trop importante en entrée du freeboard par rapport aux mesures. Ces observations permettent de conclure que la pyrolyse de la biomasse ne se produit pas uniquement dans la partie haute du lit fluidisé dense.

Afin d'étudier l'impact d'une ségrégation totale en bas du lit, la simulation a été effectuée en injectant la totalité du gaz de séchage et de pyrolyse à proximité du distributeur d'air.

IV.3.2.2 Injection du gaz à proximité du distributeur

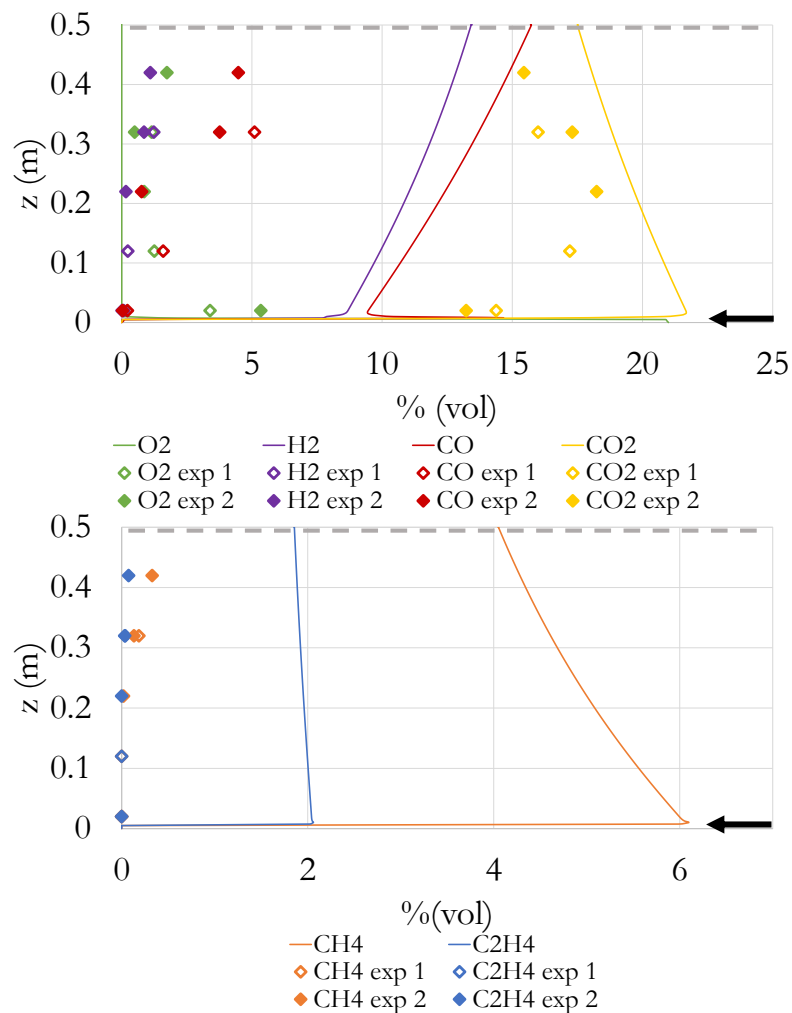


Figure 101 : injection du gaz de pyrolyse dans le bas du lit

Dans ce cas, la hauteur du lit est plus importante que dans le cas précédent. En effet l'ensemble du gaz de pyrolyse est injecté dans le bas du lit, ce qui revient à augmenter le débit total de gaz traversant le lit, et le module Aspen prévoit un accroissement de la porosité avec le débit de gaz. Concernant les réactions chimiques, l'O₂ est rapidement consommé et le taux de CO₂ est élevé, dès le bas du lit. Les concentrations de H₂ et de CO sont surestimées vis-à-vis du cas expérimental. Concernant les gaz CH₄ et C₂H₄, leurs concentrations sont également surestimées.

En se basant sur la concentration en CO₂ il apparaît que si la pyrolyse a lieu en bas du lit, le taux de CO₂ est surestimé, alors que lorsqu'elle est supposée avoir lieu en haut du lit, ce taux de CO₂ est sous-estimé. Cela permet d'estimer que le cas réel se trouve bien entre ces deux cas particuliers. Considérons le cas intermédiaire où la biomasse est répartie uniformément selon la hauteur.

IV.3.2.3 Injection du gaz de manière homogène

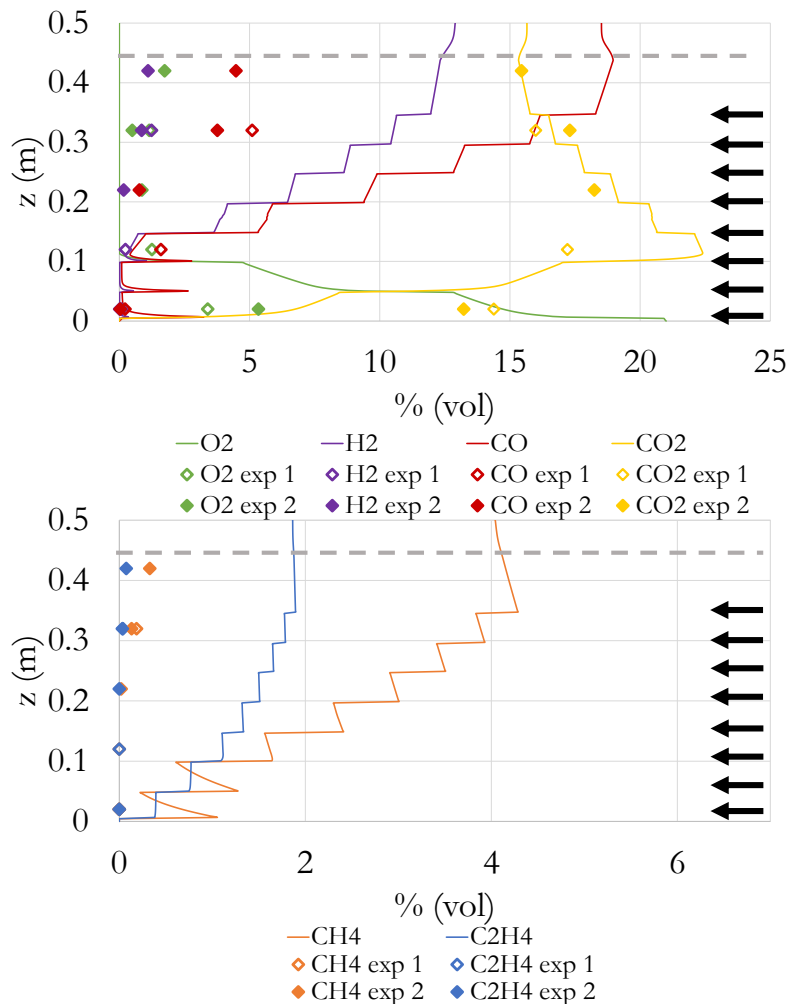


Figure 102 : injection du gaz de pyrolyse de manière homogène dans le lit

Dans ce cas (Figure 102), l'expansion du lit est plus faible que dans le cas où l'injection a lieu totalement dans le bas du lit.

Les profils de concentration en gaz présentent des discontinuités car l'injection de gaz est réalisée en un nombre de points limité. Dans ce cas, la concentration en CO₂ est proche du cas expérimental avec une augmentation dans le bas du lit suivie d'une consommation dans les tranches supérieures du lit. Les concentrations de CO et de H₂ semblent également se rapprocher des données expérimentales dans le bas du lit, mais la production de ces deux gaz est trop importante vis-à-vis des résultats expérimentaux. La production de CH₄ et C₂H₄ est toujours surestimée. Enfin le dernier cas concerne celui où la biomasse est répartie suivant les résultats de ségrégation obtenus précédemment.

IV.3.2.4 Injection du gaz distribuée selon les résultats expérimentaux

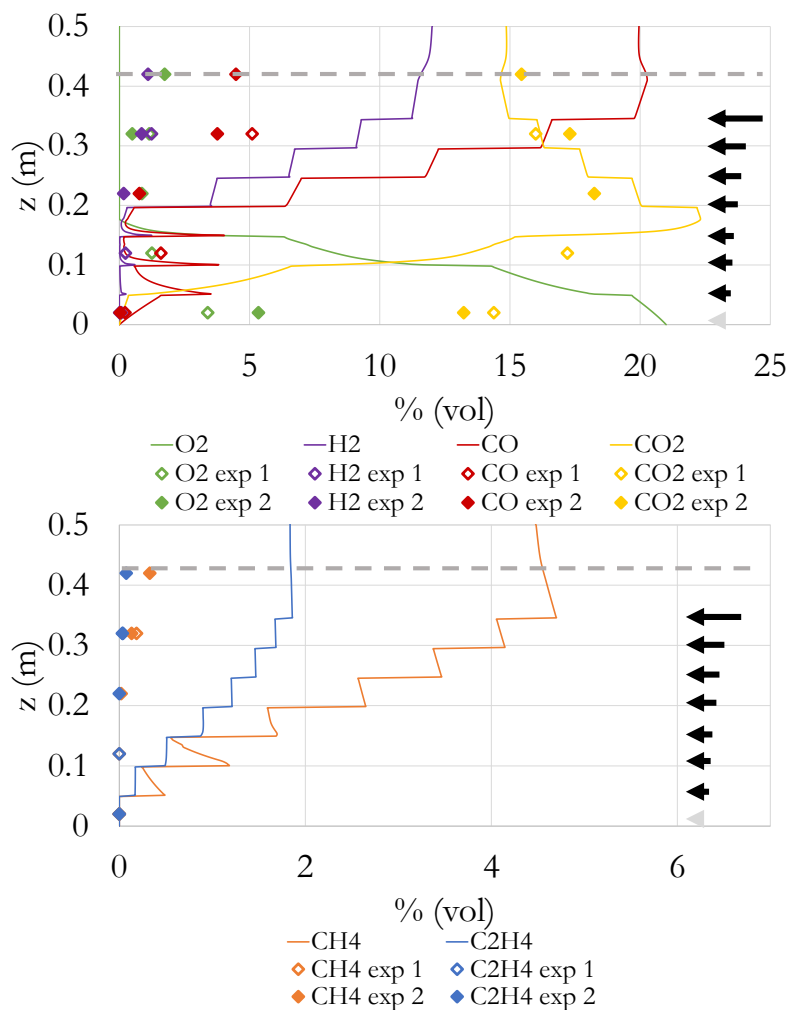


Figure 103 : injection du gaz de pyrolyse suivant un profil de ségrégation

Dans ce cas (Figure 103), la concentration en CO₂ est moins bien prédite dans le bas du lit. En revanche les concentrations en CO et H₂ dans le bas du lit semblent plus proches des mesures expérimentales. A contrario, la consommation de dioxygène est sous-estimée.

IV.3.3 Composition du gaz en sortie du réacteur

Les mesures expérimentales permettent également de donner la composition du gaz en sortie du réacteur. La Figure 104 compare les quatre cas étudiés précédemment. Le modèle surestime la quantité de gaz produit par les réactions. En effet, dans les expériences, le taux de dilution dans l'azote est plus important que dans les estimations du modèle. Dans l'ensemble des cas, la production de CO₂ semble vraisemblable, a contrario, le modèle sous-estime la quantité produite de CH₄ et surestime la quantité de H₂.

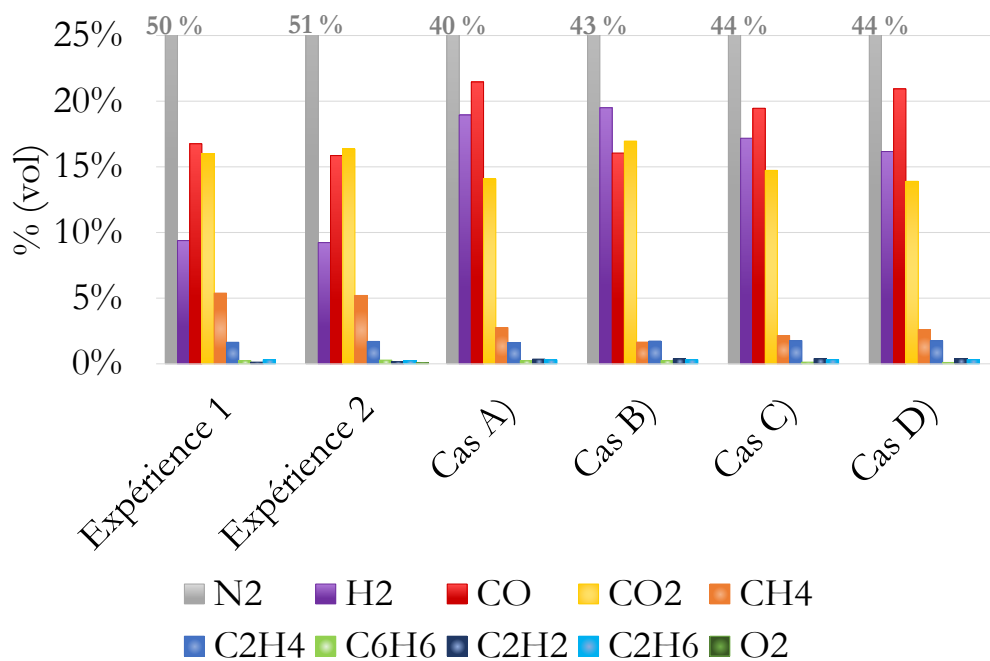


Figure 104 : composition des gaz en sortie du réacteur

Une comparaison au cas par cas permet de mettre en évidence que les points d'injection du gaz de pyrolyse impactent sensiblement la composition finale du gaz.

IV.4 Discussion

Ces essais et calculs permettent de mettre en avant que la ségrégation des particules de biomasse et donc la distribution de la production du gaz de pyrolyse ont un impact sensible sur les profils de composition du gaz au sein du lit, mais également en sortie de réacteur. Les résultats expérimentaux utilisés pour cette étude proviennent d'un unique type d'essai, ce qui limite la représentativité des résultats obtenus. Cette comparaison entre l'expérimentation et le modèle sera approfondie dans le projet GAMECO notamment en comparant les résultats du modèle à un plus grand jeu de données expérimentales.

Chacune des cinétiques a été choisie en utilisant les recommandations de la littérature et des travaux réalisés dans une autre tâche du projet GAMECO. Ces cinétiques donnent des résultats acceptables lorsqu'elles sont utilisées indépendamment les unes des autres. En revanche, lorsqu'elles sont toutes utilisées en même temps dans un même modèle, les résultats ne sont plus aussi représentatifs de la réalité. Par ailleurs, l'impact des réactions catalytiques n'a pas été considéré dans ce modèle. Il est connu que la réaction de gaz à l'eau peut avoir une vitesse apparente considérablement modifiée par les réactions hétérogènes¹⁵⁹.

L'utilisation du modèle tel que défini dans ce chapitre permet donc de produire des premières tendances, mais ne peut encore prétendre à fournir des prédictions quantitatives. Ce modèle n'a subi aucun calage. Il serait néanmoins intéressant de tester d'autres combinaisons de cinétique pour les réactions clés, notamment la réaction de gaz à l'eau qui joue un rôle prépondérant dans la production d'hydrogène.

Il serait également intéressant de trouver une solution pour pouvoir prendre en compte une possible ségrégation du charbon dans le réacteur car d'après les premiers résultats expérimentaux le charbon n'est pas réparti de façon homogène dans le réacteur (Figure 105).

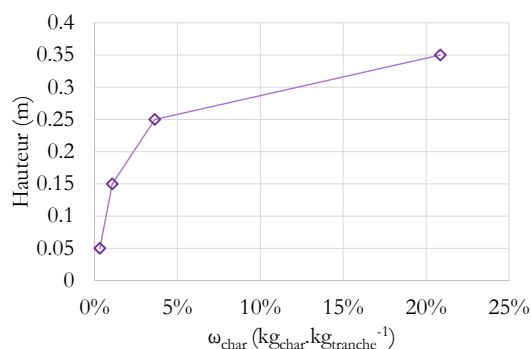


Figure 105 : fraction de charbon par tranche à la fin d'un essai de gazéification sur le pilote du LRGP (mesure par prélèvement)

Conclusions et perspectives

Ce travail a permis de construire un modèle global d'un réacteur à lit fluidisé de gazéification de biomasse prenant en compte la ségrégation de la biomasse au sein du lit.

La première étape de l'étude a consisté en la mise en place d'une maquette expérimentale permettant de caractériser la répartition du bois dans le lit de particules d'inerte. La caractérisation de l'hydrodynamique a été effectuée grâce aux mesures de pression et de vitesse dans le lit. Une méthode de prélèvement et d'analyse des solides a été également utilisée pour caractériser la répartition du bois en fonction de la hauteur dans le lit.

La maquette a été utilisée pour effectuer de nombreux essais dans différentes conditions opératoires de fluidisation et de mélange. Ces essais ont permis de mettre en avant l'impact des différents facteurs sur la répartition des particules de biomasse dans le lit d'olivine. Il apparaît que pour l'ensemble des conditions étudiées, la biomasse, bien que présente dans la quasi-totalité du réacteur, connaît une plus forte concentration vers la surface libre du lit. La taille et la masse volumique de la biomasse sont des paramètres influant sur la qualité du mélange, les particules de grandes dimensions ou de faible densité ont tendance à migrer vers la surface alors que les particules de petites dimensions ou de forte densité ont tendance à être bien mélangées dans le lit. A contrario, le volume total et le diamètre moyen de l'inerte n'impactent pas de manière significative la répartition de la biomasse. Dans les conditions étudiées ($1-7 U_{mf}$), la vitesse impacte fortement le régime de répartition de la biomasse : pour une faible vitesse la biomasse tend à être ségrégée sur le haut du lit alors qu'à plus haute vitesse, la biomasse se mélange de façon plus homogène. Nos essais ont également permis de produire des profils de porosité suivant la hauteur du lit. Ces profils obtenus pour différentes conditions opératoires permettent de montrer que la porosité évolue de manière significative au sein du lit.

Ces essais ont permis de montrer que pour des vitesses habituellement utilisées dans des lits fluidisés denses de gazéification, la biomasse tend à être globalement mélangée dans le réacteur. En d'autres termes, la biomasse est présente de la grille de distribution jusqu'à la surface libre du lit dense. En revanche, la répartition évolue avec la hauteur au sein du lit : le taux de biomasse à proximité du distributeur est sensiblement plus faible que le taux de biomasse dans la tranche supérieure. Il est intéressant de noter que la proportion de biomasse augmente linéairement au sein du lit, excepté pour la tranche supérieure pour laquelle la fraction de biomasse est sensiblement plus importante.

A partir de ces observations, il est possible d'extrapoler le comportement des particules de charbon générées par la dévolatilisation de la biomasse. Tant que les particules de charbon sont « jeunes » et n'ont pas encore été amoindries par l'attrition ou le fractionnement, leurs dimensions restent comparables à celle de la biomasse initiale, tandis que leur densité est plus faible : elles devraient donc être globalement séparées du reste du lit et flotter à la surface libre du lit. A contrario, quand les particules de charbon se fractionnent en éléments de faibles dimensions, elles auraient tendance à se répartir de manière plus uniforme dans le réacteur.

La comparaison entre les résultats du modèle de ségrégation et les résultats expérimentaux conduit à la conclusion que le modèle dérivé de celui de Fotovat et al. permet de prédire les tendances effectivement observées.

La modélisation globale du réacteur, qui a été réalisée dans un second temps, prend en compte la répartition des particules de biomasse dans le lit.

La comparaison modèle/expériences montre que la prise en compte du profil de répartition de la biomasse dans la modélisation des lits fluidisés améliore la qualité du modèle en fournissant des profils de composition du gaz plus corrects. Les résultats fournis par ce type de modèles peuvent être utilisés lors de la conception d'un réacteur, notamment en termes de design (positionnement d'une injection d'air secondaire ou de vapeur d'eau ...). Les travaux présentés dans cette thèse se sont focalisés sur l'état de mélange des particules de biomasse au sein d'un lit fluidisé d'olivine. Dans le cas de la gazéification, la biomasse subit des conversions thermochimiques entraînant une transformation physique des particules. Ces transformations impactent probablement le mélange de la biomasse, il serait donc intéressant de poursuivre en utilisant les particules « actives » qui ont été conçues dans ce travail, mais qui n'ont pas pu être utilisées.

Le modèle global proposé dans ce travail nécessite un approfondissement de certains points. Le choix des cinétiques réactionnelles est basé sur des recommandations de la littérature, mais il serait intéressant de comparer les résultats du modèle en faisant varier les paramètres cinétiques.

La prise en compte de la ségrégation des particules de charbon dans le réacteur pourrait être une évolution intéressante car d'après les observations expérimentales sur la maquette chaude, les particules de charbon sont réparties de façon non homogène selon la hauteur.

Ces évolutions du modèle pourraient consolider ses capacités prédictives. Un modèle suffisamment robuste en termes de prédiction de la qualité du gaz pourrait permettre un dimensionnement plus sûr de ces installations. Cela contribuerait alors à accroître la dissémination du procédé de gazéification de la biomasse en lit fluidisé.

D'un point de vue plus général, la modélisation de la gazéification de la biomasse en lit fluidisé met en jeu un nombre important d'interactions physico-chimiques. Les connaissances actuelles ne permettent pas une caractérisation précise de l'ensemble de ces réactions. Il me semble qu'au vu des connaissances du domaine, une approche corrélative permet de modéliser de façon globale les réacteurs de gazéification de biomasse en lit fluidisé. Les approches par CFD me paraissent intéressantes pour effectuer des modélisations de points particuliers du réacteur. En revanche la modélisation globale par CFD réactive d'un lit fluidisé me semble actuellement très complexe et chronophage sans pour autant garantir de meilleurs résultats.

Notations

A : aire

A_r : nombre d'Archimède (-)

d : diamètre (m)

D_{sv} : diamètre de sphère ayant le même ratio de surface/volume que la particule (m)

\bar{d} : diamètre moyen (m)

EnR : énergie renouvelable

EnRt : énergie renouvelable thermique

f : fréquence (%)

f_{exp} : facteur d'expansion du lit (-)

F_w : ratio de volume de trainée sur le volume de bulle(-)

g : accélération de la pesanteur ($m.s^{-2}$)

h : hauteur (m)

H_i : hauteur du capteur i (m)

H_{moy} : hauteur moyenne du bois dans les mélanges (%)

IMG : indice de mélange global (-)

K_w : coefficient d'échange entre la phase dense et la phase diluée (s^{-1})

LIG-C ; LIG-H ; LIG-O : composant représentant la lignine

m : masse (g)

MI : indice de mélange (-)

n_{or} : nombre d'orifices dans le distributeur d'air (m^{-2})

P : pression (Pa)

PMMA : polyméthacrylate de méthyle

Q : débit ($m^3.s^{-1}$)

q : coefficient d'échange bulle-émulsion ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)

R_e : nombre de Reynolds (-) $R_e = \frac{U\rho d}{\mu}$

S : surface (m^2)

U : vitesse ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)

U_{br} : vitesse d'une bulle isolée ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)

V : volume (m^3)

V_i : fraction volumique de bois ($\text{m}^3_{\text{bois}} \cdot \text{m}^3_{\text{bois+olivine}}^{-1}$)

\bar{V}_i : fraction volumique moyen de bois dans le lit ($\text{m}^3_{\text{bois}} \cdot \text{m}^3_{\text{bois+olivine}}^{-1}$)

x : fraction de bois ($\text{kg}_{\text{bois}} \cdot \text{kg}_{\text{bois}}^{-1}$)

X_{be} : fraction volumique de bois dans la phase émulsion ($\text{m}^3_{\text{bois}} \cdot \text{m}^3_{\text{émulsion}}^{-1}$)

X_b : fraction volumique de bois dans la tranche ($\text{m}^3_{\text{bois}} \cdot \text{m}^3_{\text{tranche}}^{-1}$)

\bar{x} : moyenne de la classe granulométrique (m)

Z : altitude (m)

Grec

ρ : masse volumique ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)

μ : viscosité dynamique (Pa.s)

Φ_s : facteur de forme ou sphéricité (-)

ϵ : porosité (-)

ΔP : perte de charge (Pa)

π : nombre Pi (-)

ω : ratio massique de bois ($\text{kg}_{\text{bois}} \cdot \text{kg}_{\text{tranche}}^{-1}$)

δ : fraction de bulles ($\text{m}^3_{\text{bulle}} \cdot \text{m}^3_{\text{lit}}^{-1}$)

∂ : erreur

Ψ_F^b : flux volumique ascendant d'inerte ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)

Ψ_B^e : flux volumique de biomasse ascendant dans l'émulsion $m^3 \cdot s^{-1}$

Indice

air : air

asc : ascendant

b : bois

biom : biomasse

bulle : bulle

0 : initial

c : charbon

cf : fluidisation complète

distr : se réfère au distributeur d'air

e : émulsion

ep : éprouvette

eff : effectif

eau : eau

f : fluidisé

float : floatsam, particules qui migrent vers la surface

g : gaz

i : numéro de la tranche

if : début de la fluidisation

inerte : inerte (olivine)

ini : initial

inj : injecté

jet : jetsam, particules qui migrent vers le bas

l : qui se réfère à la tranche

lit : qui se réfère à la zone de fluidisation

max : maximum

me : mélange (se réfère au mélange olivine+biomasse)

mf : minimum de fluidisation

min : minimum

moy : moyen

N : azote

ol : olivine

p : particule

pla : plaquette

t : transport

tam : tamisage

tour : tourillon

tot : total

v : volume

vrac : vrac

Références

1. REN 21. *Renewables 2014 global status report*. (2014).
2. Commissariat général au développement durable. Bilan énergétique de la France pour 2013. (2014).
3. Observ'ER. Le baromètre 2013 des énergies renouvelables électriques en France. (2014).
4. Ministère de l'Ecologie de l'Energie du Développement durable et de la Mer. *Plan d'action national en faveur des énergies renouvelables période 2009 2020*. (2009).
5. LOI n° 2009-967 du 3 août 2009 de programmation relative à la mise en œuvre du Grenelle de l'environnement. 2009-967 (2009).
6. Deglise, X. & Donnot, A. Bois énergie. *Techniques de l'ingénieur* (2004).
7. Ranzi, E., Cuoci, A., Faravelli, T., Frassoldati, A., Migliavacca, G., Pierucci, S. & Sommariva, S. Chemical Kinetics of Biomass Pyrolysis. *Energy Fuels* **22**, 4292–4300 (2008).
8. PROJET ANR GAMECO: *Gazéification Améliorée pour des applications Cogénération*. BIO-E (2010).
9. Babu, S. P. & Hofbauer, H. Status of and prospects for biomass gasification. in *Science in Thermal and Chemical Biomass Conversion (STCBC) conference* **30**, (2004).
10. Dry, M. E. The Fischer–Tropsch process: 1950–2000. *Catal. Today* **71**, 227–241 (2002).
11. Broust, F., Girard, P. & Van de steene, L. Biocarburants de seconde génération et bioraffinerie. *Techniques de l'ingénieur* (2013).
12. Glaude, P.-A., Sirjean, B., Fournet, R., Bounaceur, R., Vierling, M., Montagne, P. & Michel Molière. Combustion and oxidation kinetics of alternatives gas turbines fuels. *Proc. ASME* **1**, 649–658 (2011).
13. Une filière innovante de production de biométhane. (2014).
14. Khalfi, A. E. *Projet ANR BIOMAP : Comparaison de la combustion et de la gazéification pour la cogénération à partir de biomasse*. (EDF R&D, 2009).
15. Dupont, C. Vapogazéification de la biomasse: contribution à l'étude de la phénoménologie entre 800 et 1000 °C. (Université Claude Bernard, 2006).
16. *Pyrolyse et gazéification de la biomasse pour la production d'électricité*. (ADEME, 2001).
17. Bridgwater, A. V. Renewable fuels and chemicals by thermal processing of biomass. *Chem. Eng. J.* **91**, 87–102 (2003).
18. Authier, O. Etude découplée des phénomènes physicochimiques impliqués dans les réacteurs de gazéification de la biomasse. Application au cas d'un lit fluidisé double. (INPL, 2010).
19. Le Dirach, J. Contribution à l'industrialisation d'un procédé de gazéification. (INPL, 2007).
20. Beenackers, A. A. C. M. Biomass gasification in moving beds, a review of European technologies. *Renew. Energy* **16**, 1180–1186 (1999).
21. Bridgwater, A. V. The technical and economic feasibility of biomass gasification for power generation. *Fuel* **74**, 631–653 (1995).
22. Kramreiter, R., Url, M., Kotik, J. & Hofbauer, H. Experimental investigation of a 125 kW twin-fire fixed bed gasification pilot plant and comparison to the results of a 2 MW combined heat and power plant (CHP). *Fuel Process. Technol.* **89**, 90–102 (2008).
23. Puig-Arnavat, M., Bruno, J. C. & Coronas, A. Review and analysis of biomass gasification models. **14**, 2841–2851 (2010).

24. Van de steene, L., Tagutchou, J. P., Mermoud, F., Martin, E. & Salvador, S. A new experimental Continuous Fixed Bed Reactor to characterise wood char gasification. *Fuel* **89**, 3320–3329 (2010).
25. Fourcault, A. Modélisation d'un étage haute température alimenté par une torche à plasma pour la dégradation des goudrons présents dans les gaz de synthèse. (Pau, 2010).
26. Debal, M. Etude comparative de la gazéification catalytique de la biomasse versus sa combustion direct pour la cogénération. (Université de lorraine, 2014).
27. Tagutchou, J. P., Van de steene, L., Escudero Sanz, F. J. & Salvador, S. Gasification of Wood Char in Single and Mixed Atmospheres of H₂O and CO₂. *Energy Sources Part Recovery Util. Environ. Eff.* **35**, 1266–1276 (2013).
28. McKendry, P. Energy production from biomass (part 3): gasification technologies. *Bioresour. Technol.* **83**, 55–63 (2002).
29. Han, J. & Kim, H. The reduction and control technology of tar during biomass gasification/pyrolysis: An overview. *Renew. Sustain. Energy Rev.* **12**, 397–416 (2008).
30. Milne, T. A., Abatzoglou, N. & Evans, R. J. Biomass gasifier 'tars': Their Nature, Formation, and Conversion. *NREL* (1998).
31. Geldart, D. Types of gas fluidization. *Powder Technol.* **7**, 285–292 (1973).
32. Pyle, D. L. & Rose, P. L. Chemical reaction in bubbling fluidized beds. *Chem. Eng. Sci.* **20**, 25–31 (1965).
33. Kunii, D. & Levenspiel, O. *Fluidization Engineering. 2nd edition*, (Butterworth-Heinemann, 1991).
34. Baerns, M. Fluidization of fine particles. in (Amsterdam, Netherlands University Press, 1967).
35. Squires, A.M. Species of fluidization. *Chem Eng Progr* **58**, (1962).
36. Geldart, D. & Baeyens, J. The design of distributors for gas-fluidized beds. *Powder Technol.* **42**, 67–78 (1985).
37. Qureshi, A. E. & Creasy, D. E. Fluidised bed gas distributors. *Powder Technol.* **22**, 113–119 (1979).
38. Chyang, C. S., Lieu, K. & Hong, S. S. The effect of distributor design on gas dispersion in a bubbling fluidized bed. *J. Chin. Inst. Chem. Eng.* **39**, 685–692 (2008).
39. Wormsbecker, M., Pugsley, T. S. & Tanfara, H. The influence of distributor design on fluidized bed dryer hydrodynamics. in *New Horizons in fluidization* (eds. Berruti, F., Xiaotao, B. & Pugsley, T. S.) **100**, (2007).
40. Sadaka, S. S., Ghaly, A. E. & Sabbah, M. A. Two phase biomass air-steam gasification model for fluidized bed reactors: Part I—model development. *Biomass Bioenergy* **22**, 439–462 (2002).
41. Delebarre, A. Archétypes et pratiques de l'innovation : le cas des lits fluidisés. *Gérer et comprendre* 19–30 (2001).
42. Delebarre, A. Does the Minimum Fluidization exist? *J. Fluids Eng.* **124**, 595–600 (2002).
43. Delebarre, A. B., Pavinato, A. & Leroy, J. C. Fluidization and mixing of solids distributed in size and density. *Powder Technol.* **80**, 227–233 (1994).
44. Chiba, S., Chiba, T., Nienow A.W. & Kobayashi, H. The minimum fluidisation velocity, bed expansion and pressure-drop profile of binary particle mixtures. *Powder Technol.* **22**, 255–269 (1979).
45. Joseph, G. G., Leboireiro, J., Hrenya, C. M. & Stevens, A. R. Experimental segregation profiles in bubbling gas-fluidized beds. *AIChE J.* **53**, 2804–2813 (2007).

46. Rowe, P & Nienow A.W. Particle mixing and segregation in gas fluidised beds. A review. *Powder Technol.* **15**, 141–147 (1976).
47. Noda, K., Uchida, S., Makino, T. & Kamo, H. Minimum fluidization velocity of binary mixture of particles with large size ratio. *Powder Technol.* **46**, 149–154 (1986).
48. Chen, J. L.-P. & Keairns, D. L. Particle segregation in a fluidized bed -. *Can. J. Chem. Eng.* **53**, 395–402 (1975).
49. Yang, W. C. & Keairns, D. L. Rate of particle separation in a gas fluidized bed. *Ind Eng Chem Fund* **21**, 228–235 (1982).
50. Formisani, B., Girimonte, R. & Longo, T. The fluidization process of binary mixtures of solids: Development of the approach based on the fluidization velocity interval. *Powder Technol.* **185**, 97–108 (2008).
51. Chew, J. W. & Hrenya, C. M. Link between bubbling and segregation patterns in gas-fluidized beds with continuous size distributions. *AIChE* **57**, 3003–3011 (2011).
52. Chew, J. W., Wolz, J. R. & Hrenya, C. M. Axial segregation in bubbling gas-fluidized beds with Gaussian and lognormal distributions of Geldart Group B particles. *AIChE* **56**, 3049–3061 (2010).
53. Paudel, B. & Feng, Z.-G. Prediction of minimum fluidization velocity for binary mixtures of biomass and inert particles. *Powder Technol.* **237**, 134–140 (2013).
54. Wen, C. Y. Krishnan, R. & Kalyanaraman, R. Particle mixing near the grid region of fluidized beds. in 405–412 (J.R. Grace and J.M. Matsen, 1980).
55. Werther, J. Bubble chains in large diameter gas fluidized beds. *Int. J. Multiph. Flow* **3**, 367–381 (1977).
56. Hiby J. Untersuchungen über den kritischen Mindestdruckverlust des Anströmbodens bei Fluidalbetten (Fließbetten). *Chem. Ing. Tech.* **36**, 228–229 (1964).
57. Whitehead, A. B., Dent, D. C. & Young, A. D. Fluidisation studies in large gas-solid systems Part II: The effect of distributor design and solid properties on fluidisation quality. *Powder Technol.* **1**, 149–156 (1967).
58. Siegel, R. Effect of distributor plate-to-bed resistance ratio on onset of fluidized-bed channeling. *AIChE J.* **22**, 590–592 (1976).
59. Sathiy Amoorthy, D. & Sridhar Rao, C. Multi-orifice plate distributors in gas fluidised beds — a model for design of distributors. *Powder Technol.* **24**, 215–223 (1979).
60. Sirotkin, G. L. Calculation of the relative resistance of porous and perforated gas-distributing grids during stable fluidization. *Chem. Pet. Eng.* **15**, 113–115 (1979).
61. Shi, Y.-F. & Fan, L. T. Effect of distributor to bed resistance ratio on uniformity of fluidization. *AIChE J.* **30**, 860–865 (1984).
62. Antonini, G. Lit fluidisé caractéristiques générales et applications. *Techniques de l'ingénieur* (2007).
63. Van Deemter, J. J. Mixing and contacting in gas-solid fluidized beds. *Chem. Eng. Sci.* **13**, 143–154 (1961).
64. Fryer, C. & Potter, O. E. Countercurrent backmixing model for fluidized bed catalytic reactors. Applicability of simplified solutions. *Ind Eng Chem Fund* **11**, 338–344 (1972).
65. Goldschmidt, M. J. V., Link, J. M., Mellema, S. & Kuipers, J. A. M. Digital image analysis measurements of bed expansion and segregation dynamics in dense gas-fluidised beds. *Powder Technol.* **138**, 135–159 (2003).

66. Wu, S. Y. & Baeyens, J. Segregation by size difference in gas fluidized beds. *Powder Technol.* **98**, 139–150 (1998).
67. Marzocchella, A., Salatino, P., Di Pastena, V. & Lirer, L. Transient fluidization and segregation of binary mixtures of particles. *AIChE J.* **46**, 2175–2182 (2000).
68. Rao, A., Curtis, J. S., Hancock, B. C. & Wassgren, C. Classifying the fluidization and segregation behavior of binary mixtures using particle size and density ratios. *AIChE* **57**, 1446–1458 (2011).
69. Olivieri, G., Marzocchella, A. & Salatino, P. Segregation of fluidized binary mixtures of granular solids. *AIChE J.* **50**, 3095–3106 (2004).
70. Hoffmann, A. C., Janssen, L. & Prins, J. Particle segregation in fluidised binary mixtures. *Chem. Eng. Sci.* **48**, 1583–1592 (1993).
71. Nienow, A. W., Naimer, N. S. & Chiba, T. Studies of segregation/mixing in fluidised beds of different size particles. *Chem Eng Comm* **62**, 53–66 (1987).
72. Nienow, A. W., Rowe, P. N. & Cheung, L. Y.-L. A quantitative analysis of the mixing of two segregating powders of different density in a gas-fluidised bed. *Powder Technol.* **20**, 89–97 (1978).
73. Rasul, M. G., Rudolph, V. & Carsky, M. Segregation potential in binary gas fluidized beds. *Powder Technol.* **103**, 175–181 (1999).
74. Hedden, D. B., Brone, D. L., Clement, S., McCall, M., Olsofsky, A., Patel, P. J., Prescott, J. & Hancock, B. C. Development of an Improved Fluidization Segregation Tester. (cover story). *Pharm. Technol.* **30**, 54–64 (2006).
75. Fotovat, F., Chaouki, J. & Bergthorson, J. Distribution of large biomass particles in a sand-biomass fluidized bed: Experiments and modeling. *AIChE J.* **60**, 869–880 (2014).
76. Zhang, Y., Jin, B. & Zhong, W. Experimental investigation on mixing and segregation behavior of biomass particle in fluidized bed. *Chem. Eng. Process.* **48**, 745–754 (2009).
77. Shen, L., Xiao, J., Niklasson, F. & Johnsson, F. Biomass mixing in a fluidized bed biomass gasifier for hydrogen production. *Chem. Eng. Sci.* **62**, 636–643 (2007).
78. Ghaly, A. E. & MacDonald, K. N. Mixing patterns and residence time determination in a bubbling fluidized bed system. *Am. J. Eng. Appl. Sci.* **5**, 170–183 (2012).
79. Farzaneh, M., Sasic, S., Almstedt, A.-E., Johnsson, F. & Pallares, D. A Study of Fuel Particle Movement in Fluidized Beds. *Ind. Eng. Chem. Res.* **52**, 5791–5805 (2013).
80. Halow, J., Crawshaw, B., Daw, S. & Finney, C. Mixing and Segregation of Biomass Particles in a Bubbling Fluidized Bed. in *Particle Technology Forum* (2011).
81. Bruni, G., Solimene, R., Marzocchella, A., Salatino, P., Yates, J., Lettieri, P. & Fiorentino, M. Self-segregation of high-volatile fuel particles during devolatilization in a fluidized bed reactor. *Powder Technol.* **128**, 11–21 (2002).
82. Laytner, F., Grace, J. R., Epstein, N. & Pinder, K. L. Mobility of wood wafers in a gas-fluidized bed. in 93–102 (Engineering Foundation, 1995).
83. Lim, C. N., Gilbertson, M. A. & Harrison, A. J. L. Bubble distribution and behaviour in bubbling fluidised beds. *Chem. Eng. Sci.* **62**, 56–69 (2007).
84. Soria-Verdugo, A., Garcia-Gutierrez, L. M., García-Hernando, N. & Ruiz-Rivas, U. Buoyancy effects on objects moving in a bubbling fluidized bed. *Chem. Eng. Sci.* **66**, 2833–2841 (2011).
85. Berruti, F., Liden, A. G. & Scott, D. S. Measuring and modelling residence time distribution of low density solids in a fluidized bed reactor of sand particles. *Chem. Eng. Sci.* **43**, 739–748 (1988).

86. Bilbao, R., Lezaun, J., Menéndez, M. & Abanades, J. C. Model of mixing—segregation for straw/sand mixtures in fluidized beds. *Powder Technol.* **56**, 149–155 (1988).
87. Rowe, P. N., Nienow, A. W. & Agbim, A. J. A preliminary quantitative study of particle segregation in gas fluidized bed- binary system of near spherical particle. *Trans. Inst. Chem. Eng.* **50**, 324–333 (1972).
88. Hemati, M., Spieker, K., Laguérie, C., Alvarez, R. & Riera, F. A. Experimental study of sawdust and coal particle mixing in sand or catalyst fluidized beds. *Can. J. Chem. Eng.* **68**, 768–772 (1990).
89. Boland, D. & Geldart, D. Electrostatic charging in gas fluidised beds. *Powder Technol.* **5**, 289–297 (1972).
90. Laverman, J. A., Roghair, I., Annaland, M. van S. & Kuipers, H. Investigation into the hydrodynamics of gas–solid fluidized beds using particle image velocimetry coupled with digital image analysis. *Can. J. Chem. Eng.* **86**, 523–535 (2008).
91. Bokkers, G. A., van Sint Annaland, M. & Kuipers, J. A. M. Mixing and segregation in a bidisperse gas-solid fluidised bed: a numerical and experimental study. *Powder Technol.* **140**, 176–186 (2004).
92. Werther, J. Measurement techniques in fluidized beds. *Powder Technol.* **102**, 15–36 (1999).
93. Horio, M. & Kuroki, H. Three-dimensional flow visualization of dilutely dispersed solids in bubbling and circulating fluidized beds. *Chem. Eng. Sci.* **49**, 2413–2421 (1994).
94. Lim, K. S., Agarwal, P. K. & O’neill, B. K. Measurement and modelling of bubble parameters in a two-dimensional gas-fluidized bed using image analysis. *Powder Technol.* **60**, 159–171 (1990).
95. Lim, K. S., Gururajan, V. S. & Agarwal, P. K. Mixing of homogeneous solids in bubbling fluidized beds: Theoretical modelling and experimental investigation using digital image analysis. *Chem. Eng. Sci.* **48**, 2251–2265 (1993).
96. Mudde, R. F., Schulte, H. B. M. & Akker, H. E. A. van den. Analysis of a bubbling 2-D gas-fluidized bed using image processing. *Powder Technol.* **81**, 149–159 (1994).
97. Shen, L., Johnsson, F. & Leckner, B. Digital image analysis of hydrodynamics two-dimensional bubbling fluidized beds. *Chem. Eng. Sci.* **59**, 2607–2617 (2004).
98. Movahedirad, S., Molaei Dehkordi, A., Banaei, M., Deen, N. G., van Sint Annaland, M. & Kuipers, J. A. M. Bubble Size Distribution in Two-Dimensional Gas–Solid Fluidized Beds. *Ind. Eng. Chem. Res.* **51**, 6571–6579 (2012).
99. Busciglio, A., Vella, G. & Micale, G. On the bubbling dynamics of binary mixtures of powders in 2D gas-solid fluidized beds. *Powder Technol.* **231**, 21–34 (2012).
100. Di Maio, F. P., Di Renzo, A. & Vivacqua, V. Extension and validation of the Particle Segregation Model for bubbling gas-fluidized beds of binary mixtures. *Chem. Eng. Sci.* **97**, 139–151 (2013).
101. Johnsson, F., Zijerveld, R. C., Schouten, J. C., Van den Bleek, C. M. & Leckner, B. Characterization of fluidization regimes by time-series analysis of pressure fluctuations. *Int. J. Multiph. Flow* **26**, 663–715 (2000).
102. Robert C. Brown & Ethan Brue. Resolving dynamical features of fluidized beds from pressure fluctuations. *Powder Technol.* **119**, 68–80 (2001).
103. Davies, C., Krouse, D. & Carroll, A. Particle size estimation and monitoring in a bubbling fluidized bed using pressure fluctuation measurements. in *New Horizons in fluidization* **56**, 465–472 (2007).

104. Solimene, R., Chirone, R. & Salatino, P. Characterization of the devolatilization rate of solid fuels in fluidized beds by time-resolved pressure measurements. **58**, 632–645 (2012).
105. Taxil, I., Bayle, J., Gauthier, T., Guigon, P. & Archimbault, F. Analyse des signaux temporels de pression dans un lit fluidisé turbulent de FCC. *Can. J. Chem. Eng.* **78**, 586–589 (2000).
106. Van Ommen, J. R., Schouten, J. C., vander Stappen, M. L. M. & van den Bleek, C. M. Response characteristics of probe–transducer systems for pressure measurements in gas–solid fluidized beds: how to prevent pitfalls in dynamic pressure measurements. *Powder Technol.* **106**, 199–218 (1999).
107. Nijenhuis, J., Korbee, R., Lensselink, J., Kiel, J. H. A. & van Ommen, J. R. A method for agglomeration detection and control in full-scale biomass fired fluidized beds. *Chem. Eng. Sci.* **62**, 644–654 (2007).
108. Fan, L. T., Tho-Ching Ho, S. & Hiraoka, W. P. Pressure fluctuations in a fluidized bed. *AIChE J.* **27**, 388–396 (1981).
109. M'chirgui, A., Tadrist, H. & Tadrist, L. Experimental investigation of the instabilities in a fluidized bed origin of the pressure fluctuations. *Phys. Fluids* **9**, 500–509 (1997).
110. Van der Schaaf, J., Schouten, J. C. & Van den Bleek, C. M. Origin, propagation and attenuation of pressure waves in gas-solid fluidized beds. **95**, 220–233 (1998).
111. Davidson, J.F & Harrison, D. *Fluidized Particles*. (1963).
112. Van der Schaaf, J., Schouten, J. C., Johnsson, F. & Van den Bleek, C. M. Non-intrusive determination of bubble and slug length scales in fluidized beds by decomposition of the power spectral density of pressure time series. *Int. J. Multiph. Flow* **28**, 865–880 (2002).
113. Kage, H., Iwasaki, N., Yamaguchi, H. & Matsuno, Y. Frequency Analysis of Pressure Fluctuation in Fluidized Bed Plenum. **24**, 76–81 (1991).
114. Baskakov, A. P., TuPONOGOV, V. G. & Filippovsky, N. F. A study of pressure fluctuations in a bubbling fluidized bed. *Powder Technol.* **45**, 113–117 (1986).
115. Sasic, S., Johnsson, F. & Leckner, B. Interaction between a Fluidized Bed and Its Air-Supply System: Some Observations. *Ind Eng Chem Res* **43**, 5730–5737 (2004).
116. Mostoufi, N. & Chaouki, J. Flow structure of the solids in gas–solid fluidized beds. *Chem. Eng. Sci.* **59**, 4217–4227 (2004).
117. Radmanesh, R., Chaouki, J. & Guy, C. Biomass gasification in a bubbling fluidized bed reactor: Experiments and modeling. *AIChE J.* **52**, 4258–4272 (2006).
118. Ergun, S. Fluid flow through packed columns. *Chem Eng Prog* **48**, 89 (1952).
119. Sharma, A., Wang, S., Pareek, V., Yang, H. & Zhang, D. CFD modeling of mixing/segregation behavior of biomass and biochar particles in a bubbling fluidized bed. *Chem. Eng. Sci.* **106**, 264–274 (2014).
120. Di Renzo, A. & Di Maio, F. P. Homogeneous and bubbling fluidization regimes in DEM–CFD simulations: Hydrodynamic stability of gas and liquid fluidized beds. *Chem. Eng. Sci.* **62**, 116–130 (2007).
121. Pepiot, P., Dibble, C. J. & Foust, T. D. Computational Fluid Dynamics Modeling of Biomass Gasification and Pyrolysis. in (American Chemical Society, 2010).
122. Ocone, R. & Delebarre, A. Predicting the similar profile regime of upflowing gas-solid suspensions. **80**, 631–636 (2002).
123. Makkawi, Y. T., Wright, P. C. & Ocone, R. The effect of friction and inter-particle cohesive forces on the hydrodynamics of gas–solid flow: A comparative analysis of theoretical predictions and experiments. *Powder Technol.* **163**, 69–79 (2006).

124. Hillgardt, K. & Werther, J. Local bubble gas hold-up and expansion of gas/solid fluidized beds. *Ger. Chem Eng* **9**, 215–221 (1986).
125. Rowe, P. N., Santoro, L. & Yates, J. G. The division of gas between bubble and interstitial phases in fluidised beds of fine powders. *Chem. Eng. Sci.* **33**, 133–140 (1978).
126. Wen, C. Y. & Yu, Y. H. A generalized method for predicting the minimum fluidization velocity. *AIChE J.* **13**, 610–612 (1966).
127. Bourgeois, P. & Grenier, P. The ratio of terminal velocity to minimum fluidising velocity for spherical particles. *Can. J. Chem. Eng.* **46**, 325–328 (1968).
128. Grace, J. R. in *handbook of multiphase systems* 1–8 (1982).
129. Chitester, D. C., Kornosky, R. M., Fan, L.-S. & Danko, J. P. Characteristics of fluidization at high pressure. *Chem. Eng. Sci.* **39**, 253–261 (1984).
130. Babu, S. P., Shah, B. & Talwalkar, A. Fluidization Correlations for Coal Gasification Materials-Minimum Fluidization Velocity and Fluidization Bed Expansion Ratio. in *AIChE Symposium series* **74**, 176–186 (American Institute of Chemical Engineers, 1978).
131. Saxena, S. C. & Vogel, G. J. measurement of incipient fluidisation velocities in a bed of coarse dolomite at temperature and pressure. *Trans. Inst. Chem. Eng.* **55**, 184–189 (1977).
132. Thonglimp, V. Contribution à l'étude hydrodynamique des couches fluidisées par un gaz. Vitesse minimale de fluidisation et expansion. (INP Toulouse, 1981).
133. Adáñez, J. & Abanades, J.C. Minimum fluidization velocities of fluidized-bed coal-combustion solids. *Powder Technol.* **67**, 113–119 (1991).
134. Rhodes, M. J. *Introduction to Particle Technology, 2nd Edition.* (2008).
135. Miwa K., Mori S., Kato T. & Muchi I. Behavior of Bubbles in Gaseous Fluidized Bed. *Chem. Eng.* **35**, 770–773 (1971).
136. Karimipour, S. & Pugsley, T. A critical evaluation of literature correlations for predicting bubble size and velocity in gas–solid fluidized beds. *Powder Technol.* **205**, 1–14 (2011).
137. Cai, P., Schiavetti, M., De Michele, G., Grazzini, G. C. & Miccio, M. Quantitative estimation of bubble size in PFBC. *Powder Technol.* **80**, 99–109 (1994).
138. Darton, R. C., La Nauze, R. D., Davidson, J. F. & Harrison, D. Bubble growth due to coalescence in fluidised beds. *Trans. Inst. Chem. Eng.* **55**, 274–280 (1977).
139. Choi, J.-H., Son, J.-E. & Kim, S.-D. Generalized Model for Bubble Size and Frequency in Gas-Fluidized Beds. *Ind. Eng. Chem. Res.* **37**, 2559–2564 (1998).
140. Mori, S. & Wen, C. Y. Estimation of bubble diameter in gaseous fluidized beds. *AIChE J.* **21**, 109–115 (1975).
141. Agarwal, P. K. Effect of bed diameter on bubble growth and incipient slugging in gas fluidised beds. *Chem. Eng. Res. Des.* **65**, 345–354 (1987).
142. Davies, R. M. & Taylor, G. The Mechanics of Large Bubbles Rising through Extended Liquids and through Liquids in Tubes. *Proc. R. Soc. Lond. Ser. Math. Phys. Sci.* **200**, 375–390 (1950).
143. Davidson, J. F., Pearson, J. R. A. & Vanoni, V. A. Report on the IUTAM Symposium on the flow of fluid-solid mixtures. *J. Fluid Mech.* **39**, 375–405 (1969).
144. Wallis, G. B. *One-dimensional two-phase flow.* (McGraw-Hill, 1969).
145. Allahwala, S. A. & Potter, O. E. Rise Velocity Equation for Isolated Bubbles and for Isolated Slugs in Fluidized Beds. *Ind. Eng. Chem. Fundam.* **18**, 112–116 (1979).
146. Werther, J. Effect of gas distributor on the hydrodynamics of gas fluidized beds. *Ger. Chem Eng* **1**, 166–173 (1978).

147. Toomey, R. D. & Johnstone, H. F. Gaseous fluidization of solid particles. *Chem Eng Prog* **48**, 220 (1952).
148. Zijerveld, R. C., Koniuta, A., Johnsson, F., Marzocchella, A., Schouten, J. C. & Van den Bleek, C. M. Axial solids distribution and bottom bed dynamics for circulating fluidized bed combustor application. in *AIChE Symposium Series* **93**, 97–102 (New York, NY: American Institute of Chemical Engineers, 1971-c2002., 1997).
149. Johnsson, F., Andersson, S. & Leckner, B. Expansion of a freely bubbling fluidized bed. *Powder Technol.* **68**, 117–123 (1991).
150. Gibilaro, L. G. & Rowe, P. N. A model for a segregating gas fluidised bed. *Chem. Eng. Sci.* **29**, 1403–1412 (1974).
151. Nienow, A.W & Chiba, T. in *Fluidization 2nd ed* (J.F Davidson, R.Clift and Harrison, 1985).
152. Pallares, D. & Johnsson, F. Macroscopic modelling of fluid dynamics in large-scale circulating fluidized beds. *Prog. Energy Combust. Sci.* **32**, 539–569 (2006).
153. Christodoulou, M. Pyrolyse de bois dans les conditions d'un lit fluidisé: Étude expérimentale et modélisation. (Université de Lorraine, 2013).
154. Authier, O., Cluet, B., Delebarre, A. & Mauviel, G. Product Yields and Kinetics of Biomass Fast Devolatilization: Experiments and Modeling. *Chem. Eng. Trans.* **37**, 199–204 (2014).
155. Ranzi, E., Corbetta, M., Manenti, F. & Pierucci, S. Kinetic modeling of the thermal degradation and combustion of biomass. *Chem. Eng. Sci.* **110**, 2–12 (2014).
156. Merrick, D. Mathematical models of the thermal decomposition of coal: 2. Specific heats and heats of reaction. *Fuel* **62**, 540–546 (1983).
157. Thunman, H. & Leckner, B. Thermal conductivity of wood—models for different stages of combustion. *Biomass Bioenergy* **23**, 47–54 (2002).
158. Corbetta, M., Frassoldati, A., Bennadji, H., Smith, K., Serapiglia, M. J., Gauthier, G., Melkior, T., Ranzi, E. & Fisher, E. M. Pyrolysis of Centimeter-Scale Woody Biomass Particles: Kinetic Modeling and Experimental Validation. *Energy Fuels* **28**, 3884–3898 (2014).
159. Abdelouahed, L., Authier, O., Mauviel, G., Corriou, J. P., Verdier, G. & Dufour, A. Detailed Modeling of Biomass Gasification in Dual Fluidized Bed Reactors under Aspen Plus. *Energy Fuels* **26**, 3840–3855 (2012).
160. Van de steene, L., Tagutchou, J. P., Escudero Sanz, F. J. & Salvador, S. Gasification of woodchip particles: Experimental and numerical study of char–H₂O, char–CO₂, and char–O₂ reactions. *Chem. Eng. Sci.* **66**, 4499–4509 (2011).
161. Biggs, M. J. & Agarwal, P. K. The CO/CO₂ product ratio for a porous char particle within an incipiently fluidized bed: a numerical study. *Chem. Eng. Sci.* **52**, 941–952 (1997).
162. Jess, A. Mechanisms and kinetics of thermal reactions of aromatic hydrocarbons from pyrolysis of solid fuels. **75**, 1441–1448 (1996).
163. Morf, P. Hasler, P. & Nussbaumer, T. Mechanisms and kinetics of homogeneous secondary reactions of tar from continuous pyrolysis of wood chips. *Fuel* **81**, 843–853 (2002).
164. Bustamante, F. *et al.* High-temperature kinetics of the homogeneous reverse water–gas shift reaction. *AIChE J.* **50**, 1028–1041 (2004).
165. Bustamante, F., Enick, R. M., Killmeyer, R. P., Howard, B. H., Rothenberger, K. S., Cugini, A. V., Morreale, B. D. & Ciocco, M. V. Uncatalyzed and wall-catalyzed forward water–gas shift reaction kinetics. *AIChE J.* **51**, 1440–1454 (2005).

166. Andersen, J., Jensen, P. A., Hvid, S. L. & Glarborg, P. Experimental and Numerical Investigation of Gas-Phase Freeboard Combustion. Part 2: Fuel NO Formation. *Energy Fuels* **23**, 5783–5791 (2009).
167. Marinov, N. M., Westbrook, C. K. & Pitz, W. J. *Detailed and Global Chemical Kinetics Model for Hydrogen*. (Lawrence Livermore National Lab., CA (United States), 1995).
168. Wang, L., Liu, Z., Chen, S. & Zheng, C. Comparison of Different Global Combustion Mechanisms Under Hot and Diluted Oxidation Conditions. *Combust. Sci. Technol.* **184**, 259–276 (2012).
169. Westbrook, C. K. & Dryer, F. L. Simplified reaction mechanisms for the oxidation of hydrocarbon fuels in flames. *Combust. Sci. Technol.* **27**, 31–43 (1981).
170. Kaknics, J. Gazéification de la biomasse en lit fluidisé bouillonnant: interactions à haute température entre les composés inorganiques et les matériaux granulaires. (2014).
171. Lees, G. The measurement of particle shape and its influence in engineering materials. *J. Br. Granite Whinestone Fed.* 1–22 (1964).
172. Zingg. Beitrag zur Schotteranalys. *Schweiz. Mineral. Petrogr. Mitteilungen* **15**, 39–140 (1935).
173. Geldart, D. Types of gas fluidization. *Powder Technol.* **7**, 285–292 (1973).
174. Haider, A. & Levenspiel, O. Drag coefficient and terminal velocity of spherical and nonspherical particles. *Powder Technol.* **58**, 63–70 (1989).
175. Jand, N. & Foscolo, P. U. Decomposition of Wood Particles in Fluidized Beds. **44**, 5079–5089 (2005).
176. Shen, L., Xiao, J., Niklasson, F. & Johnsson, F. Biomass mixing in a fluidized bed biomass gasifier for hydrogen production. *Chem. Eng. Sci.* **62**, 636 – 643 (2007).
177. Shi, Y. F. & Fan, L. T. Lateral mixing of solids in batch gas-solids fluidized beds. *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.* **23**, 337–341 (1984).
178. Müller, C. R., Davidson, J. F., Dennis, J. S. & Hayhurst, A. N. A Study of the Motion and Eruption of a Bubble at the Surface of a Two-Dimensional Fluidized Bed Using Particle Image Velocimetry (PIV). *Ind. Eng. Chem. Res.* **46**, 1642–1652 (2007).
179. Davidson, J. F. & Harrison, D. *Fluidized Particles*. (1963).
180. Francois, J., Abdelouahed, L., Mauviel, G., Patisson, F., Mirgaux, O., Rogaume, C., Rogaume, Y., Feidt, M. & Dufour, A. Detailed process modeling of a wood gasification combined heat and power plant. *Biomass Bioenergy* **51**, 68–82 (2013).
181. Ranzi, E., Frassoldati, A., Grana, R., Cuoci, A., Faravelli, T., Kelley, A. P. & Law, C. K. Hierarchical and comparative kinetic modeling of laminar flame speeds of hydrocarbon and oxygenated fuels. *Prog. Energy Combust. Sci.* **38**, 468–501 (2012).
182. Werther, J. & Wein, J. Expansion Behavior of Gas Fluidized Beds in the Turbulent Regime. *AIChE Symp. J.* **90**, 31–44 (1994).
183. George, S. E. & Grace, J. R. Entrainment of particles from aggregative fluidized beds. *AIChE Symp. Ser.* 67–73 (1978).
184. Geldart, D., Cullinan, J., Georghiades, S., Gilvray, D. & Pope, D. J. The effect of fines on entrainment from gas fluidized beds. *Trans. Inst. Chem. Eng.* 269–275 (1979).
185. Bryden, K. M. & Hagge, M. J. Modeling the combined impact of moisture and char shrinkage on the pyrolysis of a biomass particle☆. *Fuel* **82**, 1633–1644 (2003).
186. Calonaci, M., Grana, R., Barker Hemings, E., Bozzano, G., Dente, M. & Ranzi, E. Comprehensive Kinetic Modeling Study of Bio-oil Formation from Fast Pyrolysis of Biomass. *Energy Fuels* **24**, 5727–5734 (2010).

187. Jones, W. P. & Lindstedt, R. P. Global reaction schemes for hydrocarbon combustion. *Combust. Flame* **73**, 233–249 (1988).
188. Gomez-Barea, A. & Leckner, B. Modeling of biomass gasification in fluidized bed. *Prog. Energy Combust. Sci.* **36**, 444–509 (2010).
189. Analyse granulométrique: Méthodes par diffraction laser, ISO 13320. (2009).
190. Delebarre, A. Influence du protocole d'analyse granulométrique sur le réglage d'un broyeur. *Spectra Analyse.* **27**, 23–27 (1998).
191. Besançon, P., Chastang, J. & Lafaye, A. Conversion dimensionnelle des distributions granulaires. *Surfaces* **2**, 73–80 (1988).

Table des figures

Figure 1 : répartition du mix énergétique mondial final	13
Figure 2 : répartition du mix énergétique français primaire	15
Figure 3 : répartition de la production d'énergie renouvelable thermique en France	16
Figure 4 : le mix électrique français en 2013	17
Figure 5 : cellulose.....	20
Figure 6 : monomères des hémicelluloses	20
Figure 7 : exemple de lignine	21
Figure 8 : différents composants représentant la lignine ⁷	21
Figure 9 : diagramme du procédé de gazéification EQTEC ⁸	28
Figure 10 : évolution d'un lit de solide granulaire sous l'action d'un flux de gaz	29
Figure 11 : évolution de la perte de charge d'un lit de particules en fonction de la vitesse.....	30
Figure 12 : diagramme de Geldart ³¹	31
Figure 13 : bulle dans un lit fluidisé ³³	32
Figure 14 : passage au régime pistonnant ou "slugging regime"	32
Figure 15 : renardage.....	33
Figure 16 : spouted-bed.....	34
Figure 17 : schéma d'un lit fluidisé dense de gazéification de biomasse	35
Figure 18 : mesure de la vitesse minimum de fluidisation.....	36
Figure 19 : représentation de quelques vitesses caractéristiques de la fluidisation de mélanges binaires dans la littérature ⁴³	37
Figure 20 : quelques exemples de distributeurs de gaz de fluidisation	40
Figure 21 : quelques exemples de tuyères	40
Figure 22 : impact du distributeur sur le bullage.....	41
Figure 23 : évolution du mélange et de la ségrégation pour des vitesses inférieures à la vitesse de fluidisation totale	43
Figure 24 : vortex au sein du réacteur	44
Figure 25 : évolution du mélange et de la ségrégation selon la vitesse de fluidisation	45
Figure 26 : mélange de petites particules	47
Figure 27 : impact du distributeur sur les mélanges	48
Figure 28 : schématisation de la théorie à deux phases.....	56
Figure 29 : schéma de présentation de la maquette froide	72
Figure 30 : boîte à vent	74
Figure 31 : distributeur de type grille perforée.....	75

Figure 32 : distributeur d'air à tuyères de type EQTEC.....	75
Figure 33 : évolution de la perte de charge des grilles de fluidisation en fonction du débit d'alimentation exprimé en vitesse superficielle dans le réacteur.....	76
Figure 34 : les deux corps de réacteur utilisés dans cette étude.....	77
Figure 35 : vue en coupe du système boîte à vent / réacteur	78
Figure 36 : matrice d'aluminium de collecte de l'électricité statique	79
Figure 37 : montage complet de la maquette froide.....	79
Figure 38 : séparation en deux lots de l'olivine neuve par tamisage	82
Figure 39 : présentation d'une particule d'une poudre.....	84
Figure 40 : image d'une particule d'olivine.....	84
Figure 41 : granulométrie de l'olivine livrée (- - Moyenne des expériences).....	87
Figure 42 : granulométrie olivine grossière (- - Moyenne des expériences).....	88
Figure 43 : granulométrie par analyse d'images.....	89
Figure 44 : granulométrie et comparaison des diamètres moyens	89
Figure 45 : granulométrie Malvern modifiée	90
Figure 46 : granulométrie de l'olivine grossière et ses différents diamètres moyens	90
Figure 47 : granulométrie de l'olivine fine et les différents diamètres moyens	91
Figure 48 : comparaison de la distribution granulométrique des olivines (—fine, —grossière)	91
Figure 49 : grains d'olivine	92
Figure 50 : estimation de la sphéricité de l'olivine grossière	93
Figure 51 : estimation de la sphéricité de l'olivine fine	93
Figure 52 : les olivines dans la classification de Geldart ¹⁷³ (×fine , + grossière).....	95
Figure 53 : vitesse minimum de fluidisation des olivines	95
Figure 54 : particules de bois	99
Figure 55 : installation d'imprégnation du charbon.....	103
Figure 56 : dévolatilisation simulée par la vaporisation de l'azote liquide imprégnée dans une particule de charbon de bois.....	104
Figure 57 : cas d'injection de la biomasse	107
Figure 58 : état du lit avant prémélange rapide (a) et après prémélange rapide (b)	107
Figure 59 : comparaison des vitesses d'arrêt de la fluidisation	108
Figure 60 : tamisage d'une tranche prélevée	109
Figure 61 : prélèvement tranche par tranche.....	110
Figure 62 : détail de la tranche sous le premier capteur.....	113
Figure 63 : évolution de la pression en fonction de la hauteur.....	118

Figure 64 : principe de restauration de l'expansion du lit par le calcul.....	119
Figure 65 : répartition du bois au repos (mesurée) et fluidisé (calculée)	119
Figure 66 : représentation schématique des calculs.....	120
Figure 67 : schéma de la maquette chaude du LRGP.....	122
Figure 68: porosité du lit fluidisé d'olivine fine.....	124
Figure 69 : porosité du lit fluidisé d'olivine grossière.....	125
Figure 70 : porosité d'un lit fluidisé d'olivine grossière en maquette chaude.....	126
Figure 71 : porosité du lit fluidisé d'olivine grossière à faible vitesse sur la maquette froide et sur la maquette chaude à différentes températures (21°C, 200°C, 400°C).....	127
Figure 72 : impact de la vitesse pour un mélange de 7.5% en volume de tourillons de hêtre fluidisé avec de l'olivine fine.....	130
Figure 73 : impact de la fraction de bois sur la ségrégation en lit fluidisé composé d'olivine fine et de tourillons de hêtre et comparaison avec un mélange homogène	131
Figure 74 : impact de la forme des particules de biomasse(hêtre) sur le mélange dans un lit fluidisé d'olivine grossière.....	132
Figure 75 : impact de la densité de la biomasse pour des lits fluidisés d'olivine grossière contenant des chips de hêtre ou de balsa	133
Figure 76 : impact de la taille de la biomasse pour des lit fluidisés d'olivine grossière contenant des chips de balsa de tailles différentes à (a) 2.14 U_{mf} , (b) 3.35 U_{mf}	134
Figure 77 : impact de la granulométrie de l'olivine sur la ségrégation dans un mélange avec 7.5% en volume de tourillons de hêtre fluidisé à 2.7 U_{mf}	135
Figure 78 : impact de la masse du lit sur la répartition de la biomasse pour un lit fluidisé d'olivine grossière à 2.7 U_{mf} contenant des tourillons de hêtre.....	136
Figure 79 : impact de la vitesse de fluidisation pour un lit fluidisé d'olivine fine avec ou sans tourillons de hêtre.....	137
Figure 80 : impact de la fraction de biomasse pour un lit fluidisé d'olivine fine avec ou sans tourillons de hêtre.....	138
Figure 81 : impact de la forme des particules de biomasse pour des lits fluidisés d'olivine grossière avec ou sans chips ou tourillons de hêtre	138
Figure 82 : impact de la masse volumique des particules de biomasse dans le cas de lits fluidisés d'olivine grossière avec ou sans chips de balsa ou de hêtre	139
Figure 83 : impact de la taille des particules de biomasse sur la porosité de lits fluidisés d'olivine grossière avec ou sans balsa (8.7%)	140
Figure 84 : impact des bulles à proximité du distributeur	141

Figure 85 : schéma de l'impact de la fraction de biomasse sur la formation d'enchevêtrement des particules de biomasse	142
Figure 86 : cellules du modèle hydrodynamique de mélange des particules.....	150
Figure 87 : pression expérimentale et modélisée pour la maquette froide (— modèle, ◇ expérience) pour les olivines grossière et fine	154
Figure 88 : profil axial de porosité déduit des mesures en maquette froide et calculé par le modèle (— modèle, ◇ expérience).....	156
Figure 89 : comparaison de la répartition de biomasse mesurée et calculée par le modèle d'après Fotovat et al. (— modèle, ◇ expérience)	157
Figure 90 : comparaison du profil axial de répartition de la biomasse mesurée et calculée par le modèle modifié d'après Fotovat et al. (— modèle, ◇ expérience).....	159
Figure 91 : schéma de principe des écoulements gaz-solides dans le réacteur.....	167
Figure 92 : représentation Aspen Plus® du modèle.....	167
Figure 93 : consigne et mesures de température.....	170
Figure 94 : profil de pression expérimental et modélisé pour la maquette froide (— modèle, ◇ expérience)	176
Figure 95 : profil de porosité expérimental et modélisé pour la maquette froide (— modèle, ◇ expérience)	177
Figure 96 : profils de pression expérimentaux et modélisés (maquette chaude).....	179
Figure 97 : porosité expérimentale et modélisée pour la maquette chaude	180
Figure 98 : évolution de la température avec la hauteur	181
Figure 99 : cas d'étude de l'impact de la ségrégation du bois.....	183
Figure 100 : injection du gaz de pyrolyse dans le haut du lit.....	184
Figure 101 : injection du gaz de pyrolyse dans le bas du lit	185
Figure 102 : injection du gaz de pyrolyse de manière homogène dans le lit.....	186
Figure 103 : injection du gaz de pyrolyse suivant un profil de ségrégation	187
Figure 104 : composition des gaz en sortie du réacteur.....	188
Figure 105 : fraction de charbon par tranche à la fin d'un essai de gazéification sur le pilote du LRGP (mesure par prélèvement).....	189
Figure 106 : injecteur de biomasse.....	218
Figure 107 : corps de l'injecteur	219
Figure 108 : piston d'injection de la biomasse	219
Figure 109 : piston PVC.....	220
Figure 110 : volet guillotine d'étanchéification de l'injecteur de biomasse	221

Figure 111 : trappe supérieure	221
Figure 112 : différentes positions de la trappe supérieure.....	221
Figure 113 : injecteur avant injection.....	222
Figure 114 : injecteur après injection.....	222
Figure 115 : mesure de la vitesse et écoulement du fluide	223
Figure 116 : boîtier d'acquisition NI-USB-6009	224
Figure 117 : capteurs de pression de marque Honeywell	225
Figure 118 : capture d'écran du logiciel LABVIEW	226
Figure 119 : photo du Mastersizer 2000.....	230
Figure 120 : figure de diffraction de Fraunhofer	231
Figure 121 : description du banc optique de l'appareil et de son principe.....	232
Figure 122 : grains d'olivine	232
Figure 123 : photographie d'olivine au microscope	233
Figure 124 : comptage des particules.....	234
Figure 125 : division des agglomérats.....	234
Figure 126 : représentation des diamètres évalués par analyse d'images.....	235

Table des tableaux

Tableau 1 : mix énergétique électrique EnR en France et ses objectifs	17
Tableau 2 : valeurs des constantes pour diverses corrélations de même forme que celle proposée par Wen et Yu ¹²⁶	59
Tableau 3 : corrélation de calcul de la taille des bulles dans un lit fluidisé.....	62
Tableau 4 : vitesse de montée d'une bulle isolée ¹³⁶	63
Tableau 5 : corrélations de vitesses moyenne de montée des bulles ¹³⁶	64
Tableau 6 : corrélations de la correction de la théorie à deux phases.....	65
Tableau 7 : coefficients cinétiques des réactions ¹⁶⁰	68
Tableau 8 : fonctions de surface à 900°C ¹⁶⁰	68
Tableau 9 : schéma cinétique des réactions homogènes hors oxydation directe	68
Tableau 10 : réactions d'oxydation des gaz légers	69
Tableau 11 : composition chimique ¹⁷⁰ de l'olivine Sibelco	81
Tableau 12 : caractéristiques physiques de l'olivine.....	82
Tableau 13 : masse volumique et porosité de l'olivine.....	86
Tableau 14 : résumé des caractéristiques des olivines.....	96
Tableau 15 : caractéristiques physiques des particules de bois	102
Tableau 16 : paramètres des essais.....	111
Tableau 17 : récapitulatif de la ségrégation observée au cours des essais	143
Tableau 18 : comparaison des porosités moyennes du lit calculées par le modèle avec celles déduites des expériences	155
Tableau 19 : cinétiques des réactions hétérogènes	172
Tableau 20 : cinétiques des réactions homogènes	173
Tableau 21 : granulométrie (1,0) par analyse d'images de l'olivine grossière.....	237
Tableau 22 : distribution granulométrique en volume par analyse Malvern, translatée pour obtenir le même diamètre moyen d(1,3) que celui obtenu par l'analyse d'images.....	238
Tableau 23 : tailles de chaque particule (par ligne) par analyse d'images	239
Tableau 24 : constantes cinétiques et chaleurs des réactions d'après Corbetta et al. ¹⁵⁸	241
Tableau 25 : composition de la biomasse	243

Annexes

Annexe 1 : informations supplémentaires sur la maquette froide

A. Système d'injection de la biomasse

Un système d'injection de biomasse au sein du lit a été conçu et fabriqué dans les laboratoires partenaires du projet. Ce système doit permettre d'injecter de la biomasse dans le bas du lit lorsqu'il est en fluidisation. Pour réaliser cela, plusieurs solutions techniques ont été envisagées. Dans le cas des réacteurs de gazéification, l'alimentation en biomasse est généralement effectuée par une vis sans fin ce qui permet une alimentation continue en biomasse. Pour notre étude en réacteur froid nous avons utilisé un système d'alimentation de la biomasse en batch pour des questions de faisabilité avec les moyens disponibles au laboratoire. Afin de ne pas perturber l'hydrodynamique du lit, il a été décidé de concevoir un système d'injection non traversant c'est-à-dire sans pièce restant en permanence au sein du réacteur. Notre choix s'est donc porté vers un système avec un vérin d'alimentation. Celui-ci a l'avantage d'être non seulement « relativement simple » mais il permet également d'injecter un gros volume de bois (environ 9 litres) en un temps relativement faible (de l'ordre de 2 secondes). Cette rapidité d'injection est importante car ce système a été prévu pour réaliser des essais avec des particules « actives » dévolatilisables à température ambiante (voir paragraphe III.4). Si le temps d'injection est trop important les particules débutent la dévolatilisation avant d'être dans le réacteur.

Le vérin d'alimentation de biomasse est représenté en Figure 106. Il est fixé au corps du réacteur à l'aide de brides. Les deux composants principaux du vérin sont le cylindre et le piston, le piston coulissant dans le cylindre de section rectangulaire. Le remplissage de la chambre du vérin s'effectue au niveau de la face supérieure du cylindre. Après remplissage, cette face est fermée par une trappe.

Pour permettre l'injection de la biomasse dans le lit, le cylindre possède une ouverture qui donne sur le corps du réacteur. Le contrôle de cette ouverture s'effectue à l'aide d'un volet de type guillotine. Ce volet garantit également l'étanchéité entre le cylindre et le corps du réacteur avant l'injection.

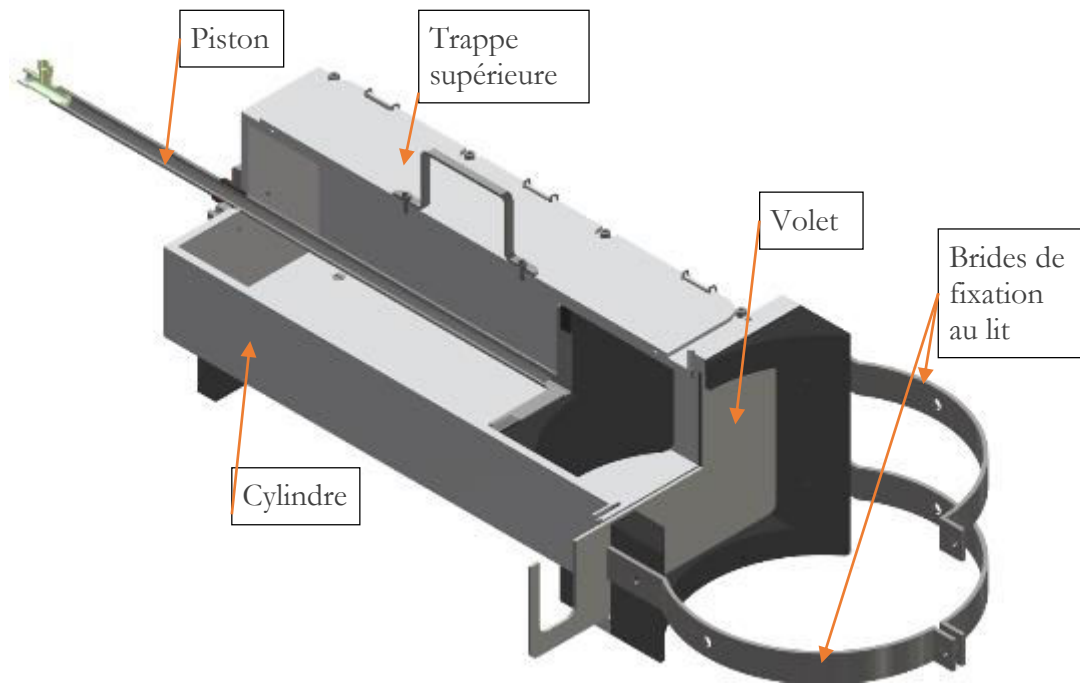


Figure 106 : injecteur de biomasse

Le corps de l'injecteur (Figure 107) est fabriqué en aluminium. L'ensemble des éléments sont maintenues par vissage, un joint de silicone est utilisé pour effectuer l'étanchéité entre les différentes plaques. Six fermetures à leviers sont installées de part et d'autre du corps, elles permettent de maintenir la trappe supérieure en compression sur le joint torique. Un système de brides permet de garantir une unité physique entre le réacteur et l'injecteur. L'étanchéité entre le réacteur et l'injecteur est réalisée par un joint plat compressé à l'aide des brides. Un usinage est prévu pour permettre le passage du volet.

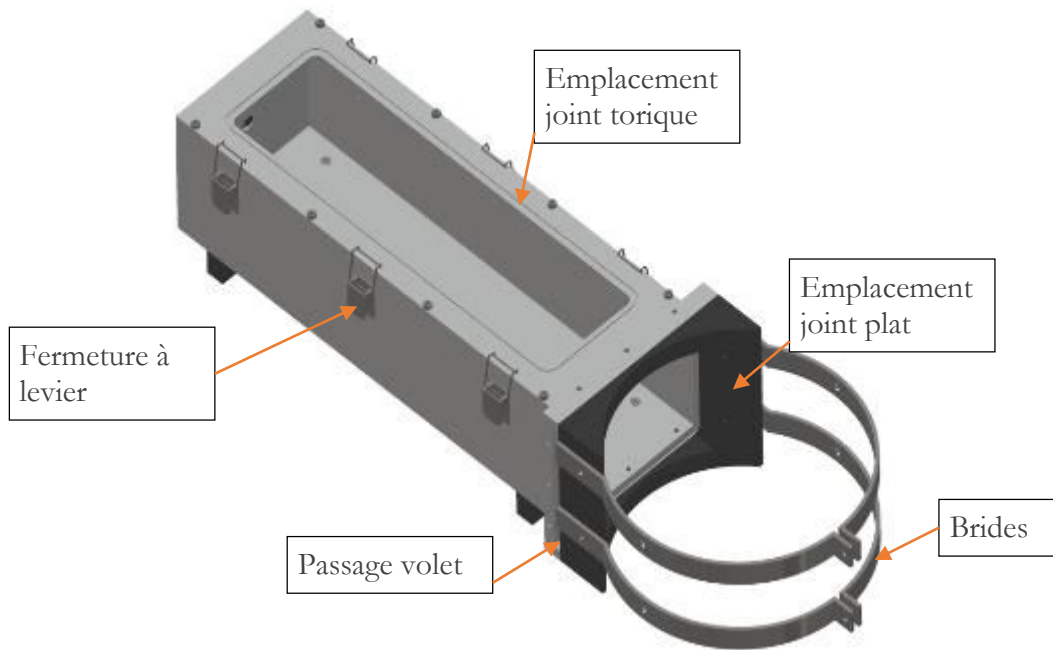


Figure 107 : corps de l'injecteur

Le piston est actionné à l'aide d'un vérin à air comprimé.

L'axe du piston est un tube en acier inoxydable. Ce tube à deux fonctions :

- effectuer la liaison entre le vérin pneumatique et la tête du piston ;
- injecter de l'air dans la tête du piston (entre le joint mousse et le poussoir en PVC) (Figure 108). L'air ainsi injecté permet de faciliter l'évacuation des particules qui se trouvent dans la chambre du vérin.

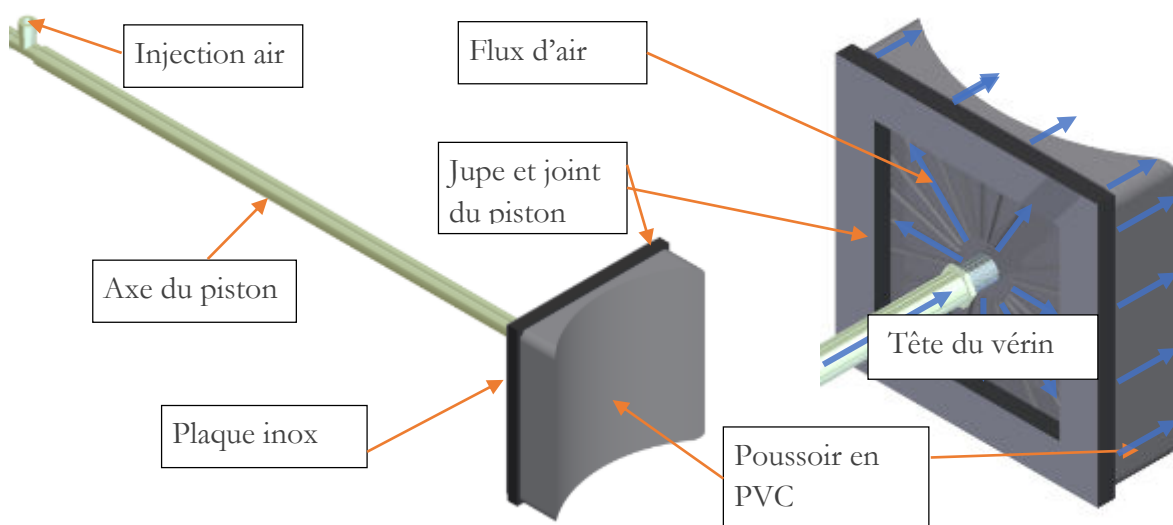


Figure 108 : piston d'injection de la biomasse

La tête du vérin est composée de trois principaux éléments : (1) une plaque en acier inoxydable, (2) un joint mousse et (3) un poussoir en PVC. La plaque en acier permet de rigidifier l'ensemble. Sur cette plaque est fixé le joint en mousse. Ce joint permet de maintenir l'étanchéité entre le vérin d'alimentation et le corps du réacteur. Le poussoir (Figure 109) est taillé dans un bloc parallélépipédique de PVC. Le rayon de courbure de la face incurvée est le même que celui du réacteur. Lorsque le vérin est en position fermée l'ensemble poussoir et réacteur forme un cylindre parfait. (Figure 114). La seconde face est usinée afin de créer un réseau de distribution de l'air injecté par le tube.

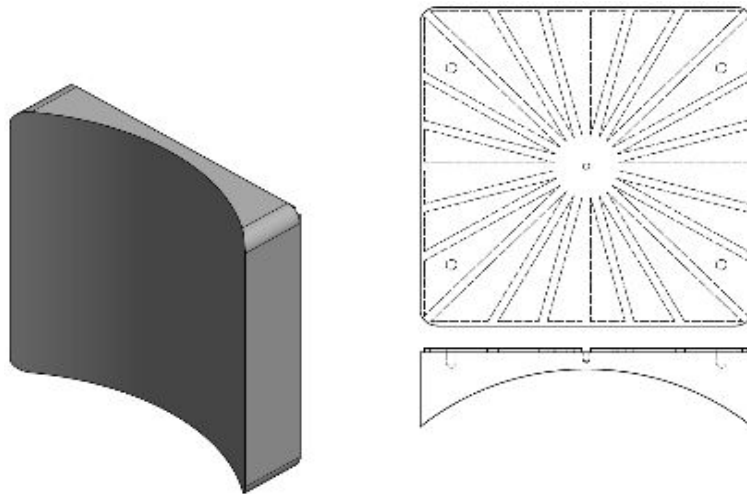


Figure 109 : piston PVC

Le volet guillotine (Figure 110) est une plaque en aluminium sur laquelle est collée une fine épaisseur de joint en mousse. Lors de la fluidisation avant l'injection de biomasse, ce volet assure l'étanchéité physique entre la chambre du vérin et le réacteur. Il s'actionne manuellement. Naturellement, pour permettre au piston d'injecter la biomasse dans le corps du réacteur, il est nécessaire d'ouvrir ce volet. Un taquet métallique permet de bloquer le volet en fin de course. Lorsque le volet est en position ouverte, le volet ne dépasse pas dans le corps du réacteur.

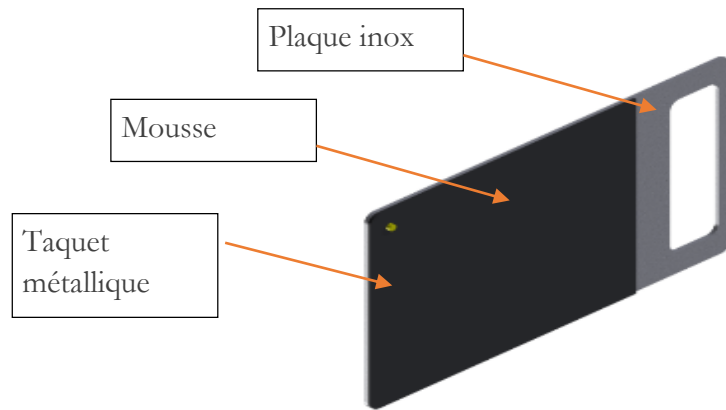


Figure 110 : volet guillotine d'étanchéification de l'injecteur de biomasse

Le vérin d'alimentation doit pouvoir être rempli rapidement en biomasse. Pour cela, il est nécessaire que la trappe d'accès à la chambre soit grande (Figure 111).

Pour que le mouvement du piston joue correctement son rôle, c'est à dire qu'il évacue le contenu de la chambre dans le réacteur, il faut que l'étanchéité entre les deux chambres du vérin soit élevée. Pour cela, un épaulement a été réalisé sur la face interne de la trappe (Figure 111). Ainsi, en position fermée, la section de cette chambre est constante.

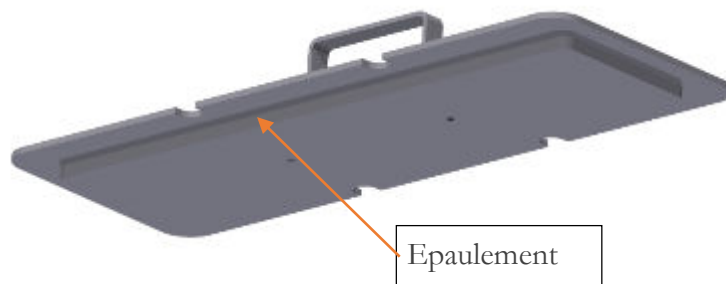


Figure 111 : trappe supérieure

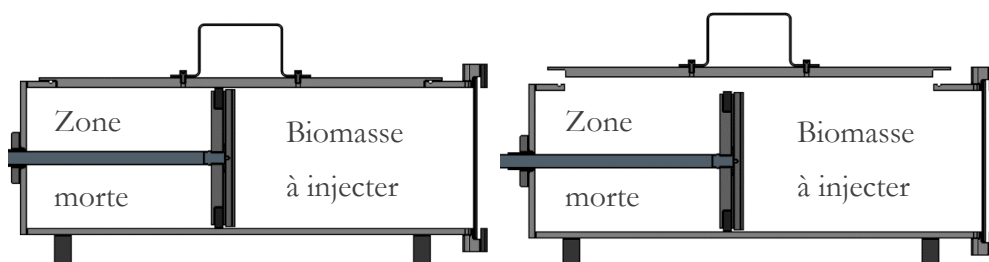


Figure 112 : différentes positions de la trappe supérieure

La figure ci-dessous (Figure 113) représente l'état de l'injecteur lors du remplissage de biomasse. Le couvercle est ouvert et le piston sorti. Le volet entre l'injecteur et le réacteur est fermé et étanche. On peut noter que la section du lit n'est pas cylindrique.

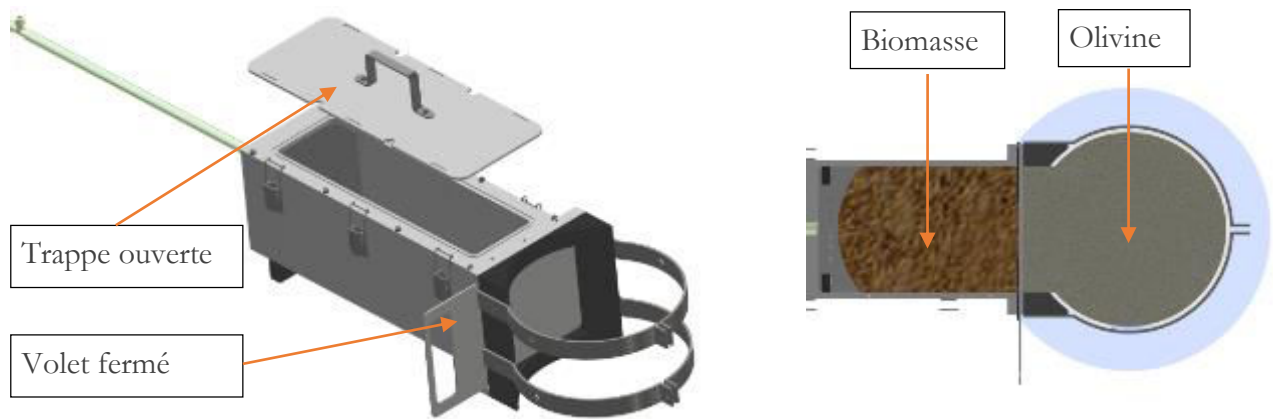


Figure 113 : injecteur avant injection

Lorsque l'injection est terminée (Figure 114), la trappe est fermée, le piston est sorti et le volet ouvert. La biomasse se retrouve mélangée au sein du lit et la section du réacteur est cylindrique.

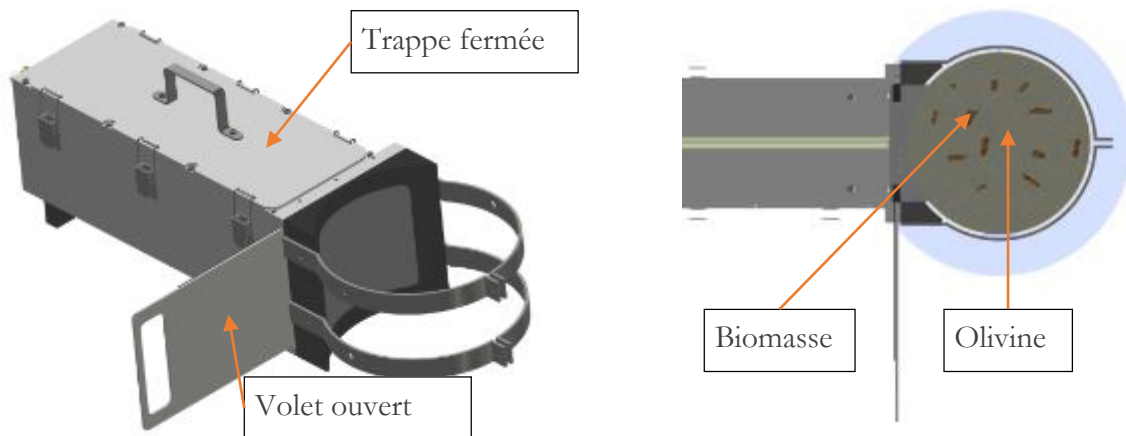


Figure 114 : injecteur après injection

B. Système d'évacuation de la poussière

Le matériau de lit utilisé pour les premiers essais est un sable à granularité dispersée. Le sable était utilisé tel que fourni par le fabricant. Comme nous le verrons plus loin, ce matériau contient environ 10 % en volume de particules de faible dimension ($<100\mu\text{m}$). Comme ces petites particules s'envolent lors de la fluidisation, un système d'aspiration est mis en place au-dessus du réacteur afin de les capter. L'extracteur utilisé n'est pas relié de manière étanche au réacteur afin d'éviter la mise en dépression du lit. Le schéma complet de la maquette froide est présenté à la Figure 37.

C. Instrumentation

○ Module d'acquisition AHLBORN

Le module AHLBORN permet l'acquisition de la vitesse de fluidisation ainsi que sa température. Le module d'acquisition est un ALMEMO® 8590-9. Cet appareil supporte 9 entrées pouvant recevoir différents types de capteurs. Nous utilisons deux types de capteurs : un anémomètre à fil chaud pour la vitesse et un thermocouple type K pour la température. Ce module d'acquisition est relativement lent avec un enregistrement se fait à 2 Hz.

▪ Anémomètre à fil chaud

L'anémomètre à fil chaud utilisé est un TSI 8455-075-1. Il est réglable en gamme de vitesse. Pour notre cas, la vitesse a été réglée sur 0-30m/s. Cet anémomètre a été contrôlé au cours des manipulations afin de vérifier la stabilité de l'appareil. La mesure de la vitesse moyenne du gaz est fiable seulement si l'anémomètre est placé au centre de la conduite et si l'écoulement est un écoulement turbulent car dans le cas d'un écoulement laminaire, la vitesse du fluide n'est pas homogène au sein de la conduite (Figure 115).

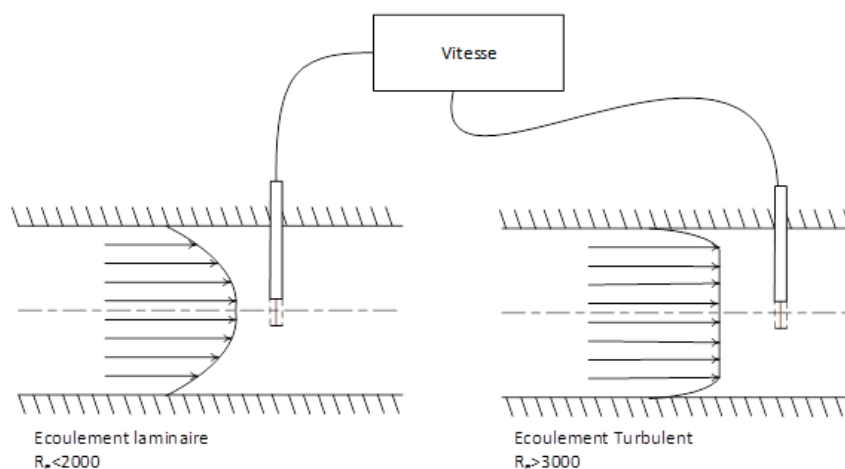


Figure 115 : mesure de la vitesse et écoulement du fluide

- **Thermocouple**

Le thermocouple utilisé est un type K. Sa gamme de fonctionnement est de -100°C à $+900^{\circ}\text{C}$. Ce thermocouple est branché via une prise ALMEMO spéciale thermocouple type K de référence ZA9020FS. La précision de la mesure est de 0.1°C .

- **Module d'acquisition de marque National Instruments**

Le module d'acquisition NI permet l'acquisition des capteurs de pression haute fréquence. Le boîtier utilisé est un NI USB-6009 présenté en Figure 116. C'est un boîtier à 8 entrées analogiques qui a une fréquence maximum de transfert des données de 48kHz. Il est alimenté en 12 V par une alimentation mobile. La connexion à l'ordinateur se fait par un câble USB.



Figure 116 : boîtier d'acquisition NI-USB-6009

Ce boîtier sert d'intermédiaire entre le PC et les capteurs de pression (Figure 117). Les capteurs de pression sont des capteurs de marque Honeywell. Deux types de capteurs ont été utilisés : un capteur ASXC05DN placé sous le distributeur d'air et sept capteurs « 140PC series » utilisés pour faire les mesures au sein du lit fluidisé. Le premier a une plage de mesure de 0-5 PSI, les autres de 0-1 PSI. Ces capteurs de pression ont été vérifiés à plusieurs reprises au cours de la thèse afin de valider la stabilité de leur mesure dans le temps.

Ils sont sensibles à la chauffe, c'est-à-dire qu'il est nécessaire de les laisser préchauffer avant utilisation afin d'éviter des erreurs de mesure. Les capteurs sont branchés en permanence durant les périodes de mesures.

Ces capteurs de pression sont des capteurs différentiels. Une borne est donc connectée sur le lit alors que l'autre borne est laissée à la pression ambiante. Comme expliqué précédemment, ces capteurs sont installés le long du réacteur tous les 50 mm, le premier étant disposé à 13 mm du distributeur.

Ces capteurs ont une fréquence d'acquisition de plus de 1 kHz. Cependant les mesures sont effectuées à seulement 16 Hz pour la majorité des essais. L'erreur maximale de ces capteurs est d'environ 70 Pa, avec une erreur standard d'environ 14 Pa.



140PC Series 0-1PSI



ASCX-05-DN 0-5PSI

Figure 117 : capteurs de pression de marque Honeywell

Les données issues de ces mesures sont directement enregistrées par le logiciel LabVIEW. Le signal, en millivolt, est uniquement converti en pression sans effectuer d'offset ou de modification par un coefficient. Il est cependant nécessaire d'effectuer un offset avant chaque essai. Cette manipulation se fait avec le logiciel d'acquisition présenté ci-dessous.

- **Logiciel d'acquisition LABVIEW**

Le logiciel d'acquisition codé sous LABVIEW permet d'effectuer l'acquisition simultanée et synchronisée des deux boîtiers d'acquisition. La fréquence d'acquisition n'étant pas la même, l'enregistrement des données se fait sur deux feuilles différentes. Les appareils transmettent les données toutes les 0.5 seconde. L'ALMEMO transfère une mesure de vitesse et de température alors que le NI transfère 8 mesures de pression pour chaque capteur soit 64 valeurs toutes les 0.5 seconde. A ces mesures de pression de vitesse et de température, le logiciel ajoute également des données de temps. A chaque itération il note le temps à laquelle l'itération est effectuée. Les données ainsi récupérées sont enregistrées au format « tdms », format développé par NI.

Avant de commencer l'acquisition il est nécessaire d'effectuer un offset à zéro des capteurs de pression. Une fonction programmée dans le logiciel permet de faire cela. Le logiciel enregistre pendant un temps choisi par l'utilisateur les données pour chacun des capteurs. Il utilise cette valeur moyenne comme étant la valeur de référence. Ainsi on mesure les variations de pression vis-à-vis de la pression de référence. Nous avons choisi un étalonnage systématique avant chaque essai afin

de limiter les dérives des capteurs. A la fin de l'essai, lorsque l'installation est à l'arrêt nous vérifions que les mesures de pression reviennent bien à zéro. Ce paramètre est important car ces capteurs peuvent avoir une dérive due à un changement d'alimentation ou de température.... Dans nos essais nous n'avons pas observé de différences entre la mesure en début d'expérience et en fin d'expérience.

Durant l'acquisition, le logiciel nous fournit un graphique déroulant permettant de voir l'évolution de la pression au cours du temps. Ce graphique est rafraîchi toute les secondes et effacé toutes les 30 secondes. La Figure 118 représente l'écran de contrôle de la manipulation. On peut y retrouver toutes les informations concernant l'évolution temporelle des mesures ainsi que les commandes propres au logiciel.

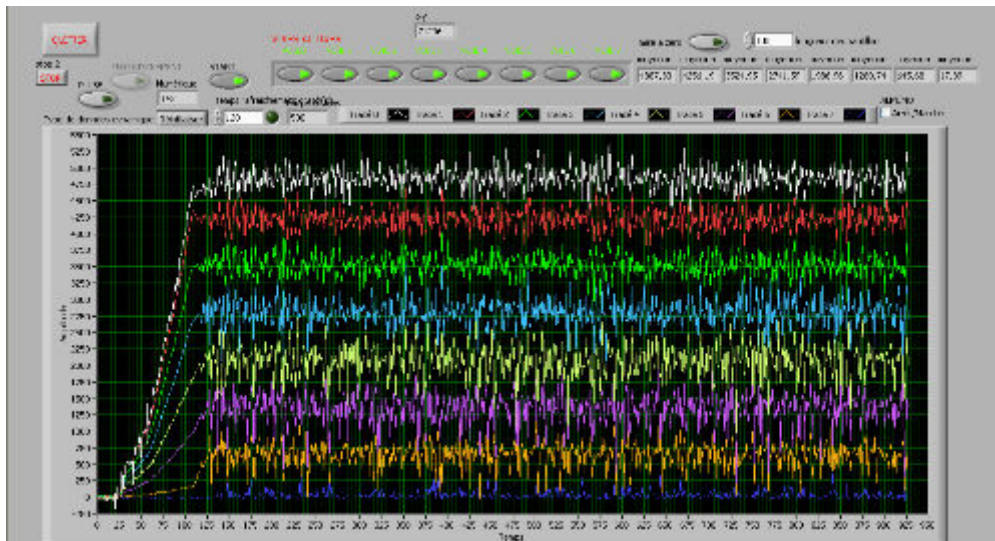


Figure 118 : capture d'écran du logiciel LABVIEW

Le logiciel LabVIEW fournit un fichier au format TDMS. Ce format de fichier est un format propriétaire de « National Instrument », il a l'intérêt d'enregistrer l'ensemble des données brutes ainsi que les métadonnées dans un fichier unique. Ce fichier peut être ouvert sous Excel (à l'aide d'un plug-in « TDM importer » qui peut être téléchargé sur le site de National Instrument). Lors de la transcription Excel génère un document comportant plusieurs feuilles.

La première feuille résume les informations mesurées pendant l'essai, les différents groupes de mesures, ainsi que le nombre de canaux par groupe. Pour chaque canal, des détails sont présents notamment, le nombre de mesures effectuées pendant l'enregistrement, le nombre de valeurs enregistrées à chaque itération, ainsi que l'heure de début de l'essai.

La seconde feuille « VITESSE » comporte les données concernant l'ALMEMO, les données (vitesse et température) sont enregistrées, une colonne temps est également présente, elle permettra par la suite de synchroniser les données avec celles contenues dans la feuille « PRESSION ».

La troisième feuille « PRESSION » comporte les données enregistrées par les capteurs de pression (provenant du boîtier d'acquisition NI) ; une colonne temps est présente, ainsi que les 8 colonnes correspondant à chacun des capteurs (voie 0-voie 7).

Feuille 2 et 3 : données enregistrées

Feuille 3 : Données de pression

00	01	TEMPS	VOIE 0	VOIE 1	VOIE 2	VOIE 3	VOIE 4	VOIE 5	VOIE 6	VOIE 7
2041594523	38.99	26.7	7292.161958	4280.711358	4100.626386	3715.22563	2471.289226	1316.432296	512.0803853	265.5849193
2041594977	38.99	26.8	7041595096	8776.790149	6272.338903	5195.455488	4674.091001	4286.614724	3035.938274	1715.296782
2041595129	38.68	26.8	2041595158	8516.378014	4855.789553	4097.532649	2911.378534	2307.384198	2040.109251	1430.731417
2041595582	38.82	26.8	7041595721	7961.655114	3829.31661	3485.171609	2858.81717	1676.504468	1117.318283	856.8758733
2041596337	38.9	26.8	2041595283	7521.702169	3266.616277	2996.519072	2834.083351	2406.345724	1548.380038	915.114736
2041596792	38.9	26.8	7041595346	7476.060589	4058.108855	3529.513698	3425.973449	2779.551269	1987.534443	1405.386603
2041597249	38.88	26.8	2041595408	7292.161958	3634.535726	2640.946909	1301.651341	572.464902	237.8242366	91.418318
2041597703	39.15	26.8	7041595471	7349.547086	3393.37844	3104.248489	2511.645444	1562.080203	843.2589022	543.0112032
2041598156	39.1	26.8	2041595512	8286.837504	6219.247143	5381.019742	4612.788619	4125.802243	3243.144873	1746.2278
2041598611	38.76	26.8	8210.324	4456.843904	3763.517991	2688.771069	1760.003256	1164.893104	818.2972625	293.414645b
2041599067	38.82	26.7	2041595657	8708.628107	3705.646207	3259.401766	2716.597714	2162.034456	1112.318283	515.1732871
2041599521	38.79	26.7	7112.986227	4518.779105	4227.428627	3585.373083	3476.367227	2989.548675	1675.086458	658.2932799
2041599976	38.24	26.7	2041595815	7754.776831	3928.252932	3732.590615	2524.910622	1194.586264	1118.503556	1105.955729
2041600427	38.96	26.7	8095.533745	4740.4271426	3262.494504	3044.328807	2876.472974	2631.824711	2417.430888	1165.417758
2041600882	39.06	26.7	7041595907	7354.776831	3753.574987	2674.874384	2141.536438	1786.843438	76.28503516	36.49105339
2041601137	38.76	26.7	2041595970	7559.95922	3816.94957	3652.179708	3641.024175	3315.557747	2674.098776	1334.845262
2041601791	38.9	26.7	8095.533745	4740.4271426	3262.494504	3044.328807	2876.472974	2631.824711	2417.430888	1165.417758
2041602701	39.17	26.8	2041596096	7923.396362	4463.127424	3556.304573	2011.680892	720.9072297	616.0522526	638.8973587
2041603158	38.9	26.8	7112.986227	3831.445895	3511.978525	2778.43226	2016.186474	1127.781466	952.420288	865.470131b
2041604576	38.76	26.7	2041596221	7827.756483	5007.277196	4307.879804	3724.500812	3040.318002	2442.152004	1102.862627
2041604611	38.99	26.7	7112.986227	3585.067564	2480.031887	2034.779619	1540.432269	954.5938189	614.1525444	219.2029421
2041604672	39.12	26.7	8114.682121	5542.151688	4777.935915	4148.067451	3677.382827	3035.938224	1996.769045	729.4136917
2041604935	38.96	26.8	7041596471	8019.040749	5946.803493	3444.966071	2807.349533	1878.039305	1117.318283	774.9088375
2041605888	39.01	26.8	2041596533	7464.317341	3804.582529	3110.950362	2902.101352	2257.903435	1390.655573	524.525925
2041606341	38.51	26.8	7579.97072	3869.490491	2975.386108	2778.764673	2449.64197	2080.314526	1081.210915	132.6706772
2041606795	38.73	26.8	2041596658	7751.242979	4061.290375	3191.361539	1922.0238	1469.303772	1375.192391	1186.76376
2041607248	39.01	26.8	7617.344548	4320.804461	3888.671068	2885.538988	1014.699361	514.4180208	233.7010242	166.6347812
2041607748	39.01	26.8	7674.729476	4379.649902	4196.501251	3666.720267	3018.870168	1662.807591	431.6595387	123.3440958

Données de pression

Temps (s)

Température °C

Vitesse (% vitesse max)

Une macro en VBA (Visual Basic Application) permet d'effectuer le traitement de base sur les données des fichiers. Cette macro va permettre de mettre en forme les données afin de pouvoir les travailler rapidement. Le principe des calculs est brièvement présenté ci-dessous.

Une feuille « informations » est créée, elle comporte les données nécessaires aux calculs (distance entre capteurs, porosité moyenne du mélange, masse volumique de l'olivine et de la biomasse, diamètre du tube de mesure de vitesse et diamètre du réacteur...)

La feuille « PRESSION » est modifiée afin de la rendre plus lisible, les en-têtes de colonnes sont modifiés. La colonne temps enregistré par le LabVIEW fournit le temps en millisecondes. Il est possible de calculer le temps depuis le début de l'essai en effectuant une soustraction de la première valeur enregistrée aux valeurs suivantes. Les résultats de cette soustraction sont enregistrés dans une colonne temps (ms). Les colonnes initialement intitulées « VOIE 0-7 » sont renommées « Pression relative (Pa) capteur 0-7 ».

La mise en forme de cette feuille est terminée, les calculs peuvent être effectués.

Annexe 2 : fonctionnement du granulomètre Malvern et méthode de calcul

Le système comprend trois parties (Figure 119):

- Le banc optique : ce banc est composé d'une source émettrice laser. Ce flux lumineux d'intensité contrôlée traverse une cellule dans laquelle circulent les particules en suspension aqueuse. Le flux lumineux diffusé par la présence des particules est mesuré par une série de détecteurs capables de mesurer la diffraction l'information qu'il subit sur une large gamme angulaire.
- Le préparateur d'échantillon : cet accessoire permet de générer une solution homogène contenant les particules en suspension. Cette suspension des particules se fait à l'aide d'un agitateur mécanique sous forme d'hélice. La vitesse de cet agitateur est variable et permet de maintenir en suspension les particules d'olivine. Le solvant utilisé est de l'eau. Pour éviter que les particules forment des agglomérats, un générateur d'ultrasons est utilisé. Ces ultrasons créent une force suffisante pour dissocier les particules agglomérées.
- Le logiciel d'acquisition : il récupère l'ensemble des informations et traite le signal pour fournir les courbes granulométriques représentant la fraction volumique de solide en fonction de chaque classe de taille.

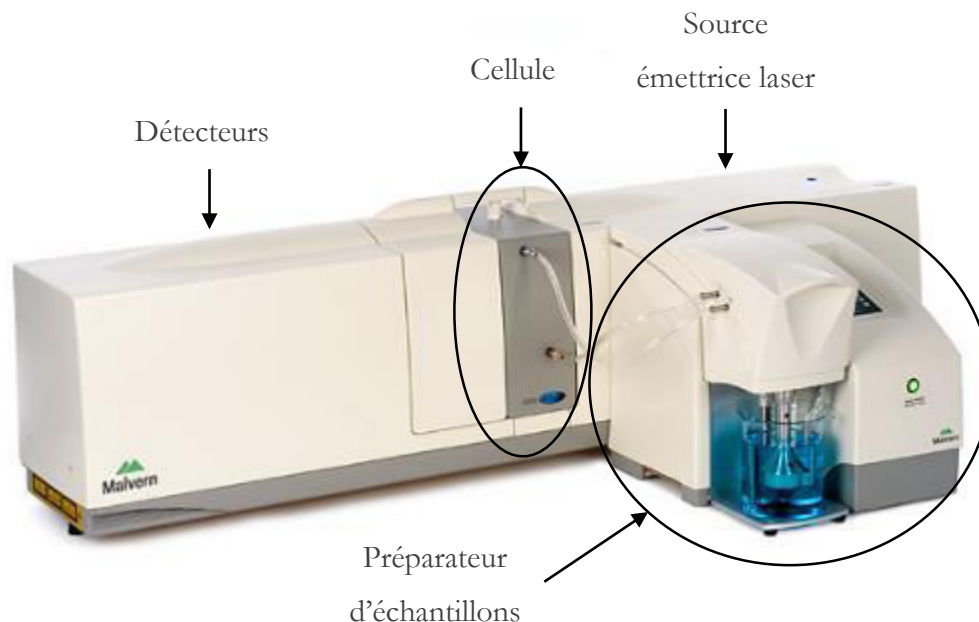


Figure 119 : photo du Mastersizer 2000

Le granulomètre utilise la diffraction laser pour mesurer la taille des particules. Cette technique consiste à mesurer l'intensité de la lumière diffusée lors du passage d'un faisceau laser à travers un échantillon de particules dispersées. Cette donnée est ensuite analysée pour calculer la taille des particules qui ont créé l'image de diffraction. Deux théories peuvent être appliquées pour le calcul et l'analyse des figures de diffraction : la théorie de Fraunhofer et la théorie de Mie-Lorentz. Dans cette étude, à cause des caractéristiques estimées de l'olivine à traiter, la théorie de Fraunhofer est utilisée, car d'après la norme ISO 13320 ¹⁸⁹ la théorie de Mie est propice aux particules de petites dimensions (<50 μm).

La théorie de Fraunhofer peut être utilisée dans le cas où les hypothèses suivantes sont validées ; les particules doivent être de dimensions supérieures à la longueur d'onde, non poreuses, sphériques et opaques ; le mouvement des particules au sein du solvant doit être aléatoire et la densité des particules dans le solvant doit être adéquate pour que les particules soient distinctes les unes des autres. De plus, les particules doivent toutes avoir une diffraction d'efficacité identique.

Les particules présentes dans le flux lumineux génèrent des figures de diffraction (Figure 120) directement liées à la taille des particules. Les particules de même taille présenteront la même figure de diffraction. Le pic principal généré par la diffraction contient 75 % de l'énergie totale.

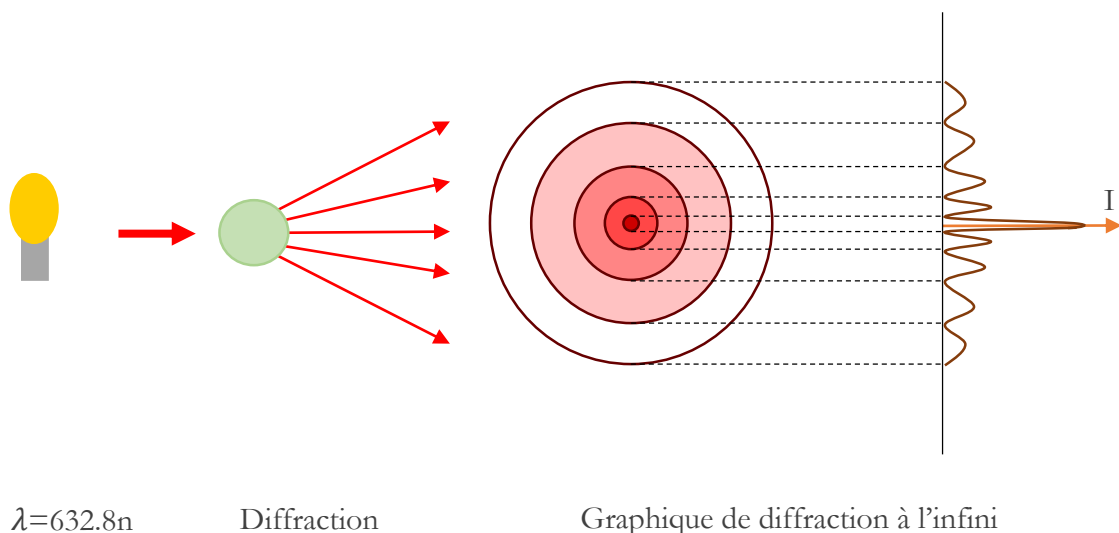


Figure 120 : figure de diffraction de Fraunhofer

Les figures de diffractions sont captées par des détecteurs à une distance finie de la source de la diffraction. Un jeu de lentille dirige la figure de diffraction sur les détecteurs. Les particules de

même dimension génèrent le même schéma de diffraction et au même endroit sur les détecteurs (Figure 121).

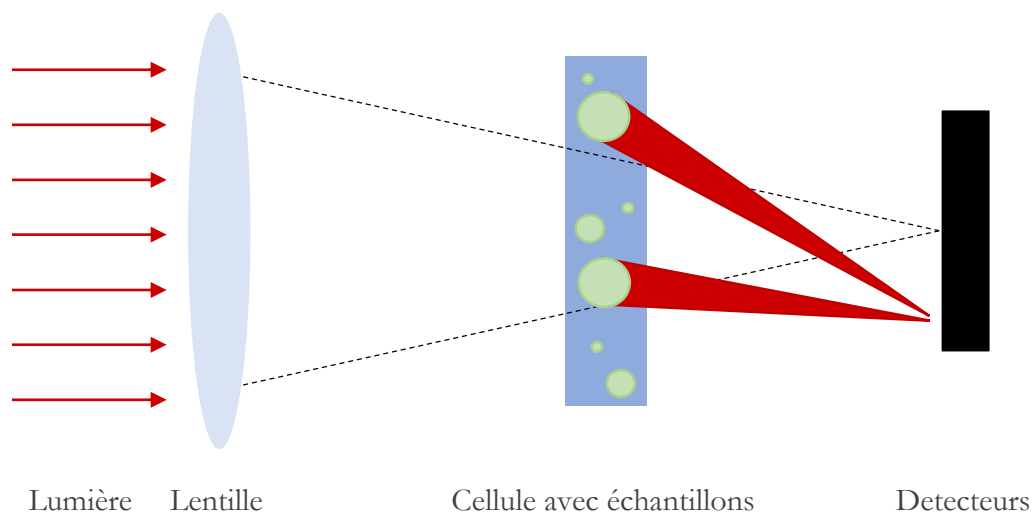


Figure 121 : description du banc optique de l'appareil et de son principe

Afin de faire correspondre la taille réelle des particules à la taille calculée par le logiciel d'acquisition, le dispositif doit être étalonné. Une solution étalon contenant des billes de latex de diamètre connu est injectée dans l'appareil et analysée. Les diamètres donnés par l'appareil correspondent donc à des diamètres équivalents en bille de latex. Cela ne correspond donc pas forcément à la taille « réelle » des particules. Ce problème est évoqué au Chapitre II :II.4.

Dans notre cas, les particules d'olivine sont de dimensions comprises entre $50\ \mu\text{m}$ et $500\ \mu\text{m}$, donc elles sont plus grandes que les longueurs d'ondes utilisées ($632.8\ \text{nm}$ pour la lampe hélium-néon rouge, et $470\ \text{nm}$ pour la LED bleu). D'après les photos (Figure 122), elles paraissent peu poreuses. Cependant l'opacité et la sphéricité ne respectent pas d'autres contraintes de la théorie de Fraunhofer vues précédemment.

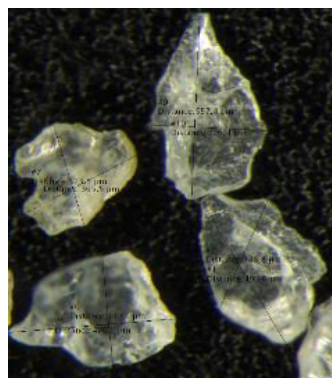


Figure 122 : grains d'olivine

Les mesures effectuées sur le granulomètre ne donnent donc *a priori* pas un diamètre physique des particules. Autrement dit, la courbe présentée avec le Malvern est qualitative et il est important de vérifier si le diamètre moyen est en accord avec les mesures par analyse d'image ou s'il faut caler la courbe. Cette technique a cependant été utilisée car elle a l'avantage d'être rapide et peut être reproduite facilement.

Le choix a été fait de confronter les résultats obtenus avec le Malvern avec des mesures de particules sur la base de photographies. Des photographies ont été effectuées à l'aide d'un microscope couplé à une caméra permettant d'effectuer des clichés (Figure 123).

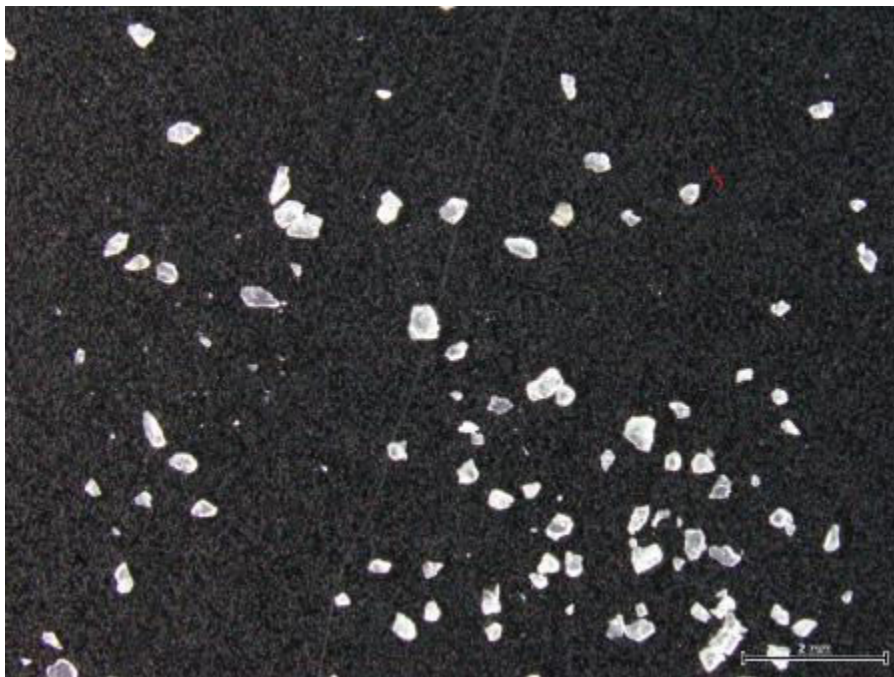


Figure 123 : photographie d'olivine au microscope

Ces clichés ont ensuite été traités à l'aide d'un logiciel de traitement automatisé « Image Pro Plus ». Les images utilisées doivent avoir des contrastes importants pour que le logiciel soit capable de bien repérer et compter les particules (Figure 124). Les particules présentes sur les bords de la photo ne sont pas comptées. S'il y a des paquets de plusieurs particules le logiciel va considérer ce paquet comme une unique particule de grande dimension (Figure 125). Dans ce cas il est possible de séparer ces particules manuellement (Figure 125).

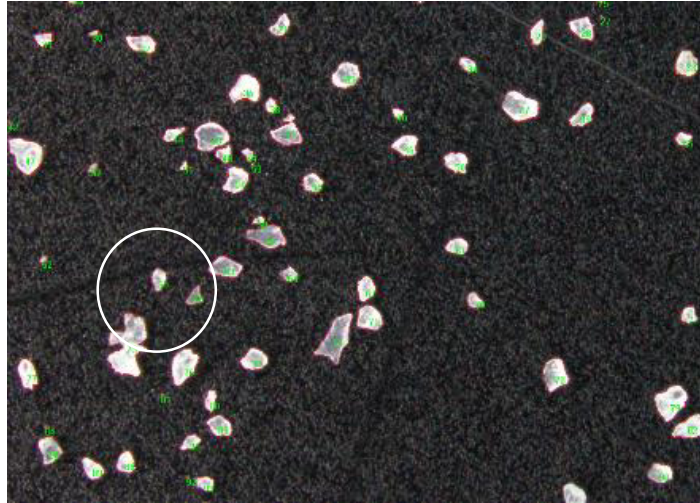


Figure 124 : comptage des particules

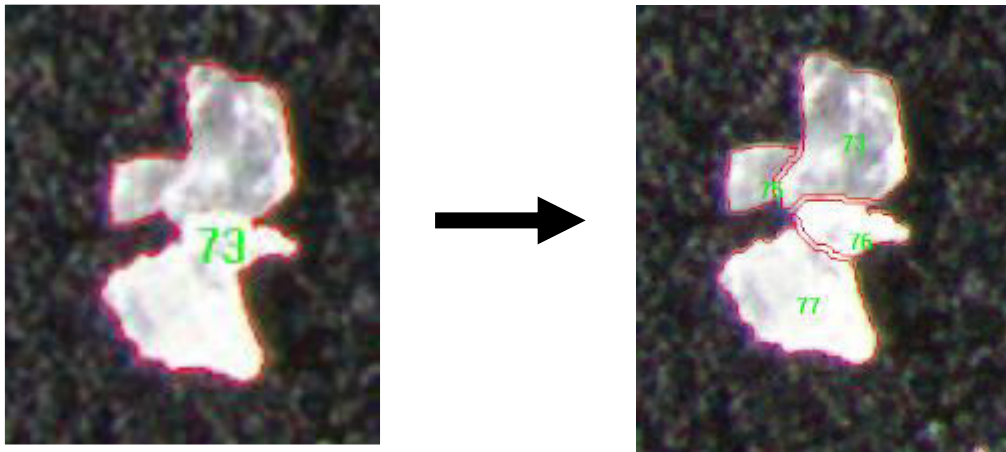


Figure 125 : division des agglomérats

Une fois que l'ensemble des particules est bien compté par le logiciel et qu'il n'y a plus de paquet, on peut lancer la mesure de la taille des particules. Le choix a été fait de relever uniquement trois diamètres (Figure 126) : le diamètre moyen (d_{moy}), le diamètre maximum (d_{max}) ainsi que le diamètre minimum (d_{min}). Les mesures sont faites pour chaque particule tel que le d_{min} est la plus petite longueur de la particule qui passe par son centre de gravité, le d_{max} est la plus grande longueur passant par le centre de gravité et le d_{moy} est la moyenne de l'ensemble des diamètres passant par le centre de gravité séparé de 2 degrés (soit 180 mesures par particules). Ces valeurs seront utilisées pour estimer la granulométrie et le diamètre moyen de l'olivine (d_p) afin de les comparer aux résultats obtenus avec le granulomètre Malvern. Ces diamètres permettront également d'estimer la forme des particules¹⁹⁰.

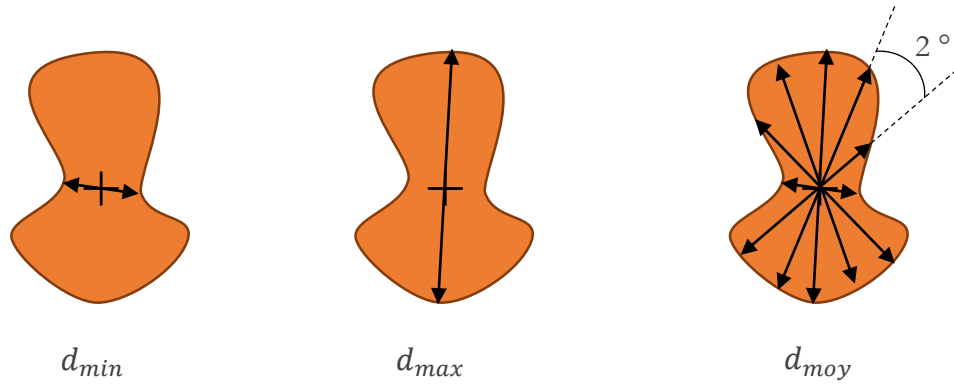


Figure 126 : représentation des diamètres évalués par analyse d'images

Les résultats obtenus avec le Malvern et avec l'analyse d'image ne fournissent pas les mêmes distributions de dimension. Les fractions calculées dans les deux cas ne sont ni dans la même unité, ni dans la même dimension. Soit la fraction est volumique, de dimension 3, soit elle est en nombre, de dimension 0. Dans les deux cas la dimension de la classe est 1 car la classe est définie en diamètre. Il sera néanmoins possible de définir les diamètres moyens de chaque distribution (classe, fraction). Pour le cas du Malvern, le diamètre moyen calculé sera un diamètre $\bar{d}(1,3)$, alors que pour les analyses d'image, le diamètre calculé sera un $\bar{d}(1,0)$.

Ce qui nous intéresse c'est donc de pouvoir comparer le diamètre moyen calculé par le Malvern au diamètre moyen calculé à partir des analyses d'images.

Pour ce faire il faut changer le référentiel de calcul. Les calculs ci-dessous sont définis à partir des données obtenues par l'analyse d'image. Le diamètre moyen en nombre de l'olivine peut se calculer à partir de la fraction f_i et de la valeur moyenne de la classe \bar{x}_i (Eq.(122)) :

$$\bar{d}(1,0) = \sum_i f_i \bar{x}_i \quad (122)$$

D'après la publication de Besançon et al¹⁹¹, il est possible de faire des changements de référentiels de granulométrie. Il est possible de calculer un diamètre moyen $\bar{d}(\alpha, \beta)$ à partir des valeurs des fractions (f_i) et des valeurs moyenne des classes (\bar{x}_i) de n'importe quelle distribution de dimension (a, b) (Eq.(123)).

$$\bar{d}(\alpha, \beta) = \left(\frac{\sum_i f_i \bar{x}_i^{\beta-b} \bar{x}_i^{\frac{\alpha}{a}}}{\sum_i f_i \bar{x}_i^{\beta-b}} \right)^{\frac{1}{\alpha}} \quad (123)$$

Pour comparer les deux mesures, il faut calculer un diamètre moyen (1,3) à partir des données de l'analyse d'images (granulométrie (1,0)). On obtient donc :

$$\bar{d}(1,3) = \frac{\sum_i f_i \bar{x}_i^4}{\sum_i f_i \bar{x}_i^3} \quad (124)$$

Ce diamètre moyen $\bar{d}(1,3)$ permet non seulement de comparer les résultats Malvern aux résultats de l'analyse d'images mais également d'effectuer la correction des données provenant du Malvern afin d'obtenir une répartition en diamètre d'olivine et non en diamètre de billes de latex.

Dans la modélisation du lit fluidisé, le lit de particules réelles est représenté par un lit de particule mono-dispersé, il est donc nécessaire de calculer le diamètre unique de ces particules représentant les particules réelles. Le paramètre conservé est le ratio de volume sur la surface totale des particules, c'est-à-dire qu'il faut que la surface totale des particules réelles soit équivalente à la surface totale des particules mono-dispersées et que le volume total des particules soit le même que le volume des particules mono-dispersé. Pour cela, le diamètre moyen qui doit être utilisé est un diamètre moyen de dimension (3,2), i-e le diamètre de Sauter.

D'après l'équation (125) si on se sert des données de la granulométrie(1,3) modifiée, on obtient un diamètre moyen $\bar{d}(3,2)$ tel que :

$$\bar{d}(3,2) = \left(\frac{\sum_i f_i \bar{x}_i^{-1} \bar{x}_i^3}{\sum_i f_i \bar{x}_i^{-1}} \right)^{\frac{1}{3}} = \left(\frac{\sum_i f_i \bar{x}_i^2}{\sum_i f_i \bar{x}_i^{-1}} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (125)$$

Annexe 3 : analyses granulométriques

Le tableau suivant représente les résultats obtenus lors de l'analyse d'images. A partir de ces données, les diamètres moyens de la granulométrie ont été calculés ($d(1,0)$ et $d(1,3)$). Le diamètre $d(1,3)$ obtenu à partir de l'analyse des images a été comparé au $d(1,3)$ de l'analyse Malvern. Il en résulte un décalage de $49 \mu\text{m}$. Le Tableau 22 présente la granulométrie obtenue par le Malvern translaturée de $49 \mu\text{m}$ (comme présenté dans le corps de texte).

Tableau 21 : granulométrie (1,0) par analyse d'images de l'olivine grossière

Analyse d'images			
Classe (μm)	Fraction en nombre (%)	Classe (μm)	Fraction en nombre (%)
0-100	4.14	350-375	16.21
100-125	0	375-400	18.97
125-150	0	400-425	13.1
150-175	0	425-450	12.41
175-200	0	450-475	5.86
200-225	0.34	475-500	4.14
225-250	0	500-525	1.72
250-275	0	525-550	1.03
275-300	2.41	550-575	0.34
300-325	3.45	575-600	0
325-350	15.86	600-625	0

Tableau 22 : distribution granulométrique en volume par analyse Malvern, traduite pour obtenir le même diamètre moyen $d(1,3)$ que celui obtenu par l'analyse d'images

Classe (μm)	\bar{x}_i (μm)	Fraction en volume (%)	Classe (μm)	\bar{x}_i (μm)	Fraction en volume (%)
149-174	161	0	424-449	436	11
174-199	186	0	449-474	461	9.3
199-224	211	0	474-499	486	7.4
224-249	236	0	499-524	511	5.5
249-274	261	0.5	524-549	536	3.9
274-299	286	3.2	549-574	561	2.6
299-324	311	6.8	574-599	586	1.6
324-349	336	10	599-624	611	0.8
349-374	361	12	624-649	636	0.2
374-399	386	12.8	649-674	661	0
399-424	411	12.3	674-699	686	0

Tableau 23 : tailles de chaque particule (par ligne) par analyse d'images

d _{max} (µm)	d _{min} (µm)	d _{moy} (µm)	d _{max} (µm)	d _{min} (µm)	d _{moy} (µm)	d _{max} (µm)	d _{min} (µm)	d _{moy} (µm)	d _{max} (µm)	d _{min} (µm)	d _{moy} (µm)
707.0	440.3	557.5	495.4	383.0	441.5	348.1	317.8	332.0	513.4	338.6	405.6
431.9	326.9	368.2	331.7	228.7	290.7	504.0	376.5	435.3	567.6	312.3	427.7
346.5	188.9	278.6	326.4	214.1	277.0	518.2	266.4	396.0	697.2	445.7	533.2
463.2	332.9	388.9	541.7	273.9	375.7	464.6	318.5	383.5	43.0	29.6	36.3
447.1	317.8	382.0	449.3	280.6	361.3	540.3	284.3	388.0	771.2	338.6	492.2
406.8	258.9	341.5	597.3	441.5	531.1	700.2	409.0	522.3	508.6	349.4	431.3
380.8	256.9	301.1	455.0	344.8	383.9	525.5	392.2	434.1	454.7	332.9	385.0
458.2	342.6	387.3	467.0	339.5	404.3	385.0	298.1	350.8	437.0	270.9	348.0
450.1	273.6	340.3	433.2	298.1	377.8	465.1	326.4	396.4	456.9	243.3	337.7
456.6	309.0	358.7	390.3	308.7	348.1	589.6	388.8	478.9	447.1	327.6	377.3
477.7	292.8	378.3	651.7	205.9	417.4	433.9	245.5	338.4	585.8	383.0	433.9
512.7	375.9	450.1	455.0	329.2	380.3	450.9	249.1	347.9	590.1	338.7	450.7
428.4	321.6	375.3	576.9	339.5	450.8	402.5	256.9	336.7	493.6	384.6	433.6
400.3	273.2	332.1	427.1	263.7	346.2	461.6	350.5	406.5	512.2	288.0	380.2
477.9	317.6	390.9	362.1	293.0	332.2	656.7	243.6	453.2	513.2	376.9	429.6
463.2	321.9	403.4	418.9	295.2	362.5	467.0	265.4	335.0	606.8	426.1	484.7
417.5	137.0	278.5	590.5	286.2	417.2	410.6	313.9	368.1	474.8	312.3	398.3
46.0	35.6	40.8	640.7	354.3	498.3	467.0	333.2	393.3	491.6	382.5	435.7
33.8	26.0	29.9	600.3	435.1	494.1	449.5	290.3	355.8	440.3	298.7	381.0
479.0	337.3	399.8	362.7	287.2	329.2	479.0	302.7	397.4	607.6	298.1	434.1
382.5	327.3	357.2	527.6	295.7	396.7	626.7	267.7	438.3	642.2	207.1	405.2
424.5	335.1	372.0	453.9	291.9	364.0	411.7	298.7	348.0	428.2	295.2	366.8
439.5	261.1	332.4	460.3	301.3	379.8	604.7	386.3	474.4	365.6	284.2	330.8
534.5	342.6	434.8	572.5	336.8	435.1	430.7	300.6	371.4	649.1	361.6	493.1
468.0	360.5	411.4	557.4	368.7	458.1	423.8	270.9	351.0	32.2	24.3	28.2
400.6	321.7	356.2	710.0	352.9	493.7	404.8	290.2	334.4	531.6	323.4	436.5
515.6	367.6	422.7	385.9	256.9	320.7	481.6	356.5	409.5	377.1	284.1	324.5
776.6	304.6	441.8	535.2	368.7	457.2	378.5	267.7	329.6	536.8	273.9	400.3
677.0	358.5	485.3	500.2	291.1	418.1	375.3	289.3	340.6	552.4	376.5	456.8
439.2	327.5	375.5	717.9	456.0	549.4	535.3	307.5	420.7	540.3	296.9	404.8
35.9	21.7	28.8	430.7	213.1	328.8	513.9	392.2	444.4	520.1	397.6	454.7
449.2	277.5	366.9	278.5	149.8	209.3	466.0	389.4	419.9	478.4	295.7	393.6
473.8	280.3	366.5	708.7	384.6	499.3	407.2	319.3	349.3	470.7	351.2	404.9
474.8	271.8	367.1	410.9	299.7	368.5	496.0	332.9	414.8	441.7	285.5	363.8
400.3	305.1	356.3	496.7	385.0	433.4	466.5	362.1	420.5	496.7	317.8	411.6
389.4	243.3	318.9	390.7	284.2	333.1	33.2	26.5	29.8	460.3	343.8	396.4
421.3	301.8	373.6	456.9	313.9	382.9	365.3	263.1	308.2	534.5	382.5	438.4
496.4	309.5	387.1	518.4	367.4	432.6	498.1	287.7	374.7	467.6	345.5	404.2
455.3	361.3	401.3	434.2	297.6	380.8	483.8	346.3	398.7	463.5	296.0	382.1
467.6	307.5	372.4	485.1	221.0	362.7	462.3	316.2	379.1	450.9	305.5	384.9
441.6	271.8	374.4	488.2	277.3	368.2	421.3	314.6	369.6	383.0	294.0	344.1

d _{max} (μm)	d _{min} (μm)	d _{moy} (μm)	d _{max} (μm)	d _{min} (μm)	d _{moy} (μm)	d _{max} (μm)	d _{min} (μm)	d _{moy} (μm)
580.2	340.9	455.3	413.9	273.6	349.7	569.1	467.6	513.9
377.1	299.7	350.1	494.4	337.3	417.0	401.9	278.5	341.6
403.8	271.9	329.8	513.7	297.6	374.3	350.5	228.0	298.6
335.3	215.4	280.4	512.7	361.6	430.5	571.3	371.6	455.4
471.4	305.1	380.5	516.0	391.6	445.7	459.0	361.6	410.1
439.8	303.0	352.0	466.5	353.9	401.3	460.3	282.8	386.0
452.6	285.5	375.6	538.0	255.5	390.4	608.8	446.2	498.1
513.4	364.9	431.7	390.3	307.5	336.2	555.1	413.9	456.4
485.1	399.7	447.5	371.9	302.7	341.4	544.0	352.3	433.7
382.7	310.3	353.9	467.0	340.5	397.7	609.1	316.2	444.0
469.9	230.7	357.9	491.2	304.6	383.8	461.1	344.4	412.9
456.9	323.4	396.1	492.3	327.3	401.8	467.6	345.2	400.5
388.4	308.7	348.7	36.5	31.8	34.1	568.4	368.6	482.2
556.4	290.2	430.2	424.5	350.2	381.4	521.5	315.5	403.1
495.4	354.3	415.4	371.6	283.3	336.6	577.9	366.2	462.8
427.9	224.7	357.1	521.4	270.9	399.3	426.9	323.4	384.0
133.3	57.1	90.4	587.3	265.4	406.3	635.7	449.3	524.6
386.3	262.9	321.3	416.9	343.8	375.0	489.2	278.2	358.9
383.0	305.9	346.2	425.3	279.3	342.6	400.6	251.5	330.3
439.9	315.5	373.5	470.8	290.3	376.3	410.5	305.1	358.3
559.1	321.7	435.3	543.2	341.7	416.7	461.6	322.0	379.4
576.5	355.1	462.5	561.5	295.2	400.5	474.2	338.7	387.5
444.0	319.3	374.0	452.5	299.5	369.4	102.3	50.2	80.4
386.3	317.8	351.6	510.3	288.4	397.3	433.9	272.3	344.9
655.5	401.5	512.8	415.3	312.3	365.0	470.7	302.7	390.4
456.3	368.6	414.5	415.1	283.3	337.6	421.3	270.4	349.7
494.6	358.5	430.7	591.3	370.0	440.7	359.8	266.7	308.9
467.0	307.5	364.3	367.6	296.9	328.4	369.6	294.8	322.1
519.8	378.6	432.2	573.2	319.9	440.2	526.1	299.5	419.3
587.8	366.0	449.0	390.3	299.5	349.6	480.7	344.6	412.6
359.8	312.3	330.1	481.6	406.2	440.6	512.0	227.5	366.9
660.5	317.3	470.1	419.9	329.9	368.6	461.9	291.1	390.4
591.6	287.6	415.5	343.8	266.7	293.1	449.5	283.4	343.3
401.9	301.8	351.8	515.8	421.6	465.1	368.7	271.9	312.9
413.3	318.5	378.8	375.3	296.9	344.9	392.2	282.5	327.4
456.3	281.2	356.2	587.3	361.3	473.3	424.5	306.3	362.7
472.2	278.2	377.3	441.5	167.7	310.1	627.9	342.6	427.9
444.0	251.1	343.2	618.2	301.3	405.8	495.4	336.8	401.2
501.1	63.2	353.4	494.1	389.4	428.5	527.6	238.9	389.6
410.4	294.8	336.5	593.9	419.3	508.5	398.5	284.2	331.2
31.1	24.6	27.8	724.0	361.9	476.2	32.8	28.5	30.7
65.1	36.4	50.7	678.7	235.4	429.7	474.8	320.0	395.5

Annexe 4 : réactions cinétiques de Ranzi

Tableau 24 : constantes cinétiques et chaleurs des réactions d'après Corbetta et al.¹⁵⁸

Réactions	Constantes cinétiques (s ⁻¹)	Chaleur de réaction (J/mol)
CELL → CELLA	$4 \times 10^{13} \exp(-188370/(RT))$	0
CELLA → 0.45 HAA + 0.2 Glyoxal + 0.1 C ₂ H ₄ O + 0.25 HMFU + 0.3 C ₃ H ₆ O + 0.15 CH ₃ OH + 0.4 CH ₂ O + 0.31 CO + 0.41 CO ₂ + 0.05 H ₂ + 0.83 H ₂ O + 0.02 HCOOH + 0.2 G{CH ₄ } + 0.05 G{H ₂ } + 0.61 Char	$2 \times 10^6 \exp(-80000/(RT))$	109500
CELLA → LVG	$4 \times T \exp(-41860/(RT))$	100900
CELL → 5 H ₂ O + 6 Char	$6.5 \times 10^7 \exp(-129766/(RT))$	-268000
HCE → 0.58 HCE1 + 0.42 HCE2	$1 \times 10^{10} \exp(-129766/(RT))$	-10900
HCE1 → 0.025 H ₂ O + 0.5 CO ₂ + 0.025 HCOOH + 0.5 CO + 0.8 CH ₂ O + 0.125 C ₂ H ₅ OH + 0.1 CH ₃ OH + 0.25 C ₂ H ₄ + 0.125 G{H ₂ } + 0.275 G{CO ₂ } + 0.4 G{COH ₂ } + 0.45 G{CH ₃ OH} + 0.325 CH ₄ + 0.875 Char	$1.2 \times 10^9 \exp(-125580/(RT))$	-600
HCE1 → 0.25 H ₂ O + 0.8 CO ₂ + 0.05 HCOOH + 0.1 CO + 0.3 CH ₂ O + 0.2 G{H ₂ } + 0.15 G{CO} + 0.15 G{CO ₂ } + 1.2 G{COH ₂ } + 0.625 G{CH ₄ } + 0.375 G{C ₂ H ₄ } + 0.875 Char	$0.15 \times T \exp(-33500/(RT))$	-181500
HCE1 → XYLAN	$3 \times T \exp(-46046/(RT))$	77600
HCE2 → 0.2 H ₂ O + 0.175 CO + 0.275 CO ₂ + 0.5 CH ₂ O + 0.1 C ₂ H ₅ OH + 0.2 HAA + 0.025 HCOOH + 0.25 G{CH ₄ } + 0.3 G{CH ₃ OH} + 0.275 G{C ₂ H ₄ } + 0.4 G{CO ₂ } + 0.925 G{COH ₂ } + Char	$0.5 \times 10^{10} \exp(-138138/(RT))$	50200
LIG-C → 0.35 LIGCC + 0.1 COUMARYL + 0.08 PHENOL + 0.41 C ₂ H ₄ + H ₂ O + 0.3 CH ₂ O + 0.32 CO + 0.7 G{COH ₂ } + 0.495 G{CH ₄ } + 5.735 Char	$1.33 \times 10^{15} \exp(-203021/(RT))$	-43000
LIG-H → LIGOH + 0.5 C ₃ H ₆ O + 0.5 C ₂ H ₄ + 0.25 HAA	$0.67 \times 10^{13} \exp(-156975/(RT))$	128300
LIG-O → LIGOH + CO ₂	$0.33 \times 10^9 \exp(-106743/(RT))$	108600
LIGCC → 0.3 COUMARYL + 0.2 PHENOL + 0.35 HAA + 0.7 H ₂ O + 0.4 CO + 0.65 G{CH ₄ } + 0.6 G{C ₂ H ₄ } + G{COH ₂ } + 0.4 G{CO} + 6.75 Char	$1.67 \times 10^6 \exp(-131859/(RT))$	-130000
LIGOH → LIG + 0.9 H ₂ O + 0.1 CH ₄ + 0.6 CH ₃ OH + 0.1 G{H ₂ } + 0.3 G{CH ₃ OH} + 0.05 CO ₂ + 0.55 CO + 0.6 G{CO} + 0.05 HCOOH + 0.85 G{COH ₂ } + 0.35 G{CH ₄ } + 0.2 G{C ₂ H ₄ } + 4.15 Char	$1 \times 10^8 \exp(-125580/(RT))$	-109400

LIG → FE2MACR	$4 \times T \times \exp(-50200/(RT))$	142600
LIG → 0.95 H ₂ O + 0.2 CH ₂ O + 0.2 C ₂ H ₄ O + 0.2 C ₃ H ₆ O + 0.4 CH ₃ OH + CO + 0.2 CH ₄ + 0.05 HCOOH + 0.4 G{CH ₄ } + 0.65 G{C ₂ H ₄ } + 0.45 G{CO} + 0.5 G{COH ₂ } + 5.5 Char	$0.4 \times 10^9 \exp(-125580/(RT))$	-92800
LIG → 0.6 H ₂ O + 0.4 CO + 0.2 CH ₄ + 0.4 CH ₂ O + 0.2 G{CO} + 0.4 G{CH ₄ } + 0.5 G{C ₂ H ₄ } + 0.4 G{CH ₃ OH} + 2 G{COH ₂ } + 6 Char	$0.083 \times T \times \exp(-33500/(RT))$	-345900
G{CO ₂ } → CO ₂	$1 \times 10^6 \exp(-100464/(RT))$	-121600
G{CO} → CO	$0.5 \times 10^{13} \exp(-209300/(RT))$	-56200
G{COH ₂ } → CO + H ₂	$5 \times 10^{11} \exp(-297200/(RT))$	203300
G{H ₂ } → H ₂	$5 \times 10^{11} \exp(-313959/(RT))$	0
G{CH ₄ } → CH ₄	$0.5 \times 10^{13} \exp(-300000/(RT))$	0
G{CH ₃ OH} → CH ₃ OH	$0.2 \times 10^{13} \exp(-209300/(RT))$	0
G{C ₂ H ₄ } → C ₂ H ₄	$0.5 \times 10^{13} \exp(-300000/(RT))$	0

Annexe 5 : composition de la biomasse

Tableau 25 : composition de la biomasse

Caractéristique biomasse	
Humidité sur brut (%)	5
Taux de cendres sur sec (%)	2.7
PCI (MJ/kg) daf	18.3
PCS (MJ/kg) daf	19.5
Masse volumique particules (kg/m ³)	1127
Composition élémentaire biomasse sèche	
	% w daf
C	49.5
H	5.9
O estimé (100 % - %C - %H)	44.6
N (négligé dans modèle)	0.3
S (négligé dans modèle)	0.14
Cl (négligé dans modèle)	0.1
Composition en cellulose, hémicellulose et lignines calculée à partir de la composition élémentaire avec les corrélations de Ranzi	
	% w daf
Cellulose	41
Hémicellulose	26
Lig-C	6
Lig-H	1
Lig-O	25

Annexe 6 : données de sortie modèle pyrolyse + conversion goudrons primaires

Temps de pyrolyse ^r		612.6
solide (%sec)		13.56%
	Dont Charbon	10.86%
Rendement en huile (% sec)		13.09%
Rendement en gaz (% sec)		78.61%
Composition volumique du gaz		
H ₂		30.42%
CO		47.83%
CO ₂		6.02%
CH ₄		10.70%
C ₂ H ₄		3.58%
C ₂ H ₂		0.80%
C ₂ H ₆		0.65%
benzène + toluène + naphthalène (g/Nm ³ _{gaz sec})		20.62

^r Temps correspondant à 99% de la perte de masse totale

Annexe 7 : données d'entrées du modèle global à chaud

	Biomasse		
Pyrolyse (MatLab®)	Forme	Cylindrique	
	Diamètre	6.3 mm	
	Longueur	11.5 mm	
	Température initiale biomasse	20 °C	
	Coefficient de transfert externe (lit → particule de biomasse)	200 w.m ⁻² K ⁻¹	
	Temps de conversion des produits primaires de pyrolyse	90 ms	
Réacteur (AspenPlus®)	Caractéristiques du réacteur (LRGP)		
	Diamètre lit dense	0.1023 m	
	Hauteur bloc LF	0.5 m	
	Hauteur freeboard	0.8 m	
	Diam max freeboard	0.3 m	
	Type distributeur	Plaque à trous	
	Nombre d'orifices	379	
	Diamètre orifices	1 mm	
	Matériau du lit		
	Diamètre moyen	366 µm	
	Masse	4 kg	
	U _{mf} (825°C)	0.048 m.s ⁻¹	
	Conditions expérimentales		
	Température lit dense	825 °C	
	Température freeboard	825°C-640°C	
	Débit de biomasse (daf)	2.68 kg.h ⁻¹	
	Calculées Modèle Pyrolyse	Débit charbon	0.30 kg.h ⁻¹
		Débit produits	2.53 kg.h ⁻¹
		Composition gaz	Voir annexe 6
	Débit d'air de fluidisation		2.82 m ³ .h ⁻¹
Température injection air		825 °C	

Résumé

L'augmentation croissante de la demande énergétique mondiale entraîne une production importante de dioxyde de carbone fossile. Pour limiter ces émissions, les énergies alternatives renouvelables sont prometteuses, et notamment, l'utilisation de la biomasse. C'est dans ce contexte qu'a été mis en place le projet ANR GAMECO par un consortium rassemblant des laboratoires universitaires et des unités de R&D industrielles. Ce projet vise à consolider l'utilisation d'un lit fluidisé bouillonnant de gazéification sous air pour convertir de la biomasse lignocellulosique en gaz de synthèse. Ce travail de doctorat a pour ambition de répondre à l'une des problématiques de ce projet : la répartition des particules de biomasses et de semi-coke ou charbon au sein du lit fluidisé et sa prise en compte dans la modélisation du gazéifieur. L'étude a porté sur des mélanges contenant de l'olivine et des particules de bois de caractéristiques différentes. Les résultats de mélange-ségrégation présentés ont été obtenus grâce à des mesures en maquette froide développée dans le cadre de cette thèse. Les données expérimentales obtenues ont permis de valider et consolider un modèle de mélange-ségrégation de la littérature. La dernière étape de la thèse consiste en la mise en place d'un modèle global du réacteur à lit fluidisé de gazéification de la biomasse pour prédire la productivité et la qualité du gaz produit. Ce modèle intègre les résultats hydrodynamiques précédents auxquels sont couplés des réactions chimiques de conversion de la biomasse (pyrolyse, oxy-gazéification du charbon, craquage des goudrons) provenant de la littérature. Les résultats de ce modèle sont comparés aux résultats obtenus sur une maquette chaude.

Mots clés : Lit fluidisé, Gazéification, Biomasse, Ségrégation, Mélange, Modélisation

Abstract

The increasing population in the world leads to increasing energy demand. In order to limit emissions of fossil carbon dioxide, a solution is to develop renewable energy alternatives. In this context, the use of biomass is one of the solutions to study. It is in this context that implemented the project ANR GAMECO by a consortium of academic and industrial. This project aims to make reliable use of a bubbling fluidized bed of gasification with air to convert lignocellulosic biomass into synthesis gas. This PhD work aims to address one of the problems of this project: the distribution of biomass and char particles in the fluidized bed and the impact of these distributions when modeling of the gasifier. The study focused on mixtures containing olivine and wood particles of different characteristics. Mixing-segregation results were obtained through measurements in a cold model developed during this PhD work. The obtained experimental data were used to validate and consolidate existing hydrodynamic mixing model of the literature. The last step of the thesis consists in establishing a global model of the fluidized bed reactor for gasification of biomass. This model incorporates the previous hydrodynamic results, coupled with chemical reactions models describing biomass conversion (pyrolysis, oxy-coal gasification tar cracking) after the literature. The results of this model are then compared with results obtained on a hot model.

Keywords: Fluidized bed, Gasification, Biomass, Segregation, Mixing, Modeling