



HAL
open science

Modélisation d'un incinérateur de boues en lit fluidisé en vue de la maîtrise des émissions de NOx

Shi Li

► **To cite this version:**

Shi Li. Modélisation d'un incinérateur de boues en lit fluidisé en vue de la maîtrise des émissions de NOx. Automatique / Robotique. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2008. Français. NNT: . tel-00348080

HAL Id: tel-00348080

<https://theses.hal.science/tel-00348080>

Submitted on 17 Dec 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

N° attribué par la bibliothèque
/ / / / / / / / / / / / / / / /

THESE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

Spécialité : « Automatique – Productique »

préparée au Laboratoire de Grenoble d'Image, Parole, Signal, Automatique

dans le cadre de l'Ecole Doctorale EEATS

« Electronique, Electrotechnique, Automatique, Traitement du Signal »

présentée et soutenue publiquement
par

Shi LI

Le 21 Novembre 2008

**MODELISATION D'UN INCINERATEUR DE BOUES EN LIT
FLUIDISE EN VUE DE LA MAITRISE DES EMISSIONS DE NO_x**

Directeur de Thèse
M. Alain BARRAUD

Co-directeur de Thèse
Mme Catherine CADET

JURY

M. Jean-Philippe CASSAR	Président
M. Gilles TRYSTAM	Rapporteur
M. Sami OTHMAN	Rapporteur
M. Alain BARRAUD	Directeur
Mme Catherine CADET	Co-encadrant
M. Pierre-Xavier THIVEL	Examineur

Remerciements

Je tiens à adresser mes remerciements à M. Jean-Marc CHASSERY, Directeur du Laboratoire GIPSA (Grenoble-Images-Parole-Signal-Automatique), pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire.

Mes plus profonds remerciements vont bien évidemment à M. Alain BARRAUD, professeur à l'INPG, pour avoir été mon directeur de thèse, pour la confiance qu'il m'a témoigné ainsi que pour les conseils qu'il m'a prodigué tout au long de cette thèse.

J'adresse mes plus vifs remerciements à Mme Catherine CADET, pour sa grande disponibilité et ses conseils avisés ainsi que pour sa confiance toujours renouvelée. Je tiens également à la remercier pour m'avoir aidée à améliorer le document.

J'adresse ma profonde gratitude à M. Pierre-Xavier THIVEL et Mme Françoise DELPECH, pour leur collaboration, leur constante disponibilité et leur gentillesse.

Je tiens à exprimer ma gratitude à M. Jean-Philippe CASSAR pour avoir accepté de présider le Jury de ma thèse.

C'est un grand honneur que m'ont fait Messieurs Gilles TRYSTRAM et Sami OTHMAN, en s'intéressant à mes travaux de recherche et en acceptant de le les juger. Je les remercie pour leur travail de rapporteur, pour le temps qu'ils y ont consacré, et pour les conseils qu'ils ont su me donner afin d'améliorer le document final.

Je remercie encore vivement M. Guy BORNARD, pour m'avoir éclairé sur les chemins de la validation et de la commande.

Enfin, je remercie toutes les membres du Laboratoire pour leur sympathie, leur aide et leur soutien, alors à vous tous et toutes MERCI !!!

Je terminerai par tous ceux qui me sont chers, ma famille et mes amis de toujours, merci de votre soutien et de votre patience.

à Yuxia

à mes parents

Table des matières

Nomenclature	17
Introduction générale.....	21
Chapitre 1. Présentation et problématique de l'incinération des boues en lit fluidisé.....	25
1.1. Les boues d'épuration et leur traitements	25
1.1.1. Formation des boues d'épuration	25
1.1.2. Définition des caractéristiques physico-chimiques	26
1.1.3. Traitements et valorisation des boues	27
1.2. Les fours à lit fluidisé.....	30
1.2.1. Généralités	31
1.2.2. Les différents types de réacteurs	33
1.2.3. Unité d'incinération de boues d'épuration en lit fluidisé	35
1.2.4. Polluants atmosphériques potentiels, traitements et réglementation.....	36
1.3. Problématique du fonctionnement d'un incinérateur de boues en lit fluidisé.....	41
1.3.1. Caractéristiques et composition des boues prêtes à être incinérées.....	41
1.3.2. Paramètres opératoires	43
1.3.3. Le problème de la maîtrise de la qualité de la combustion de boues en lit fluidisé	44
1.3.4. Etude bibliographique de la commande des boues en lit fluidisé	45
1.4. Conclusion du chapitre 1	47
Chapitre 2. Etude bibliographique de la combustion des boues en lit fluidisé	49
2.1. Etapes de la combustion d'une particule de boue	49
2.2. Etapes préalables aux réactions de combustion	50
2.2.1. Chauffage et séchage	50
2.2.2. Dévolatilisation	50
2.2.3. Principaux composés volatils.....	51
2.3. Réactions de combustion.....	52
2.3.1. Combustion du carbone fixe.....	52
2.3.2. Combustion des combustibles volatils.....	53
2.4. Formation et réduction de NO _x et N ₂ O.....	54
2.4.1. Formation et réduction de NO _x et N ₂ O dans la combustion de charbon en lit fluidisé	54
2.4.2. Application aux boues de station d'épuration.....	56
2.5. Le schéma réactionnel de référence [Liu et Gibbs, 2002].....	57
2.6. Etude bibliographique de la modélisation de la combustion en réacteurs à lit fluidisé	62
2.6.1. Hydrodynamique du réacteur.....	62
2.6.2. Modélisation de la combustion d'une particule.....	64
2.6.3. Modélisation d'incinérateur en lit fluidisé.....	65
2.7. Démarche pour notre étude	65
2.8. Conclusion du chapitre 2	67
Chapitre 3. Modèle d'incinération des boues en lit fluidisé.....	69
3.1. Principe et hypothèses de base	69

3.1.1. Principe	69
3.1.2. Hypothèses principales	70
3.1.3. Choix des variables d'état	70
3.2. Bilans globaux sur les débits	71
3.2.1. Débits des gaz sortant du four	71
3.2.2. Expressions en fonction des caractéristiques des boues	73
3.2.3. Equations algébriques des débits des gaz après séchage et dévolatilisation des boues	74
3.3. Equations de bilan matière et de bilan thermique	75
3.3.1. Schéma du modèle	75
3.3.2. Bilan matière dans le lit bouillonnant	76
3.3.3. Bilan matière dans le lit post-combustion	77
3.3.4. Bilan thermique du lit bouillonnant	77
3.3.5. Bilan thermique du lit post-combustion	80
3.4. Les réaction chimiques de combustion des boues en lit fluidisé	81
3.4.1. Sélection des réactions chimiques pertinentes par rapport à la composition des boues	81
3.4.2. Ecriture des vitesses et des enthalpies de réaction	83
3.5. Modèle du four	85
3.6. Paramètres du modèle	88
3.7. Démarche de validation	92
3.7.1. Conditions de validation du modèle	92
3.7.2. Démarche suivie	93
3.8. Conclusion du Chapitre 3	94

Chapitre 4. Validation du modèle avec des données industrielles 95

4.1. Adaptation du modèle au problème des entrées non mesurées	95
4.1.1. Les grandeurs mesurées	95
4.1.2. Simplification du modèle en vue de la validation	97
4.1.3. Estimation de la fraction volatile des boues	100
4.2. Sous modèle de combustion et sous modèle des NOx	101
4.2.1. Séparation en deux sous modèles	101
4.2.2. Sous modèle de combustion	103
4.2.3. Sous modèle des NOx	105
4.3. Considérations sur les mesures	106
4.3.1. Les mesures pour l'identification des paramètres du modèle	106
4.3.2. Point de fonctionnement du four	109
4.4. Estimation des paramètres du sous-modèle de combustion	112
4.4.1. Initialisation du sous modèle de combustion	112
4.4.2. Sensibilité des températures et du monoxyde de carbone aux variations des paramètres	113
4.4.3. Estimation dynamique des paramètres du modèle de combustion	116
4.4.4. Représentation des états non mesurés du sous modèle de combustion	121
4.5. Estimation des paramètres du sous-modèle des NOx	124
4.5.1. Initialisation du sous modèle des NOx	124
4.5.2. Sensibilité des NOx et du NH ₃ aux variations des paramètres cinétiques	126
4.5.3. Estimation des paramètres cinétiques à partir de la mesure des NOx	127
4.5.4. Représentation des états non mesurés du sous modèle des NOx	128
4.6. Validation du modèle	129
4.6.1. Validation du modèle à l'aide des mesures du fichier 2	130

4.6.2. Validation du modèle à l'aide des mesures du fichier 3	137
4.7. Conclusion du chapitre 4.....	143
Chapitre 5. Proposition de stratégie de commande.....	145
5.1. Objectif et problématique de la stratégie de commande	145
5.1.1. Objectif de la stratégie de commande	145
5.1.2. Problématique de la stratégie de commande	146
5.2. Choix des variables d'action	146
5.2.1. Modèle de l'échangeur de chaleur	147
5.2.2. Modèle de simulation	148
5.2.3. Caractéristiques statiques du modèle pour les deux actionneurs F_{am}^{in} et $Q_{b,MS}^{in}$	150
5.3. Proposition de stratégie de commande.....	155
5.3.1. Cahier des charges	155
5.3.2. Stratégie proposée.....	156
5.4. Résultats de simulation pour la boucle de NOx seule (suivi de consigne r_{NO})	160
5.5. Résultats de simulation pour la stratégie de commande	163
5.5.1. Vérification du basculement des commandes.....	163
5.5.2. Comparaison des stratégies en rejet de perturbation non mesurée: f_{vol}	170
5.5.3. Comparaison des stratégies en rejet de perturbation mesurée: le débit des boues	174
5.5.4. Comparaison des stratégies de commande sur les mesures industrielles.....	179
5.6. Conclusion.....	181
Conclusion générale et perspectives	183
Références.....	187
Annexes.....	191
Annexe A. Calcul des masses volumiques des gaz.....	191
Annexe B. Calcul de la hauteur du lit bouillonnant	193
Annexe C. Les données industrielles	197
Annexe D. Détermination des points de fonctionnement	203
Annexe E. Test de la stratégie de commande sur des perturbations non mesurées	205
Annexe F. Comparaison des stratégies de commande sur les mesures industrielles du fichier 3.....	219
Annexe G. Articles publiés	221

Liste des figures

Figure 1.1. Traitement de l'eau et des boues dans une station d'épuration.....	26
Figure 1.2. Filières de traitement des boues d'épuration d'après [Boeglin, 2000].....	28
Figure 1.3. Régime de fluidisation d'après [Basu et Fraser, 1991].....	32
Figure 1.4. Schéma d'un four à lit fluidisé.....	33
Figure 1.5. Schéma d'un réacteur à lit fluidisé circulant [Lassagne, 1999].....	34
Figure 1.6. Schéma d'une unité d'incinérateur de boues d'épuration en lit fluidisé [Boeglin, 2000].....	35
Figure 1.7. Schéma de composition de boues.....	43
Figure 1.8. Schéma de la boucle de régulation d'O ₂ sortant du four à lit fluidisé.....	44
Figure 2.1. Etapes de la combustion des boues en lit fluidisé.....	49
Figure 2.2. Les composés issus de la dévolatilisation des boues [Werther et Ogada, 1999]..	51
Figure 2.3. Représentation schématique du modèle de [Khiari, 2006].....	63
Figure 2.4. Méthodologie utilisée.....	66
Figure 3.1. Schéma de principe du four.....	69
Figure 3.2. Représentation schématique des flux des entrées et sorties du four.....	72
Figure 3.3. Schéma du modèle.....	75
Figure 4.1. Les grandeurs mesurées de la station industrielle.....	95
Figure 4.2. Représentation schématique du modèle simplifié.....	99
Figure 4.3. Modèle algébrique de reconstruction de la composition des boues.....	101
Figure 4.4. Structure du sous modèle de combustion.....	103
Figure 4.5. Structure du sous modèle des NO _x	105
Figure 4.6. Les mesures du fichier 1.....	108
Figure 4.7. Point de fonctionnement - Fichier 1 (15h-20h).....	110
Figure 4.8. Sensibilités de sorties du sous modèle de combustion par rapport aux paramètres f_{H_2O} , k_{22}^B et k_{22}^P	114
Figure 4.9. Sensibilités de sorties du sous modèle de combustion par rapport aux paramètres k_{22}^B et k_{22}^P	115
Figure 4.10. Les mesures du fichier 1 : entrées du modèle.....	116
Figure 4.11. Comparaison des sorties T^B , T^P et y_{CO} des mesures et du modèle de combustion avec les paramètres identifiés k_{22}^B , k_{22}^P et f_{H_2O}	117
Figure 4.12. Comparaison entre les mesures et le modèle de combustion des variables T^B et y_{CO} avec les paramètres identifiés k_{22}^B , k_{22}^P	119
Figure 4.13. Comparaison entre les mesures et le modèle de combustion des variables T^B et y_{CO} en utilisant la loi d'Arrhénius.....	121
Figure 4.14. Les états non mesurés dans l'estimation de modèle de combustion.....	123
Figure 4.15. Sensibilité de sorties du modèle des NO _x par rapport aux paramètres à identifier.....	126
Figure 4.16. Comparaison de y_{NO} mesuré avec la sortie du modèle.....	128
Figure 4.17. Etats non mesurés du sous modèle des NO _x	129
Figure 4.18. Les entrées du modèle (fichier 2).....	131
Figure 4.19. Validation du modèle à l'aide des mesures de validation dans le fichier 2.....	132
Figure 4.20. Validation du modèle à l'aide des mesures du fichier 2 après avoir ajusté la composition des boues.....	133
Figure 4.21. Etats non mesurés du modèle dans la validation du fichier 2 après avoir ajusté la composition des boues.....	136
Figure 4.22. Les entrées mesurées du fichier 3.....	137
Figure 4.23. Validation du modèle à l'aide des mesures du fichier 3.....	138

Figure 4.24. Validation du modèle à l'aide des mesures du fichier 3 après avoir ajusté la composition des boues.....	139
Figure 4.25. Etats non mesurés du modèle dans la validation du fichier 3 après avoir ajusté la composition des boues.....	142
Figure 5.1. Schéma de principe de l'échangeur.....	147
Figure 5.2. Caractéristiques statiques des sorties du modèle par rapport au débit d'air.....	152
Figure 5.3. Caractéristiques statiques des sorties du modèle par rapport au débit de boues.....	153
Figure 5.4. Deux configurations de stratégie de commande.....	154
Figure 5.5. Représentation de la stratégie de commande.....	155
Figure 5.6. Stratégie de commande proposée.....	157
Figure 5.7. Caractéristique statique de y_{NO} en fonction du débit d'air.....	158
Figure 5.8. Réponse indicielle de y_{NO} par rapport de F_{am}^{in} dans le domaine linéaire.....	158
Figure 5.9. Boucle de NOx seule.....	160
Figure 5.10. 1 ^{er} test de suivi de consigne (r_{NO}) dans la zone linéaire.....	161
Figure 5.11. 2 ^{ème} test de suivi de consigne (r_{NO}) dans la zone non linéaire.....	162
Figure 5.12. 3 ^{ème} test de suivi de consigne (r_{NO}) dans la zone limite autorisée.....	163
Figure 5.13. Test de basculement des commandes sur les échelons de f_{vol}	165
Figure 5.14. Test de basculement des commandes sur les rampes de f_{vol}	167
Figure 5.15. Régime transitoire de basculement dans le test des rampes sur f_{vol}	169
Figure 5.16. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur f_{vol}	171
Figure 5.17. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (test sur f_{vol}).....	172
Figure 5.18. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (test sur f_{vol}).....	173
Figure 5.19. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur les boues.....	176
Figure 5.20. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (test sur les boues).....	177
Figure 5.21. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (test sur les boues).....	178
Figure 5.22. Comparaison des stratégies de commande sur les mesures industrielles du fichier 2.....	180
Figure B.1. Variation de la hauteur du lit bouillonnant par rapport au débit d'air de fluidisation et à la température du lit bouillonnant.....	195
Figure C.1. Station d'incinération des boues d'épuration en lit fluidisé.....	197
Figure C.2. Le fichier 1.....	200
Figure C.3. Le fichier 2.....	201
Figure C.4. Le fichier 3.....	202
Figure D.1. Les mesures utilisées pour le point de fonctionnement du fichier 2 (15h-28h).....	203
Figure D.2. Les mesures utilisées pour le point de fonctionnement du fichier 3 (42h-50h).....	204
Figure E.1. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur f_{H2O}	206
Figure E.2. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{H2O}).....	207
Figure E.3. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{H2O}).....	208
Figure E.4. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur f_N	209
Figure E.5. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_N).....	210
Figure E.6. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_N).....	211

<i>Figure E.7. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur f_{CO}.....</i>	<i>212</i>
<i>Figure E.8. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{CO}).....</i>	<i>213</i>
<i>Figure E.9. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{CO}).....</i>	<i>214</i>
<i>Figure E.10. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur f_{H_2}.....</i>	<i>215</i>
<i>Figure E.11. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{H_2}).....</i>	<i>216</i>
<i>Figure E.12. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{H_2}).....</i>	<i>217</i>
<i>Figure F.1. Comparaison des stratégies de commande sur les mesures industrielles du fichier 3.....</i>	<i>219</i>

Liste des tableaux

<i>Tableau 1.1. Comparaison des différentes techniques d'élimination des boues.</i>	28
<i>Tableau 1.2. PCI de différents combustibles d'après ⁽¹⁾[Guibelin, 2000] et ⁽²⁾[McKendry, 2002].</i>	29
<i>Tableau 1.3. Valeurs limites des émissions atmosphériques d'incinération de déchets seuls d'après la [Directive 2000/76/CE].</i>	41
<i>Tableau 1.4. Caractéristiques des boues avant incinération, de la biomasse, et du charbon.</i> 42	
<i>Tableau 1.5. Paramètres opératoires de fonctionnement d'un incinérateur du charbon en lit fluidisé [Ron, 1995].</i>	44
<i>Tableau 2.1. Les composés issus de la dévolatilisation de boues.</i>	52
<i>Tableau 2.2. Composés issus de la dévolatilisation de la biomasse [Liu et Gibbs, 2002].</i>	58
<i>Tableau 2.3. Les réactions de référence (combustion de la biomasse) [Liu et Gibbs, 2002].</i> ..	59
<i>Tableau 2.4. Les vitesses de 25 réactions et leurs paramètres cinétiques ([Liu et Gibbs, 2002]).</i>	61
<i>Tableau 3.1. Comparaison des composés issus de la dévolatilisation des boues et de la biomasse.</i>	81
<i>Tableau 3.2. Réactions chimiques dans la combustion des boues en lit fluidisé.</i>	83
<i>Tableau 3.3. Les paramètres « connus » servant aux conversions.</i>	89
<i>Tableau 3.4. Les paramètres du « Four ».</i>	89
<i>Tableau 3.5. Les paramètres « thermiques ».</i>	90
<i>Tableau 3.6. Les paramètres de « répartition » issue de la dévolatilisation des boues.</i>	90
<i>Tableau 3.7. Les paramètres « cinétiques ».</i>	91
<i>Tableau 4.1. Valeurs moyenne de fonctionnement stable pour les trois fichiers.</i>	111
<i>Tableau 4.2. Les entrées pour l'initialisation du modèle de combustion.</i>	112
<i>Tableau 4.3. Valeurs stabilisées des sorties du modèle.</i>	112
<i>Tableau 4.4. Valeurs initiales et estimées des paramètres k_{22}^B et k_{22}^P du sous modèle de combustion.</i>	120
<i>Tableau 4.5. Valeurs initiales et estimées des paramètres en utilisant la loi d'Arrhénius.</i> ...	121
<i>Tableau 4.6. Initialisation du modèle des NOx.</i>	124
<i>Tableau 4.7. Valeurs initiales et estimées des paramètres cinétiques du modèle des NOx.</i> ..	128
<i>Tableau 5.1. Les paramètres « cinétiques » dans le modèle validé.</i>	150
<i>Tableau 5.2. Point de fonctionnement du modèle ($[X_0, Y_0]$).</i>	150
<i>Tableau B.1. Dimensions et paramètres opératoires du four (données industrielles).</i>	193
<i>Tableau C.1. Les principales grandeurs mesurées de la station d'incinération des boues.</i> ..	198

Nomenclature

CONSTANTES

M_i	Masse molaire du composant i	$\text{kg} \cdot \text{mol}^{-1}$
P_0	Pression atmosphérique $P_0 = 101300 \text{ Pa}$	Pa
R	Constante universelle des gaz parfaits, $R=8,314 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$

PARAMETRES

c_{pa}	Chaleur spécifique de l'air à pression atmosphérique	$\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
c_{pb}	Chaleur spécifique des boues	$\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
$c_{p,\text{cendres}}$	Chaleur spécifique des cendres	$\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
c_{pg}	Chaleur spécifique du gaz à pression atmosphérique	$\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
c_{ps}	Chaleur spécifique du sable	$\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
H	Hauteur totale du four	m
H^B	Hauteur du lit bouillonnant	m
h	Enthalpie	$\text{J} \cdot \text{kg}^{-1}$
h_0	Enthalpie de référence	$\text{J} \cdot \text{kg}^{-1}$
k_j	Constante cinétique de la réaction j	$\text{mol}^{(1-\tau)} \cdot \text{m}^{-3(1-\tau)} \cdot \text{s}^{-1}$ τ : ordre globale de réaction
$L_{\text{H}_2\text{O}}$	Chaleur latente de vaporisation de l'eau $L_{\text{H}_2\text{O}}=40644 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1}$	$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$
m_g^P	Masse de gaz dans le lit post-combustion	kg
m_s^B	Masse de sable dans le lit bouillonnant	kg
r_j	Vitesse de la réaction j	$\text{mol} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$
Q	Chaleur reçue ou perdue	$\text{J} \cdot \text{h}^{-1}$
V^B	Volume du lit bouillonnant	m^3
V^P	Volume du lit post-combustion	m^3

Caractères grecs

ΔH_{R23}	Enthalpie de la réaction R23	$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$
ΔH_{R22}	Enthalpie de la réaction R22	$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$
ΔH_{R24}	Enthalpie de la réaction R24	$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$
φ_i	Vitesse de production ou de consommation du composant i par réaction chimique	$\text{mol} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$
$\rho_{a(T)}$	Masse volumique de l'air à la température T	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
$\rho_{g(T)}$	Masse volumique du gaz à la température T	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$

ANALYSE DES BOUES :

- **COMPOSITION.**
- **REPARTITION APRES DEVOLATILISATION.**

MB	Matière brute
MS	Matière sèche
MV	Matière volatile

f_{H_2O}	Fraction massique en eau des boues brutes
f_{char}	Fraction massique du carbone fixe (% de MS)
f_{vol}	Fraction massique des matières volatiles (% de MS)
$f_{cendres}$	Fraction massique des cendres (% de MS)
f_C	Fraction massique du carbone (% de MS sauf cendres)
f_H	Fraction massique de l'hydrogène (% de MS sauf cendres)
f_O	Fraction massique de l'oxygène (% de MS sauf cendres)
f_N	Fraction massique d'azote (% de MS sauf cendres)
f_S	Fraction massique du soufre (% de MS sauf cendres)
f_{CO}	Fraction massique du monoxyde de carbone (CO) issu de la dévolatilisation (% de MV)
f_{CH_4}	Fraction massique du méthane (CH ₄) issu de la dévolatilisation (% de MV)
f_{H_2}	Fraction massique du dihydrogène (H ₂) issu de la dévolatilisation (% de MV)
f_{CO_2}	Fraction massique du dioxyde de carbone (CO ₂) issu de la dévolatilisation (% de MV)
f_{N-CN}	Fraction d'azote solide prisonnière avec le carbone fixe après la dévolatilisation (% de f_N)
f_{N-HCN}	Fraction de transformation de l'azote des boues f_N en molécule HCN après dévolatilisation (% de f_N)
f_{N-NH_3}	Fraction de transformation de l'azote des boues f_N en molécule NH ₃ après dévolatilisation (% de f_N)

CONCENTRATIONS MOLAIRES

C_{CO}^B	Concentration molaire de CO dans le lit bouillonnant	mol.m ⁻³
C_{CO}^P	Concentration molaire de CO dans le lit post-combustion	mol.m ⁻³
$C_{CH_4}^B$	Concentration molaire de CH ₄ dans le lit bouillonnant	mol.m ⁻³
$C_{CH_4}^P$	Concentration molaire de CH ₄ dans le lit post-combustion	mol.m ⁻³
$C_{H_2O}^B$	Concentration molaire de vapeur d'eau dans le lit bouillonnant	mol.m ⁻³

$C_{H_2O}^P$	Concentration molaire de vapeur d'eau dans le lit post-combustion	mol.m^{-3}
C_{HCN}^B	Concentration molaire de HCN dans le lit bouillonnant	mol.m^{-3}
C_{HCN}^P	Concentration molaire de HCN dans le lit post-combustion	mol.m^{-3}
$C_{NH_3}^B$	Concentration molaire de NH_3 dans le lit bouillonnant	mol.m^{-3}
$C_{NH_3}^P$	Concentration molaire de NH_3 dans le lit post-combustion	mol.m^{-3}
C_{NO}^B	Concentration molaire de NO dans le lit bouillonnant	mol.m^{-3}
C_{NO}^P	Concentration molaire de NO dans le lit post-combustion	mol.m^{-3}
$C_{O_2}^B$	Concentration molaire d' O_2 dans le lit bouillonnant	mol.m^{-3}
$C_{O_2}^P$	Concentration molaire d' O_2 dans le lit post-combustion	mol.m^{-3}

DEBITS MASSIQUES OU VOLUMIQUES

F_a^{in}	Débit volumique d'air injecté dans le four	$\text{m}^3.\text{h}^{-1}$
F_{am}^{in}	Débit volumique d'air injecté dans l'échangeur de chaleur avec une température ambiante	$\text{m}^3.\text{h}^{-1}$
F_g^B	Débit volumique de gaz sortant du lit bouillonnant	$\text{m}^3.\text{h}^{-1}$
F_g^P	Débit volumique de gaz sortant du lit post-combustion	$\text{m}^3.\text{h}^{-1}$
Q_b^{in}	Débit massique de boues entrant dans le four	kg.h^{-1}
$Q_{b,MS}^{in}$	Débit massique de la matière sèche des boues entrant dans le four	kg.h^{-1}
$Q_{cendres}$	Débit massique de cendres sortant du four	kg.h^{-1}

FLUX OU DEBITS MOLAIRES

F_{CO}^{in}	Débit molaire de CO après la dévolatilisation	mol.h^{-1}
$F_{CH_4}^{in}$	Débit molaire de CH_4 après la dévolatilisation	mol.h^{-1}
$F_{H_2}^{in}$	Débit molaire de H_2 après la dévolatilisation	mol.h^{-1}
$F_{H_2O}^{in}$	Débit molaire de vapeur d'eau après le séchage	mol.h^{-1}
F_{HCN}^{in}	Débit molaire de HCN après la dévolatilisation	mol.h^{-1}
$F_{NH_3}^{in}$	Débit molaire de NH_3 après la dévolatilisation	mol.h^{-1}
$F_{O_2}^{in}$	Débit molaire d' O_2 après la dévolatilisation	mol.h^{-1}

TEMPERATURES

T^B	Température du lit bouillonnant	K
T^P	Température du lit post-combustion	K
T_a^{in}	Température de l'air injecté dans le four	K
T_{am}	Température de l'air ambiante	K

T_b^{in} Température des boues entrant dans le four K

MESURES DES GAZ

y_{CO} Mesure de CO sortant du four ppmv ($cm^3.m^{-3}$)
 y_{NO} Mesure de NOx sortant de la cheminée $mg.Nm^{-3}$
 y_{O_2} Mesure d'O₂ sortant du four % volumique

INDICES

a air
b boues
g gaz
i Composant i
j Réaction j
mes Mesure industrielle
sim Simulation du modèle

EXPOSANTS

in Entrée du four
B Lit bouillonnant
P Lit post-combustion

Introduction générale

Les procédés de traitement des eaux résiduaires urbaines génèrent des quantités importantes de déchets, généralement sous forme de boues. En Europe, il y a plus de 50 000 stations d'épurations qui produisent plus de 7.9 millions de tonnes de boues (en matière sèche) [Hall, 1999]. En France, 11 000 stations d'épuration assurent le traitement des eaux urbaines et produisent 2 millions de tonnes de boues (en matière sèche) [Gay, 2002].

La destination finale des boues d'épuration des eaux résiduaires urbaines est souvent affaire de circonstances. Actuellement trois destinations ultimes sont possibles et pratiquées à l'échelle industrielle :

- La valorisation matière quand elle est possible : réutilisation agricole (par épandage des boues, après compostage ou après séchage thermique sous forme de granulés) ;
- La mise en décharge, en respectant les nouvelles directives européennes ;
- L'incinération des boues seules ou éventuellement combinées aux ordures ménagères. L'incinération des boues en co-incinération nécessite une déshydratation sévère (jusqu'à 90% de matière sèche) à cause du stockage et du transport, tandis que les boues humides peuvent être incinérées telles quelles.

Parmi les différentes techniques d'élimination, l'épandage agricole permet de recycler la matière organique par l'utilisation de boues comme engrais. Mais, malgré une réglementation stricte et un contrôle permanent, cette utilisation a rencontré les réticences du public. Les risques sont dus à la présence éventuelle de métaux lourds, de matière toxiques ou d'agents pathogènes. Enfin, la quantité de boues ne cesse d'augmenter à cause du nombre de plus en plus important d'industries et de logements connectés au réseau de traitement. La valorisation agricole atteint ses limites et les boues en surplus doivent être éliminées par d'autres moyens.

Même si l'incinération n'est pas une méthode idéale, elle permet toutefois d'offrir une solution concrète et immédiate au problème de la quantité toujours croissante de boues produites. L'incinération permet en particulier la réduction du volume des boues (jusqu'à 90%) par transformation en cendres stabilisées et la destruction des composés organiques constituant la majorité de la phase gazeuse émise. Il est envisageable aussi de valoriser thermiquement cette incinération. Cependant, le traitement thermique est coûteux. Les fumées

doivent être traitées afin de respecter les normes de rejets des polluants atmosphériques en vigueur.

L'incinération est souvent utilisée pour les stations des grandes agglomérations urbaines (quelques dizaines de t MS/j), pour lesquelles se pose le problème des surfaces disponibles à dégager dans les plans d'urbanisme pour l'épandage ou la décharge des déchets boueux.

La plupart des incinérateurs à boues utilisent actuellement la technique de combustion en lit fluidisé. Cette technique présente de nombreux avantages par rapport aux incinérateurs conventionnels : lorsqu'il est optimisé, il est adapté à une plus large gamme de combustibles y compris ceux ayant un faible PCI (charbon maigre, boues, déchets) ; son rendement est élevé.

Nous nous plaçons dans le principe d'incinération « solo » - à la fois par souci de simplicité et car cela correspond aux mesures dont nous disposons. Cette technique permet d'utiliser des boues à forte teneur en eau (siccité inférieure à 30%).

La combustion complète des boues produit du CO_2 , H_2O , N_2 , SO_2 . Les réactions de combustion sont de type « oxydant » : un excès d'air évite que l'oxygène soit le facteur limitant. Cependant, aucune combustion n'est totalement complète dans tout réacteur réel. Le monoxyde de carbone (CO) et les oxydes d'azote (NOx) notamment sont détectés dans les fumées.

Nous disposons maintenant d'études expérimentales importantes sur la composition des boues et leur comportement thermique. Cependant il n'existe à notre connaissance aucun modèle réactionnel de formation des NOx à partir de la combustion des boues. Nous nous sommes donc basés sur les études de l'incinération d'autres combustibles : le charbon, la biomasse et les déchets. Nous avons adapté ces références aux connaissances sur les boues.

L'objectif de ce travail est de développer et de valider un modèle permettant de décrire la combustion des boues afin de prédire les émissions des oxydes d'azote. Ce modèle est utilisé en simulation afin de proposer une stratégie de commande garantissant le respect des normes d'émissions des oxydes d'azote (NOx).

Le mémoire présenté ici comporte cinq chapitres :

Le premier chapitre présente un ensemble de connaissances sur les boues : leur formation, leur composition et leurs caractéristiques physico-chimiques, les techniques de traitement et

d'élimination finale. Ensuite le principe de fonctionnement du four à lit fluidisé est développé. Les polluants atmosphériques et les normes de rejet sont ensuite présentés. Enfin le sujet de thèse est justifié par le problème du fonctionnement d'un incinérateur de boues en lit fluidisé.

Le deuxième chapitre est consacré à une étude bibliographique de la combustion des boues en lit fluidisé. Les mécanismes de la combustion de boues et les modèles les plus proches de notre étude sont présentés, et notamment la formation et la réduction des oxydes d'azote. Cette étude nous permet de dégager les hypothèses principales de modélisation et de proposer une démarche méthodologique.

Le chapitre 3 propose un modèle d'incinérateur des boues à lit fluidisé. Ce modèle est constitué d'un système d'équations différentielles non linéaires, écrit à partir de bilans massiques et thermiques, incluant les cinétiques de réaction.

Le chapitre 4 permet de comparer le comportement du modèle avec des mesures industrielles. Dans une première partie, le modèle est adapté au problème des entrées non mesurées (la composition des boues entrant dans le four). Le modèle est simplifié et divisé en deux sous-modèles afin d'en diminuer les degrés de liberté. Les paramètres cinétiques sont ensuite identifiés à l'aide de mesures. Enfin, le modèle complet est validé avec les autres mesures disponibles.

Le chapitre 5 propose une stratégie de commande. L'objectif de commande est de respecter les normes de rejet malgré les contraintes sur les variables du procédé et les actionneurs et de rejeter les perturbations. Une étude des caractéristiques statiques permet de choisir l'actionneur le plus adapté à notre objectif de commande. Une stratégie est proposée, puis simulée afin d'en connaître les performances.

Chapitre 1. Présentation et problématique de l'incinération des boues en lit fluidisé

Le chapitre 1 présente un ensemble de connaissances sur les boues : leur formation, leur composition et leurs caractéristiques physico-chimiques, les techniques de traitement et d'élimination finale. Ensuite le principe de fonctionnement du four à lit fluidisé est développé. Les polluants atmosphériques et les normes de rejet sont alors présentés. Enfin le sujet de thèse est justifié par la problématique du fonctionnement d'un incinérateur de boues en lit fluidisé.

1.1. Les boues d'épuration et leur traitements

1.1.1. Formation des boues d'épuration

Les eaux usées domestiques sont rassemblées dans une station d'épuration et traitées par une série d'étapes : le dégrillage (la séparation des objets de grosse taille), le déshuilage et le dégraissage (l'élimination des huiles et des graisses), le désablage, le traitement primaire physico-chimique (pour séparer les matières en suspension), puis en dernier une phase de traitement biologique. L'élimination des composés organiques s'effectue dans les phases de traitement primaire (principalement les composés particuliers) et de traitement secondaire (composés solubles). La figure 1.1 montre que les boues proviennent de ces deux étapes, et sont donc constituées en grande partie de composés organiques (pollution carbonée et azotée, biomasse vivante et morte).

Les boues sortant des traitements primaires et secondaires, appelées boues d'épuration, sont très volumineuses et contiennent des matières organiques fermentescibles. Par conséquent les boues subissent plusieurs traitements avant leur élimination ou leur évacuation. La première étape est l'épaississement qui permet de réduire le volume des boues par tassement naturel ou mécanique. La seconde étape est le conditionnement biologique, qui rend les boues non fermentescibles à l'aide de méthodes physiques (thermiques) et/ou chimiques (ajout de réactifs minéraux, de polymères de synthèse ou de poly-électrolytes).

Enfin la troisième étape est l'étape de déshydratation (mécanique et thermique) qui permet de réduire fortement le volume des boues.

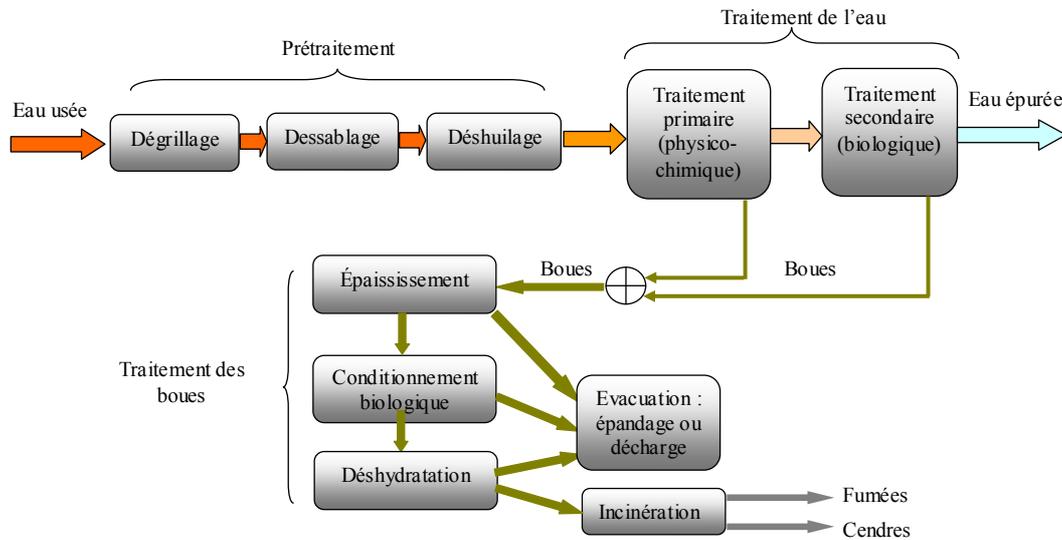


Figure 1.1. Traitement de l'eau et des boues dans une station d'épuration.

Le volume des boues après traitement reste très important. A titre d'exemple, pour une station d'épuration traitant les eaux domestiques de l'agglomération de Grenoble, il arrive chaque jour en moyenne $213\,712\text{ m}^3$ d'eau à traiter, ce qui conduit à 19 tonnes de boues (mesuré en matières sèches) produites par jour. Soit 1 m^3 d'eau usée produit environ 90 grammes de boues [Rapport annuel d'assainissement, 2006].

1.1.2. Définition des caractéristiques physico-chimiques

Notre étude est limitée aux boues d'origine urbaine, qui sont susceptibles d'être valorisées par l'incinération. La composition des boues brutes est extrêmement variable d'une station à l'autre car elle dépend de la nature des effluents et du type de traitement. Les caractéristiques physico-chimiques couramment utilisées, donnant une précieuse indication sur le degré d'aptitude à l'incinération, sont présentées ici.

Matière sèche (MS en % de Matière Brute MB)

C'est le paramètre principal et un des plus faciles à mesurer. La teneur en matière sèche est exprimée en $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ si les boues sont liquides et en % de la masse totale de Matière Brute (MB) si les boues sont solides. Elle permet de connaître la quantité de boue à éliminer. La mesure de matière sèche est obtenue en séchant à masse constante un échantillon de boues à 105°C à l'étuve ou par infrarouge [NF EN 14346]. On emploie souvent le terme de siccité

pour exprimer la teneur en matière sèche de boues. La siccité est le pourcentage massique de matière sèche. Ainsi une boue avec une siccité de 10% présente une humidité de 90%.

Matières volatiles, carbone fixe et cendres (% de MS)

Les teneurs en matières volatiles, en carbone fixe et en cendres sont obtenues en chauffant un échantillon à 950°C : la masse perdue est la matière volatile, la masse inerte restant est constituée du carbone fixe et des cendres. Le carbone fixe peut être brûlé, mais les cendres sont inertes, et sont donc minérales. MS sauf cendres sont les matières organiques sèches qui peuvent être brûlées totalement.

Composition élémentaire (C, H, O, N, S en % de MS sauf cendres)

C'est la connaissance de la composition de la boue en composés élémentaires de carbone (C), d'hydrogène (H), d'oxygène (O), d'azote (N) et de soufre (S) qui permet de prévoir le comportement thermique de la boue, ainsi que les polluants potentiellement formés. L'analyse élémentaire peut être obtenue notamment par spectrométrie de fluorescence X.

Pouvoir Calorifique Inférieur (PCI)

Le pouvoir calorifique massique représente la quantité d'énergie dégagée par unité de masse du carburant lors de la réaction de combustion complète conduisant à la formation de CO₂ et H₂O. On distingue le Pouvoir Calorifique Supérieur (PCS) et le Pouvoir Calorifique Inférieur (PCI) selon que l'eau obtenue par combustion se trouve à l'état liquide ou à l'état gazeux. La seule grandeur utile en pratique est le PCI, puisque lors de la combustion dans un four, l'eau est rejetée sous forme de vapeur [Guibet, 1989].

1.1.3. Traitements et valorisation des boues

Les boues sortant du clarificateur du traitement biologique de la station d'épuration représentent un volume très important. Leur teneur en eau est importante et les matières organiques sont fermentescibles. L'eau doit donc être éliminée pour réduire le volume des boues, et les boues doivent être conditionnées afin d'être rendues non fermentescibles. Pour ces raisons, les boues passent par une série d'opérations entre la sortie du traitement biologique et leur mise en décharge ou leur élimination définitive par destruction ou valorisation finale (figure 1.2) : épaissement, conditionnement, déshydratation et

élimination.

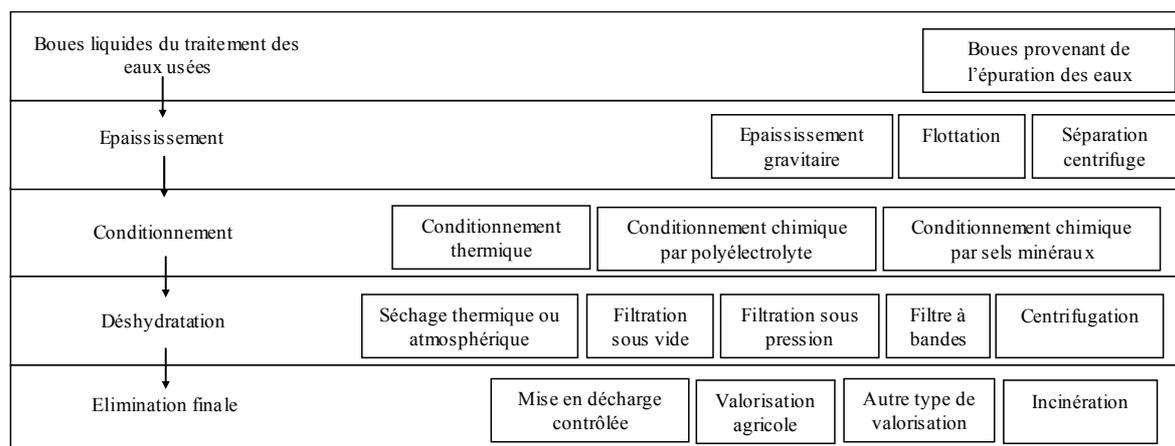


Figure 1.2. Filières de traitement des boues d'épuration d'après [Boeglin, 2000].

La technique d'élimination finale des boues d'épuration doit être adaptée à la quantité de boues produites et par conséquent à la taille de la station d'épuration et doit respecter la réglementation imposée pour éviter toute pollution du sol ou atmosphérique. Il y a deux types de valorisations principales : valorisation agricole et valorisation thermique. Dans tous les cas, il s'agit de procédés dégradant tout ou partie de la matière organique des boues. Ces techniques s'appliquent donc préférentiellement aux boues riches en matières organiques. Ces techniques sont discutées ci-dessous et comparées dans le tableau 1.1.

Techniques d'élimination des boues	Avantages	Contraintes
Epandage agricole	- Apport de nutriments - Moins coûteux - Moins technique	- Pollution du sol - Qualité - Quantité nécessaire variable
Mono-incinération	- Energie renouvelable - Site local - Grande capacité	- Image négative - Pollution atmosphérique - Plus coûteux - Plus technique
Co-incinération	- Moins coûteux	- Stockage et transport

Tableau 1.1. Comparaison des différentes techniques d'élimination des boues.

Epandage agricole

Les résidus du traitement des eaux peuvent être utilisés comme fertilisants dans les sols cultivés du fait de la présence d'azote dans leur composition. Cette valorisation présente

comme avantage de permettre le retour dans les sols de la matière organique et d'éviter l'utilisation d'engrais artificiels. Mais, malgré une réglementation stricte et un contrôle permanent, cette utilisation a rencontré les réticences du public. Les risques sont dus à la présence éventuelle de métaux lourds, de matières toxiques ou d'agents pathogènes. Enfin, si la quantité de boues est trop importante (quelques tonnes par jour), cette valorisation atteint ses limites et les boues en surplus doivent être éliminées par d'autres moyens.

Valorisation thermique

Même si l'incinération n'est pas une méthode idéale, elle permet toutefois d'offrir une solution concrète et immédiate au problème de la quantité de boues produites et à son augmentation régulière. L'incinération offre les avantages d'une valorisation thermique associée à une réduction du volume extrêmement importante (jusqu'à 90%). De plus, les constituants organiques et toxiques des boues sont détruits par la combustion. En effet, les cendres restant après l'incinération sont biologiquement inertes. Cependant, le traitement thermique est coûteux, et il génère un certain nombre de polluants (gaz ou particules fines) dans les fumées.

Le tableau 1.2 présente les PCI des différents combustibles en MS : boues, biomasse (bois) et charbon. Le PCI des boues en MS est environ la moitié du PCI du charbon, dans le meilleur des cas, c'est-à-dire quand les boues sont déshydratées. Cependant celui-ci est tout de même suffisamment important pour assurer son autocombustion dans le four.

Combustibles	PCI (kJ/kg de MS)
Boues mixtes urbaines déshydratées ⁽¹⁾	16 500
Boues primaires de papeterie ⁽¹⁾	15 000
Bois ⁽²⁾	18 600
Lignite ⁽²⁾	26 800
Charbon bitumineux ⁽²⁾	34 000

Tableau 1.2. PCI de différents combustibles d'après ⁽¹⁾[Guibelin, 2000] et ⁽²⁾[McKendry, 2002].

En mono-incinération, les boues d'épuration sont brûlées seules dans un incinérateur en général sur le site de la station de traitement des eaux usées. Elles ont été au préalable séchées jusqu'à une valeur acceptable (autour 25% de MS) en vue de leur autocombustibilité. La

mono-incinération est d'autant plus intéressante que la quantité de boues à traiter est importante (par exemple 19 tonnes de boues en MS par jour [Rapport annuel d'assainissement 2006]).

En co-incinération, les boues d'épuration, sous forme de granulés solides (préséchage jusqu'à 90% de MS) pour le stockage et le transport, sont incinérées avec un autre combustible dans les centrales thermiques, les incinérateurs de déchets et les fours de cimenterie. Dans la plupart des cas, les boues ne représentent qu'une petite partie de la capacité de l'installation afin que le procédé ou le produit ne soit pas affecté. Les boues de petite ou moyenne station sont détruites en co-incinération, dont le coût est moins cher en investissement et en fonctionnement que la mono-incinération.

Il existe d'autres techniques, dites techniques alternatives, qui sont plus onéreuses et plus du domaine de l'avenir:

- l'oxydation par voie humide (OVH) consiste à minéraliser un déchet par des réactions d'oxydation à chaud (250°C à 300°C), sous pression (30 à 120 bar), en phase liquide et en présence d'un oxydant gazeux, généralement l'oxygène [Guibelin, 2000]. C'est une technique s'appliquant à des déchets spécifiques et le coût limite son installation.
- La pyrolyse est une dissociation thermique de la matière organique, en l'absence d'oxygène (moins de 2%), sous l'action de la chaleur (400 à 800°C). Il s'agit donc d'un traitement thermique sans combustion et endothermique [Gay, 2002].
- La gazéification est un procédé de conversion totale de la matière organique en gaz par combustion partielle. L'oxydation se déroule à température moyenne ou élevée (de 850°C à 1400°C) avec une quantité limitée d'élément oxydant (air, vapeur ou oxygène pur) [Gay, 2002].

Dans le cadre de notre étude, nous nous intéresserons à la mono-incinération. Le paragraphe suivant présente la technologie la plus utilisée : la technique à lit fluidisé.

1.2. Les fours à lit fluidisé

La plupart des incinérateurs de boues utilisent actuellement la technique de combustion en lit fluidisé. Tous les combustibles solides, fragmentés à une granulométrie convenable, peuvent être brûlés suivant ce mode de combustion. Il peut être appliqué à des générateurs de

puissance thermique très importante (jusqu'à 2 200MW), et il concurrence les autres modes de combustion à cause de ses avantages dans la lutte contre la pollution atmosphérique [Delaplace, 1980].

1.2.1. Généralités

L'historique de la technique de fluidisation est décrite dans [Basu et Fraser, 1991] : « En décembre 1921 en Allemagne, Fritz Winkler introduit un flux gazeux dans le fond d'un creuset de combustion contenant des particules de charbon. Il observe alors que sous l'effet de la poussée du fluide, le comportement des particules est semblable à un liquide en ébullition. Cette petite expérience est à la base d'un des grands chapitres de la technologie moderne : la fluidisation. La première application industrielle de fluidisation est un réacteur de gazéification du charbon en 1926. Depuis 1940, cette technique a pris son véritable essor après le lancement des premiers réacteurs de craquage catalytique. Dans les années 1960, Douglas Elliott reconnaît le mérite de la combustion du charbon en lit fluidisé et applique cette technologie aux centrales thermiques. ».

Vers la fin des années 1970, le lit fluidisé circulant utilisé pour la production d'électricité apparaît [Tua, 1997].

La fluidisation consiste à mettre en suspension des particules, au moyen de la circulation d'un fluide. Le terme fluidisation vient du fait que la suspension gaz/solide est amenée dans un état semblable à celui d'un fluide. L'ensemble se comporte alors comme un fluide plus ou moins dense suivant la vitesse d'écoulement du fluide. L'espace occupé par le fluide est appelé « lit », par analogie avec les cours d'eau.

Pour un lit de particules, en augmentant de façon progressive la vitesse ascensionnelle du fluide gazeux, nous observons différents comportements (figure 1.3) :

- Lit fixe : vitesse très faible du fluide gazeux, les particules sont immobiles, aucune fluidisation ne se produit.
- Lit bouillonnant : en augmentant progressivement la vitesse du fluide gazeux, une transition s'effectue lorsque la force de traînée exercée sur les particules du lit est égale à leur poids. Cette transition est appelée fluidisation homogène et la vitesse correspondante est la vitesse minimale de fluidisation (U_{mf}). Si on continue à augmenter la vitesse du fluide gazeux au-dessus de U_{mf} , on voit apparaître un

régime de fluidisation hétérogène avec des bulles qui montent au sein du lit : le régime de bullage est atteint. Comme le comportement est proche de celui d'un réacteur de type gaz-liquide, on l'appelle lit fluidisé bouillonnant. On peut considérer qu'une partie seulement du gaz maintient les particules en fluidisation, et que l'excès traverse la colonne sous forme de bulles.

- Lit turbulent : si on augmente encore la vitesse du fluide gazeux, les bulles augmentent en taille (coalescence du gaz), tout en se dissolvant très rapidement, ce qui conduit à une expansion du lit et à un régime turbulent. C'est une transition entre lit bouillonnant et lit rapide.
- Lit rapide : en raison de la grande vitesse de fluide, les particules sont entraînées en continu sous forme diluée.

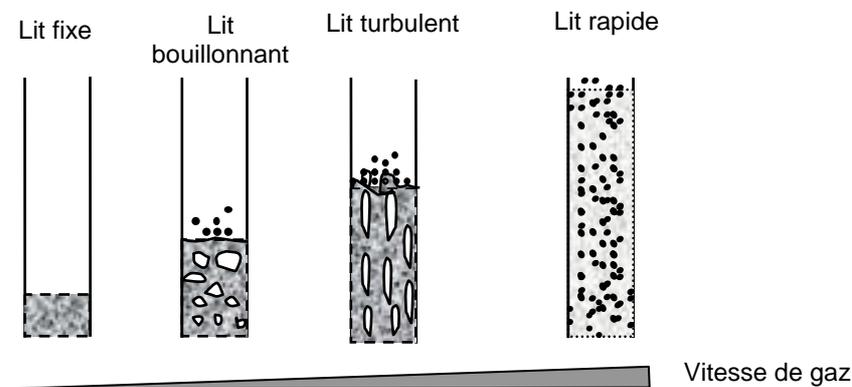


Figure 1.3. Régime de fluidisation d'après [Basu et Fraser, 1991].

Les applications du lit fluidisé concernent principalement trois grands types de réacteurs :

- Réacteurs catalytiques : le solide est un catalyseur, les réactions ont lieu à l'interface gaz/catalyseur. L'industrie pétrolière exploite ce type de procédé, notamment pour le craquage catalytique [Le Page, 1981]. D'autres applications chimiques de synthèse catalytique existent également dans le domaine de la chimie.
- Réacteurs à solides consommables : les solides consommables (charbon, déchets, biomasse, minerai de zinc, ...) réagissent directement avec le réactif gazeux. Les particules de sable permettent de créer une forte inertie thermique.
- Réacteurs de polymérisation : les particules grossissent au fur et à mesure de leur séjour.

Les différentes utilisations conduisent à différents types de modèles, selon que les réactions s'effectuent au niveau des gaz ou des particules.

1.2.2. Les différents types de réacteurs

Réacteur à lit fluidisé (figure 1.4) :

Le combustible solide est introduit dans un lit de matériaux auxiliaires (généralement du sable de quelques millimètres de diamètre) et maintenu en suspension (ou fluidisé) par un courant d'air ascendant injecté à la base du lit. Le régime du lit est bouillonnant. Le rôle du sable est à la fois de brasser les particules de boues entrantes et de maintenir une inertie thermique suffisante pour maintenir la température du lit fluidisé à la température de combustion des boues. L'air injecté permet à la fois de créer le régime de fluidisation par sa vitesse et de fournir l'oxygène nécessaire aux réactions chimiques. On appelle cette zone, située en bas du four : « lit bouillonnant ».

Au-dessus du lit bouillonnant, les bulles éclatent et les gaz sont entraînés vers le haut. Les gaz continuent une post-combustion qui augmente la température de cette zone. On appelle cette zone « lit post-combustion ».

Au démarrage, et lorsque cela est nécessaire, du fioul est utilisé afin d'élever la température à un niveau compatible avec l'autocombustion des combustibles.

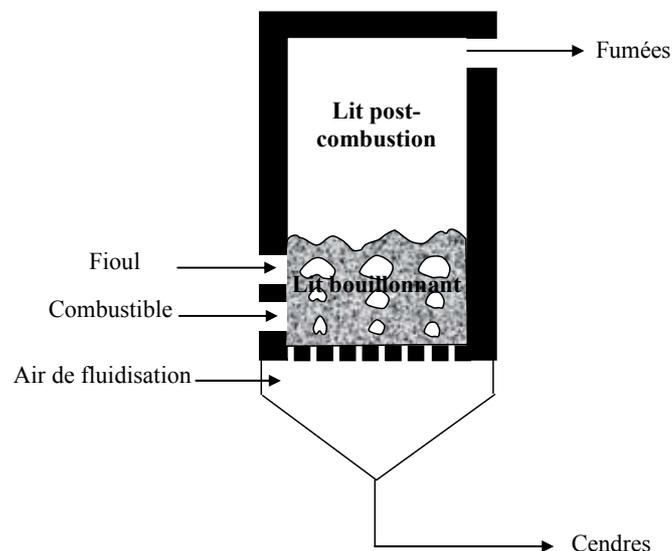


Figure 1.4. Schéma d'un four à lit fluidisé.

Four à lit fluidisé circulant (figure 1.5) :

Dans le four à lit fluidisé circulant, les particules ne restent pas confinées dans le bas du foyer mais il existe un entraînement continu des particules vers l'extérieur du foyer dû à la vitesse élevée des gaz (4 à 8 m/s). Le lit est en régime rapide. Un dispositif de type cyclone sépare alors les fumées des particules, ces dernières étant réinjectées à la base du foyer. Les combustibles solides sont donc recyclés en permanence (de 20 à 35 passages dans le foyer) permettant ainsi une combustion parfaite à une température choisie et maintenue constante – 850°C. Les fours à lit fluidisé circulant ont connu un important développement lié aux nouveaux procédés de combustion de charbon qui utilisent cette technique.

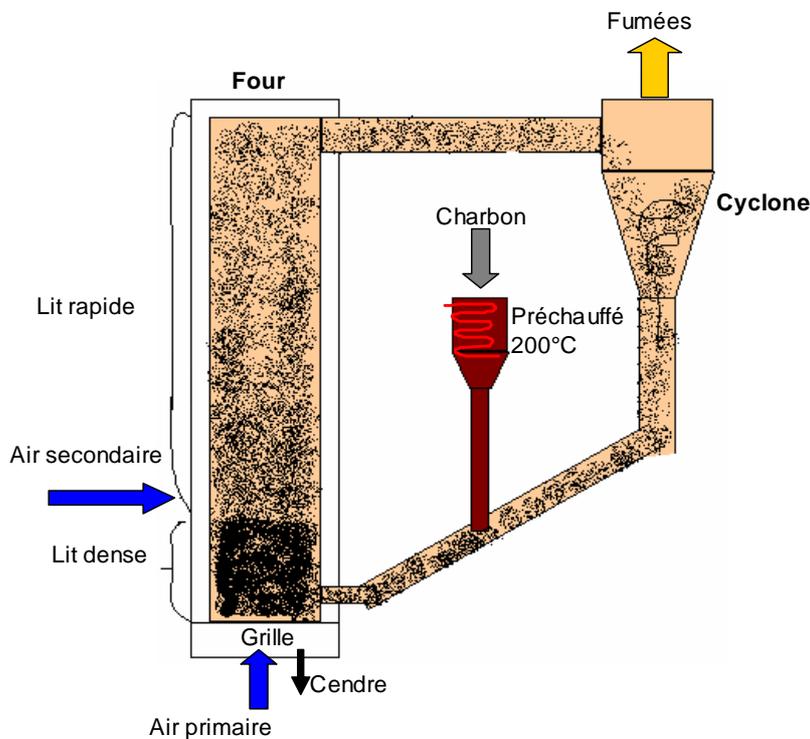


Figure 1.5. Schéma d'un réacteur à lit fluidisé circulant [Lassagne, 1999].

Le lit bouillonnant est le régime le plus courant dans les fours à lit fluidisé industriels. Dans les sites de centrales électriques, le lit fluidisé circulant est utilisé pour la combustion et le recyclage du charbon.

1.2.3. Unité d'incinération de boues d'épuration en lit fluidisé

La figure 1.6 présente le schéma d'une unité d'incinérateur de boues d'épuration en lit fluidisé. Plusieurs éléments complètent le fonctionnement du four à lit fluidisé :

- Un échangeur de chaleur, utilisant la température de sortie des gaz, permet de réchauffer l'air entrant.
- Les gaz de combustion entraînent une partie des cendres produites, ce qui nécessite un dépoussiérage efficace, qui est réalisé par un cyclonage à sec, suivi d'une séparation humide (laveur humide).
- Une cheminée permet l'évacuation des gaz.

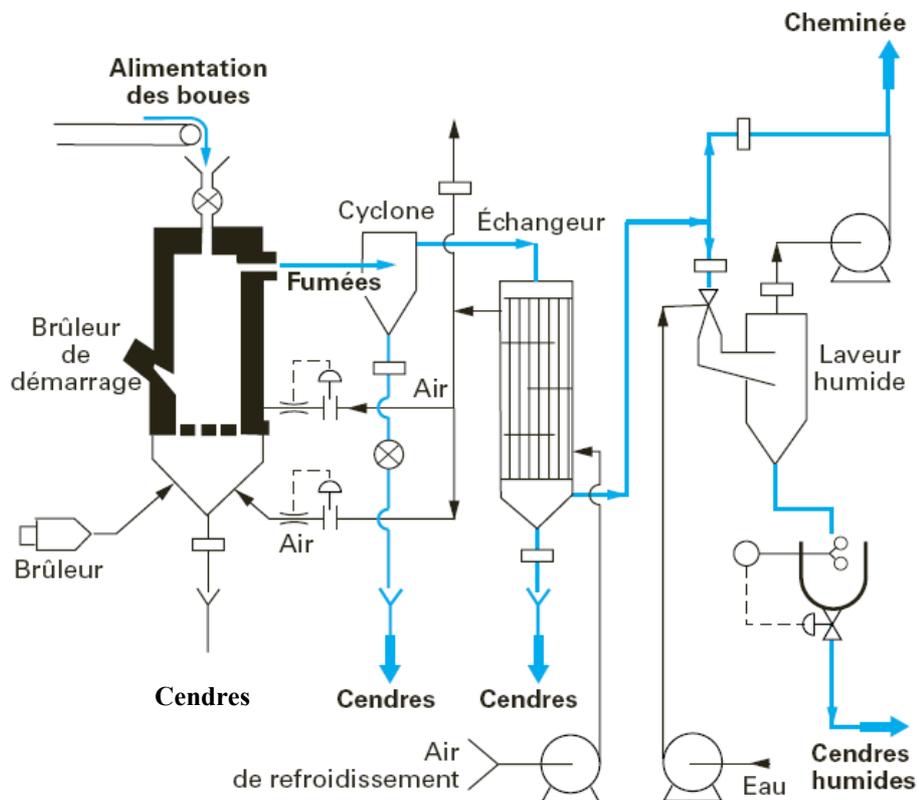


Figure 1.6. Schéma d'une unité d'incinérateur de boues d'épuration en lit fluidisé [Boeglin, 2000].

Le paragraphe suivant répertorie les gaz pouvant potentiellement être formés par la combustion des boues. Il est possible de rajouter un système de traitement des polluants avant la cheminée.

1.2.4. Polluants atmosphériques potentiels, traitements et réglementation

Les fumées issues de l'incinération des boues d'épuration peuvent contenir différents polluants atmosphériques, répertoriés ci-dessous. Plus de détails sont disponibles dans [Bicocchi, 1998].

Poussières

Les poussières sont issues des particules solides entraînées dans les gaz de cheminées. Elles comprennent principalement des cendres et éventuellement des fragments de combustibles imbrûlés. Elles peuvent contenir également des métaux lourds. Leur toxicité est principalement liée à leur teneur en métaux lourds et aux produits de combustion incomplète. Les particules plus fines qui sont rejetées à l'atmosphère constituent un risque à la fois direct pour l'homme (pénétration dans le système respiratoire) ou indirect (dépôt, puis contamination de la chaîne alimentaire).

Principe de la mesure : par absorption ou diffusion de lumière (par jauge β), par méthode optique (opacimètres).

On présente ci-dessous quelques dépoussiéreurs courants :

- Cyclone : les gaz pollués sont soumis à un mouvement de rotation, les particules se dirigent vers les parois du cyclone sous l'influence de la force centrifuge, ils s'agglomèrent et sont transportés sous l'action de la pesanteur, dans la trémie du cyclone. Les cyclones ne sont efficaces que pour les particules dont le diamètre est supérieur à 100 micromètres.
- Filtre à manche : un média filtrant est utilisé pour séparer les poussières des gaz. Il est très efficace pour retenir les poussières les plus fines, mais son utilisation est limitée par la température des gaz qui doit être inférieure à 150°C.
- Electrofiltre : les particules de poussières sont soumises à l'action d'un champ électrique établi entre deux électrodes. Suite à l'ionisation des molécules de gaz dans le champ électrique et à leur agglomération à la surface des particules, celles-ci migrent vers l'électrode dite collectrice. L'électrofiltre est très efficace pour les particules les plus fines et les flux à traiter élevés, mais son coût d'investissement est élevé.

Monoxyde de carbone (CO)

Le monoxyde de carbone est le produit d'une combustion incomplète, souvent dans le cas d'un défaut d'apport en dioxygène et de haute température. Sa toxicité pour l'homme réside dans le fait qu'il peut réagir avec l'hémoglobine pour former la carboxyhémoglobine (H_bCO), ce qui empêche le transfert d'oxygène dans le corps humain. Le manque d'oxygène cause des maux de tête, des nausées et peut même entraîner la mort à des concentrations extrêmement élevées. Il est de plus inodore. Le monoxyde de carbone est un gaz à effet de serre, et il participe aussi à la pollution photochimique.

Principe de la mesure in-situ : analyse spectrale de l'absorption d'un rayon lumineux dans les longueurs d'onde Infra Rouge.

Il n'existe pas de post-traitement pour le monoxyde de carbone, le mieux est donc d'éviter sa formation en fixant judicieusement les conditions de fonctionnement, en particulier avec un apport en dioxygène suffisant pour une oxydation des polluants au dioxyde de carbone (CO_2).

Oxydes de soufre (SOx), Acide Chlorhydrique (HCl)

On groupe ces deux polluants car ils constituent des gaz acides et peuvent être éliminés par des techniques de neutralisation. Les oxydes de soufre regroupent le mélange de SO_2 et SO_3 , mais lors de la combustion, le SO_2 est produit en quantité plus importante que le SO_3 (respectivement de l'ordre de 90% contre 10%). Les oxydes de soufre et l'acide chlorhydrique sont des composants qui peuvent conduire au phénomène de pluies acides. Ce phénomène conduit à l'acidification des sols composés de silice, qui entraîne le dépérissement des forêts.

Principe de la mesure : par absorption IR, UV ou par méthodes électrochimiques. Mesure in-situ : par analyse spectrale de l'absorption d'un rayon lumineux.

Techniques d'épuration : les gaz acides doivent être neutralisés avant émission atmosphérique, les nombreux modes d'élimination peuvent être regroupés en quatre technologies de fonctionnement différentes suivant l'état physique dans lequel se trouve l'additif de neutralisation :

- Procédés secs : un réactif alcalin (chaux) ou sodique (bicarbonate de sodium) sous forme solide est injecté afin d'assurer la neutralisation des gaz acides. Ces procédés sont les plus simples et de coût réduit.

- Procédés semi-humides : comme dans le cas du procédé sec, le principe du procédé semi-humide est de faire réagir de la chaux avec des gaz acides. Cependant, par opposition au cas du procédé sec où il est admis sous forme solide, un lait de chaux est injecté dans le réacteur. Le procédé semi-humide présente une performance supérieure à la voie sèche et un coût limité.
- Procédés humides : le principe du procédé humide est de capter les polluants en favorisant l'absorption et la réaction du gaz dans une lavage, elle-même pulvérisée à l'intérieur d'un laveur. Le procédé humide présente une performance élevée supérieure à celle du procédé sec et semi-humide, en revanche, son coût d'investissement est élevé lié au traitement des eaux de lavage et à la maintenance du procédé.
- Procédés par condensation : ils consistent à refroidir les fumées polluées à traiter à une température inférieure de quelques dizaines de degrés à leur point de rosée. Les polluants acides et les métaux lourds sont absorbés par l'eau condensée ou pour certains directement condensés. L'étape de condensation est surtout une technique de déchloruration et de défluorisation. Elle ne permet pas la désulfuration du gaz. Ces procédés assurent un rendement d'épuration élevé sur les différents polluants et permettent d'obtenir une captation poussée du HCl et des métaux lourds.

Oxydes d'azote (NOx) et protoxyde d'azote (N₂O)

Les polluants azotés sont constitués principalement par le monoxyde d'azote (NO), le dioxyde d'azote (NO₂) et le protoxyde d'azote (N₂O). L'appellation NOx regroupe donc principalement les constituants NO et NO₂, mais ce mélange est en fait riche en NO. Leurs impacts sont importants sur l'environnement en provoquant :

- Les pluies acides
- Le brouillard photochimique : ce brouillard est largement dû à l'action de la lumière solaire sur les oxydes d'azotes et les composés organiques volatils (COV), eux-mêmes issus des gaz d'échappements automobiles et des sources de combustion fixes.
- Le protoxyde d'azote affecte la couche d'ozone.

Principe de la mesure : par chimiluminescence de $\text{NO} + \text{O}_3$ ([Toupance *et al.*, 2004]) ;
mesure in-situ : par analyse spectrale de l'absorption d'un rayon lumineux.

Les fumées peuvent être dénitrifiées par les techniques de dénitrification (DéNOx) [Bicocchi, 1998] :

- Réduction sélective non catalytique (SNCR) : le procédé SNCR de dénitrification est basé sur l'injection d'un agent réducteur dans le four (ammoniac ou urée), ce qui permet de réduire les oxydes d'azote en diazote (N_2). Il faut noter que l'injection d'ammoniac est très sensible à la température, la température optimale se situant entre 850°C et 1000°C . Si le réactif est injecté dans le four à une température trop élevée, une partie de l'ammoniac est décomposé en diazote (N_2) et en eau (H_2O) ou oxydé en monoxyde d'azote (NO). Ces phénomènes impliquent une augmentation de la consommation de réactif. Si la température est très basse, la réaction de réduction du monoxyde d'azote est trop lente. Cette technique présente un rendement de réduction des oxydes d'azote à 50-70% selon le type de four utilisé.
- Réduction sélective catalytique (SCR) : les réacteurs SCR réalisent non seulement la dénitrification (DéNOx), mais aussi la neutralisation, le traitement de dioxines/furanes (DéDiOx). La gamme des températures de fonctionnement de l'unité SCR est liée à la nature du catalyseur. La température idéale est comprise entre 280 et 400°C . Les catalyseurs utilisés peuvent être de diverse nature : oxydes de vanadium (V_2O_5), de fer (Fe_2O_3), de manganèse (MnO_2) ou de chrome (CrO_3). La technique catalytique de SCR est la méthode industrielle la plus utilisée. Elle permet d'atteindre des rendements de réduction de NOx de l'ordre de 90%. Mais étant très coûteuse, la recherche sur les techniques catalytiques continuent d'être développées, surtout pour les petites et moyennes stations d'épuration [Tran *et al.*, 2007].
- Destruction par recombustion (reburning) : le principe est de réduire les oxydes d'azote à l'aide d'hydrocarbures, en milieu légèrement oxydant. Le procédé est caractérisé par trois phases distinctes : zone primaire qui est la zone de combustion principale où sont formés les oxydes d'azote à réduire dans la suite du processus ; zone secondaire (zone de recombustion) où les hydrocarbures sont injectés afin de réduire les oxydes d'azote : zone tertiaire (zone de combustion complète) où les

imbrûlés dans la zone de recombustion sont oxydés totalement par l'injection d'air. Cette technique présente un rendement de réduction des oxydes d'azote à 50-60%.

Métaux lourds (As, Cd, Hg, Ni, Pb)

Les métaux lourds sont toxiques et constitués généralement par l'arsenic (As), le cadmium (Cd), le mercure (Hg), le nickel (Ni), le plomb (Pb) et leurs composés avec les formes chlorées, oxydées, et soufrées. Après la combustion, les métaux lourds se présentent sous forme solide dans les poussières ou le mâchefer, et sous forme gazeuse ou liquide dans les fumées. En raison de leur grande toxicité pour la nature et les êtres humains, il est important de connaître les teneurs en métaux lourds dans les fumées et les cendres issues de l'incinération.

Principe de la mesure : spectrométrie d'émission atomique avec plasma inductif.

Les cendres sont traitées par les dépoussiéreurs, et les fumées par absorption, à l'aide de charbon actif ou coke de lignite.

Législation européenne des émissions atmosphériques d'incinération des déchets

La directive européenne 2000/76/CE fixe les seuils d'émissions pour le traitement des déchets. Les boues font partie des déchets, cependant leur traitement ne peut pas produire de Composés Organiques Volatils (COV), de dioxines/furanes ni de fluorure d'hydrogène. Les normes de rejets des émissions atmosphériques sont présentées dans le tableau 1.3 (pour les métaux lourds, se référer à la [Directive 2000/76/CE]). Ce tableau donne les valeurs limites à ne pas dépasser pas celles d'émissions.

Composé	Concentration ⁽¹⁾ (en mg/Nm ³)		
	Moyenne journalière	Moyenne sur 30 min	
		100% des moyennes	97% des moyennes
Poussières totales	10	30	10
Monoxyde de carbone (CO) ⁽²⁾	50	150 (95% des moyennes sur 10 min)	100 (100% des moyennes sur 30 min)
Chlorure d'hydrogène (HCl)	10	60	10
Dioxyde de soufre (SO ₂)	50	200	50
Monoxyde d'azote (NO) et dioxyde d'azote (NO ₂) exprimés en dioxyde d'azote pour les installations d'incinération existantes dont la capacité nominale est supérieure à six tonnes par heure ou pour les nouvelles installations d'incinération	200	400	200

(1) Les concentrations sont exprimées pour une température de 273 K, une pression de 101,3 kPa, une teneur massique en oxygène de 11% et pour un gaz sec.
(2) Les limites d'émissions en monoxyde de carbone dépendent de la fréquence des mesures (en dehors des phases de démarrage et de mise à l'arrêt).

Tableau 1.3. Valeurs limites des émissions atmosphériques d'incinération de déchets seuls d'après la [Directive 2000/76/CE].

1.3. Problématique du fonctionnement d'un incinérateur de boues en lit fluidisé

1.3.1. Caractéristiques et composition des boues prêtes à être incinérées

La composition des boues varie fortement d'une station à l'autre et d'une période à l'autre. On peut établir cependant des moyennes, qui diffèrent selon le pays. Le travail de [Werther et Ogada, 1999] représente une référence dans la composition des boues par l'ampleur de leurs travaux. Le tableau 1.4 établit une comparaison de la composition entre des boues d'origine allemande [Werther et Ogada, 1999], une étude française [Gratias, 2002], et deux autres combustibles : la biomasse [Liu et Gibbs, 2002] et le charbon [Werther et Ogada, 1999].

Remarque : les composés élémentaires sont constitués principalement par les éléments C, H, O, N, S, les autres éléments sont très faibles et donc négligés.

	Boues sèches (Allemagne) [Werther et Ogada, 1999]	Boues humides (France) [Gratias, 2002]	Biomasse [Liu et Gibbs, 2002]	Charbon bitumineux [Werther et Ogada, 1999]
Caractéristique physico-chimique (% massique)				
Humidité (f_{H_2O} % de MB)	13,0	-	38,6	6,0
Carbone fixe (f_{char} % de MS)	3,6	-	17,9	40,3
Matières volatiles (f_{vol} % de MS)	45,4	85,0	81,6	31,4
Cendres ($f_{cendres}$ % de MS)	51,0	15,0	0,5	28,3
Composés élémentaires (% massique, de MS et cendres libérées)				
C (f_C)	53,0	52,3	50,70	81,6
H (f_H)	7,8	8,0	6,30	5,8
O (f_O)	31,3	34,3	42,83	9,0
N (f_N)	6,5	4,9	0,15	1,3
S (f_S)	1,4	0,5	0,02	2,3

Tableau 1.4. Caractéristiques des boues avant incinération, de la biomasse, et du charbon.

On constate que le charbon est composé majoritairement de carbone fixe (40,3%) qui est peu présent dans les boues (3,6%) et la biomasse (17,9%). La biomasse est composée majoritairement de matières volatiles (81,6%) et n'a quasiment pas de cendres. Les différences de caractéristiques physico-chimiques des deux boues sont dues aux différentes origines et aux différents taux d'humidités. Les boues humides [Gratias, 2002] : pas de carbone fixe, matières volatiles très importantes, humidité non mesurée. Les boues sèches [Werther et Ogada, 1999] : matières volatiles et cendres importantes, carbone fixe faible.

L'analyse en composés élémentaires permet de mettre en évidence l'importance de la teneur en azote (5-6%) dans les boues par rapport au charbon et à la biomasse. C'est cette forte teneur qui est à l'origine de concentrations élevées en oxydes d'azote (NOx), caractéristiques de la combustion des boues.

La relation entre les caractéristiques des boues est décrite dans la figure 1.7 ci-dessous :

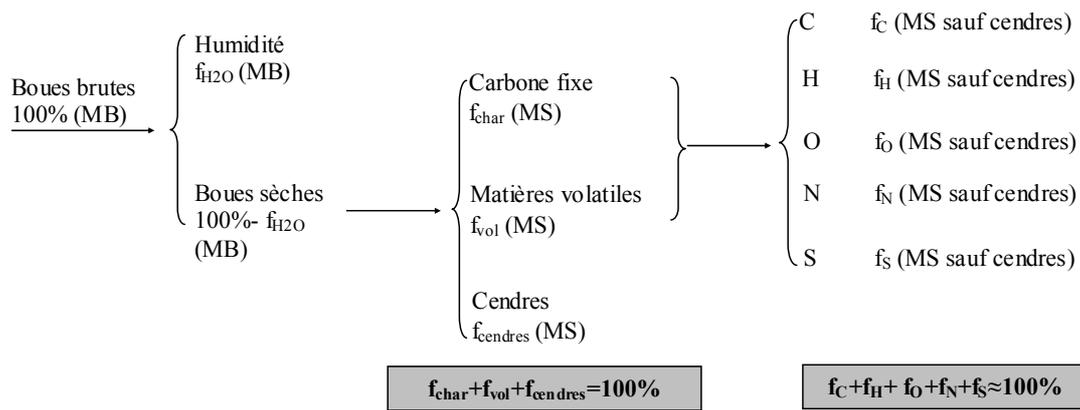


Figure 1.7. Schéma de composition de boues.

1.3.2. Paramètres opératoires

Généralement, la combustion en lit fluidisé doit respecter la règle empirique des « trois T » [Bourven et Roux, 1997] :

- Température uniforme : grâce à l'agitation du lit, l'inertie thermique et la grande surface de contact des particules, la distribution thermique est parfaitement assurée et homogénéise la température du lit.
- Temps de séjour : c'est la durée pendant laquelle les molécules sont exposées aux hautes températures. Il doit être suffisamment long pour assurer le déroulement complet des différentes réactions. Pour les gaz, le temps de séjour minimal est de deux secondes à une température de 850°C après la dernière injection d'air [Directive 2000/76/CE].
- Turbulence : une bonne turbulence des combustibles avec le sable augmente leur réactivité pendant la phase de combustion. Elle permet également de garantir l'uniformité de la température et d'éviter les points chauds.

Cette règle aboutit à fixer des plages pour les paramètres opératoires de combustion en lit fluidisé. Le tableau 1.5 ci-dessous présente ces conditions pour le charbon en lit fluidisé. Par extension, elles sont appliquées aux autres combustibles (biomasses, boues), sauf les déchets qui demandent une température plus élevée (900-1100°C).

Vitesse de fluidisation	1-3 m/s
Température à l'intérieur du four	750-950°C
Taille de particule de sable	1-2 mm

Tableau 1.5. Paramètres opératoires de fonctionnement d'un incinérateur du charbon en lit fluidisé [Ron, 1995].

En général, la quantité d'oxygène est régulée afin de garantir une quantité suffisante d'oxygène pour une combustion complète. Cette quantité est régulée par le débit d'air injecté, qui a un rôle double : satisfaire la quantité d'oxygène du four et garantir le régime de fluidisation. Sur la figure 1.8, la valeur de la consigne de la concentration d'oxygène sortant du four est réglée entre 4-6%, et la quantité d'oxygène dans le four est régulée par le débit d'air de fluidisation.

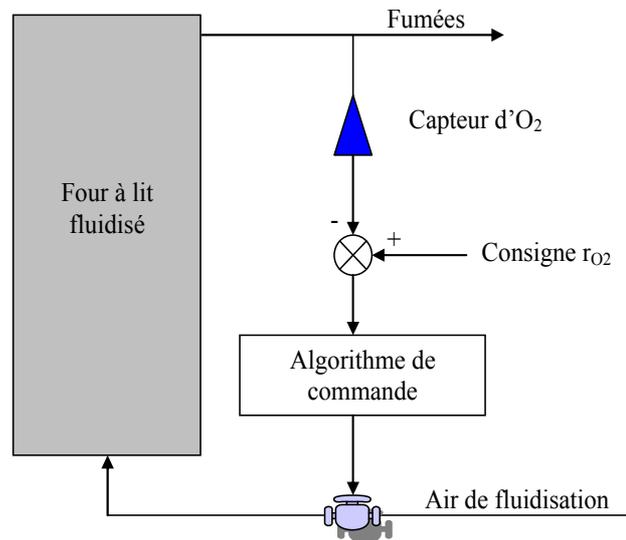


Figure 1.8. Schéma de la boucle de régulation d'O₂ sortant du four à lit fluidisé.

1.3.3. Le problème de la maîtrise de la qualité de la combustion de boues en lit fluidisé

Le paragraphe précédent montre que la maîtrise de la pollution, et plus généralement la qualité de la combustion, sont effectuées de manière indirecte : certains paramètres sont maintenus à des valeurs de consignes fixes, prévues pour un point de fonctionnement stable. Or ce mode de régulation rend le four extrêmement vulnérable aux perturbations. En effet, les boues entrantes sont supposées stables en composition, siccité et débit, ou au pire sujettes à

des variations suffisamment faibles pour ne pas modifier le point de fonctionnement du four. La dynamique de fonctionnement du four n'est pas prise en compte : il est prévu pour fonctionner de manière statique, avec des entrées constantes. Les variations sont supposées faibles et lentes, et donc rejetées par la régulation d'oxygène.

En réalité, la qualité des boues est variable ; et ces variations en composition, siccité ou débit sont suffisamment importantes pour éloigner le procédé des normes opératoires et détériorer fortement la qualité de la combustion. La régulation de l'oxygène peut devenir insuffisante. En effet, d'une part, elle ne permet pas d'anticiper les difficultés : la régulation se déclenche quand la combustion est déjà en manque d'oxygène, ce qui peut entraîner des régimes transitoires avec des dépassements importants, et, d'autre part, cette régulation ne permet absolument pas de maîtriser l'ensemble des paramètres opératoires, comme par exemple les températures. Or les paramètres opératoires sont étroitement couplés : toute variation soit en entrée, soit en interne (température, oxygène) entraîne une modification de l'ensemble de l'état de fonctionnement du four. Ainsi la qualité de la combustion, et par conséquent la maîtrise des gaz polluants émis ne sont plus garanties.

En pratique, la conséquence négative principale est la formation des oxydes d'azote (NO_x). Du fait qu'historiquement les mécanismes de formation du monoxyde de carbone (CO) et du méthane (CH₄) ont été étudiés pour la combustion du charbon, ils sont mieux connus et maîtrisés. Les exigences environnementales devenant plus contraignantes, de plus en plus de travaux de recherche sont dédiés à la formation des oxydes d'azote pour la combustion du charbon et de la biomasse, dont le mécanisme de formation n'est pas totalement connu. En ce qui concerne la combustion des boues, très peu d'articles ont été publiés. Des travaux très complets sur les paramètres opératoires et leurs effets ont été étudiés par J. Werther et T. Ogada, [Werther et Ogada, 1999]. Ils permettent de s'appuyer sur des résultats propres au comportement des boues de station d'épuration.

1.3.4. Etude bibliographique de la commande des boues en lit fluidisé

Un article sur la commande de la combustion des boues en lit fluidisé [Jia *et al.*, 2003], met en relief les difficultés de la mise en œuvre d'une telle commande :

- Le comportement dynamique du procédé est inconnu, et les valeurs expérimentales conduisent seulement à un modèle approximatif qui est une fonction de transfert du premier ordre.

- Le procédé de combustion montre de grands délais.
- Le modèle du procédé est un système d'équations différentielles raides, car les valeurs des constantes de temps sont extrêmement différentes. En effet, les constantes de temps liées aux températures sont plus de cinquante fois celles liées aux concentrations en oxygène. Il s'agit d'un pilote de laboratoire. On peut supposer que ces différences sont encore plus grandes sur un four industriel.

Le modèle proposé est un modèle reliant les débits de propane (combustible d'appoint) et d'air entrants à la température du lit bouillonnant et à la concentration d'oxygène. La commande est mise en œuvre sur un pilote de laboratoire. Cette étude montre que les difficultés principales viennent du manque de connaissance des phénomènes à l'intérieur du four, obligeant à établir une commande avec adaptation des paramètres et prise en compte d'incertitudes sur le modèle. D'autre part, la modélisation de l'azote n'est pas abordée. En conséquence, un modèle reproduisant les phénomènes significatifs de la combustion permettrait d'améliorer les algorithmes de commande.

Un autre article [Kortela *et al.*, 1994], s'intéresse à la modélisation, simulation et commande des procédés à lit fluidisé circulants. L'objectif de l'étude est d'améliorer les stratégies de commande et de minimiser les émissions nocives de gaz, pour différents types de combustibles : tourbe, copeaux de bois, sciure de bois. Toute amélioration des conditions de fonctionnement, même faible, conduit à des gains importants en efficacité énergétique ou en émission de gaz. Cette amélioration passe par une stabilisation du procédé et une bonne maîtrise de celui-ci.

Le problème de commande est défini comme un compromis entre l'efficacité énergétique et la limitation des émissions nocives. Les variables à contrôler sont la température du lit et la quantité d'oxygène. Les perturbations principales sont liées à la qualité du combustible entrant. La réduction des oxydes d'azote passe par des températures relativement basses et par un faible excès d'air. Les moyens de réduire ces émissions sont partiellement corrélés entre eux et ont aussi une influence sur l'efficacité du procédé. Les résultats d'une série d'expériences spécifiques, montrent que les taux d'émissions peuvent être réduits par le choix des conditions opératoires.

La réalisation est proposée par une commande hiérarchique : le niveau de commande inférieur comprend une boucle de commande nommée « Combustion Power Control »

permettant de stabiliser le procédé (selon le biocombustible, le procédé peut se déstabiliser), le niveau supérieur inclus un calage de consignes permettant de respecter les émissions gazeuses et l'efficacité thermique.

L'algorithme de commande optimal nécessite de disposer d'un modèle de formation des oxydes d'azote. Les résultats montrent que si les modèles linéaires obtenus par identifications expérimentales sont suffisants pour le charbon, ils sont inadéquats pour les biocombustibles. Devant les non-linéarités importantes, il recommande d'établir un modèle non linéaire.

Enfin une dernière considération montre que l'utilisation de l'alimentation en combustible comme variable de commande permet de stabiliser le fonctionnement du procédé. En effet, les transferts de chaleur et la fluidisation ne sont pas affectés comme ils peuvent l'être avec l'apport d'air. Cette commande fonctionne à condition que le combustible ait une grande réactivité et ne s'accumule pas dans le lit.

Enfin, des modèles de comportement de la formation des oxydes d'azote lors de l'incinération de charbon en lit fluidisé sont établis dans [Li *et al.*, 2004], pour une centrale thermique de 200 MW. Trois modèles sont estimés et comparés : un modèle linéaire, un modèle non linéaire et un modèle intermédiaire avec certaines non linéarités. La conclusion de cette étude est que la formation des oxydes d'azote est très non linéaire et qu'un modèle de comportement simple n'est pas satisfaisant.

En résumé, ces articles montrent qu'un modèle de connaissance du procédé d'incinération des boues en lit fluidisé permettrait d'améliorer fortement la connaissance du comportement du procédé. Ce modèle pourrait ensuite servir de base pour l'établissement d'une stratégie de commande.

1.4. Conclusion du chapitre 1

Ce chapitre a permis d'introduire les notions nécessaires à la réalisation du travail de recherche : l'origine des boues, leur formation et leur caractéristiques physico-chimiques, les techniques de traitement et d'élimination finale. Cette partie a mis en évidence l'intérêt de l'incinération des boues comme technique permettant de faire face à la quantité grandissante des boues.

Le fonctionnement des fours à lit fluidisé a ensuite été décrit. L'ensemble des polluants atmosphériques et leur réglementation a ensuite été présenté. Cette étude montre que le traitement post-opératoire des oxydes d'azote (NOx) est complexe et coûteux. Une stratégie de commande permettant de maîtriser les émissions de ce polluant au sein même du four serait donc pertinente.

Le dernier paragraphe s'intéresse plus particulièrement aux boues. Les compositions de différents combustibles ont été comparées, mettant en évidence les spécificités des boues : matières volatiles et cendres importantes, carbone fixe faible. De plus, on met en évidence la forte teneur en azote par rapport aux autres combustibles, amenant à la réaction de NOx.

L'étude des paramètres opératoires a mis en évidence l'importance de la boucle de régulation d'oxygène pour assurer une combustion complète. Cependant, la qualité des boues est très variable (composition, siccité, quantité) entraînant des fluctuations dans le fonctionnement du four. Cette boucle de régulation ne permet pas une maîtrise des émissions de NOx.

Plusieurs stratégies de commande ont été proposées dans la littérature, toutes basées sur des modèles de comportement. Si ces études montrent qu'une stabilisation du fonctionnement permet d'améliorer la qualité des émissions gazeuses, il apparaît qu'un modèle de connaissance, représentant les phénomènes prépondérants permettrait d'améliorer fortement la maîtrise des concentrations en oxydes d'azote dans les rejets malgré la variabilité de la composition des boues.

Chapitre 2. Etude bibliographique de la combustion des boues en lit fluidisé

Le chapitre 2 décrit les mécanismes de la combustion de boues. Les modèles les plus proches de notre étude sont présentés. Les hypothèses principales et le schéma réactionnel de référence de formation et réduction des oxydes d'azote (NOx) sont posés, afin de servir de base pour la modélisation au chapitre 3.

2.1. Etapes de la combustion d'une particule de boue

Les mécanismes de combustion qui ont lieu dans le lit fluidisé sont identiques quel que soit le combustible. Ces trois étapes principales sont présentées figure 2.1:

- Chauffage et séchage, conduisant à l'évaporation de l'eau contenue dans les boues.
- Dévolatilisation, séparant les boues en trois grandes parties : les cendres, le carbone fixe et les matières volatiles (phase gaz).
- Réactions de combustion : le carbone fixe est oxydé par une réaction de combustion, les matières volatiles libérées sont aussi le siège de réactions de combustion et de formation des polluants.

L'ensemble de ces réactions (homogènes et hétérogènes) a lieu dans le lit bouillonnant. Le lit post-combustion est le siège des réactions homogènes liées aux matières volatiles. Le lit fluidisé a une température suffisamment élevée pour que le séchage et la dévolatilisation s'effectuent en parallèle. La combustion ne s'amorce qu'une fois ces deux étapes achevées.

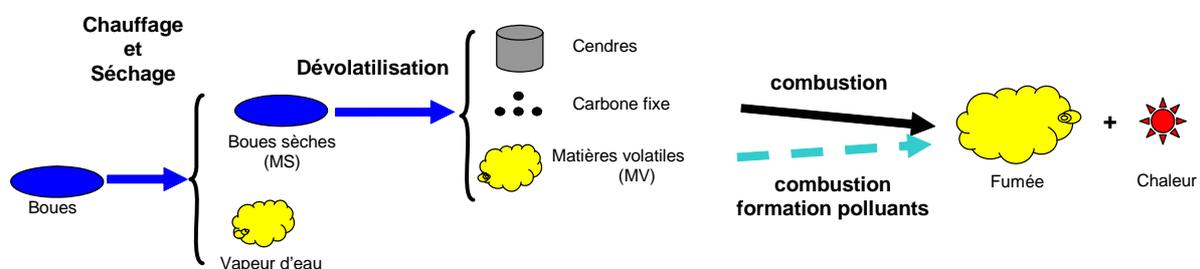


Figure 2.1. Etapes de la combustion des boues en lit fluidisé.

2.2. Etapes préalables aux réactions de combustion

2.2.1. Chauffage et séchage

Le séchage des boues est la première étape de la combustion, qui s'effectue en même temps que le chauffage des boues. Lorsque les boues sont introduites dans le four, elles sont le plus souvent à température ambiante. Leur séchage dans le lit fluidisé est très rapide [Gratias, 2002] en raison de la température élevée du lit (entre 700 et 840°C) largement supérieure à la température de vaporisation de l'eau (100°C).

En pratique on considère que ce phénomène se produit de manière complète et instantanée à l'entrée du lit bouillonnant [Khiari, 2006], et on ne tient compte que des aspects thermiques liés à l'évaporation de l'eau.

2.2.2. Dévolatilisation

Le principe de la dévolatilisation est la décomposition thermique des substances carbonées avec libération de matières volatiles. Elle consiste en une série de réactions chimiques complexes qui conduisent à la décomposition et à la rupture de liaisons au sein des molécules organiques et à la fragmentation de différents composés en gaz simples.

En se basant sur les études de J. Werther et de T. Ogada [Werther et Ogada, 1999], la dévolatilisation des boues s'amorce à 150°C en parallèle du séchage et se produit jusqu'à 250°C.

La dévolatilisation des boues donne naissance aux matières volatiles, à des solides contenant du carbone fixe et à des cendres. Les proportions en carbone fixe, matières volatiles et cendres issues de la dévolatilisation des boues de [Werther et Ogada, 1999] sont représentées sur la figure 2.2. Cette figure montre la part importante des cendres et des composés volatils, mais la teneur en carbone fixe est faible.

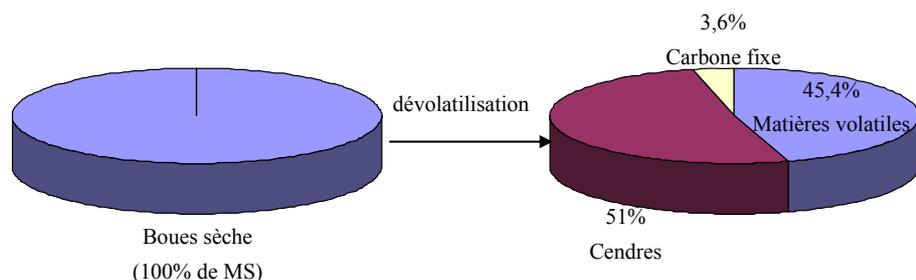


Figure 2.2. Les composés issus de la dévolatilisation des boues [Werther et Ogada, 1999].

2.2.3. Principaux composés volatils

Les matières volatiles représentent l'ensemble des composés de la phase gaz qui se forme juste après la dévolatilisation. L'analyse de la composition des gaz volatils indique que les espèces chimiques les plus importantes sont généralement le monoxyde de carbone (CO), le dioxyde de carbone (CO₂), les hydrocarbures légers (C_nH_m) et le dihydrogène (H₂). Ces gaz peuvent contenir de nombreux autres composés : azote (N), phosphore, soufre..., mais dans des proportions moindres. Les proportions relatives dépendent à la fois de la qualité des boues et des conditions opératoires, notamment la température.

La composition des matières volatiles principales (93%) après dévolatilisation [Werther et Ogada, 1999] pour une température du lit bouillonnant de 760°C est :

$f_{CO} = 43,43\%$ (% de MV) f_{CO} est la fraction massique de CO issu de la dévolatilisation.

$f_{CO_2} = 15,39\%$ (% de MV) f_{CO_2} est la fraction massique de CO₂ issu de la dévolatilisation.

$f_{H_2} = 3,2\%$ (% de MV) f_{H_2} est la fraction massique de H₂ issu de la dévolatilisation.

$f_{C_nH_m} = 31,12\%$ (% de MV) $f_{C_nH_m}$ est la fraction massique de C_nH_m issu de la dévolatilisation.

La partie azotée après la dévolatilisation n'est pas précisée. L'azote du combustible se transforme en trois composés : azote prisonnier du carbone fixe (C-N), azote libéré sous forme de composés volatils, principalement l'acide cyanhydrique (HCN) et l'ammoniac (NH₃). La proportion entre azote prisonnier et azote libéré est à peu près proportionnelle à la répartition entre le carbone fixe et les matières volatiles :

$$\frac{f_{N-CN}}{f_{N-HCN} + f_{N-NH_3}} \approx \frac{f_{char}}{f_{vol}} \quad (2.1)$$

Où :

- f_{N-CN} est la fraction d'azote de boues solides prisonnière avec le carbone fixe après la dévolatilisation.
- f_{N-HCN} et f_{N-NH_3} sont les fractions de transformation de boues en molécules HCN et NH_3 après la dévolatilisation.

Pour déterminer la répartition de HCN et NH_3 (f_{N-HCN} et f_{N-NH_3}), nous devons donc prendre une autre référence de la littérature. Les travaux sur la transformation d'azote des différents combustibles (charbon et biomasse) après la dévolatilisation aboutissent aux mêmes conclusions ([Johnsson, 1993], [Stubenberger *et al.*, 2008], [Wu *et al.*, 2007] et [Glarborg *et al.*, 2003]) : les proportions de HCN et NH_3 dépendent principalement du ratio des composés élémentaires O/C. Pour le charbon (O/C petit), HCN sera l'espèce prédominante et alors que cela sera NH_3 pour la biomasse (O/C grand). Nous pouvons donc étendre ces résultats aux boues. Le ratio O/C étant similaire à celui de la biomasse, nous prenons [Aho *et al.*, 1993] : $f_{N-HCN} / f_{N-NH_3} = 1 / 9$.

Ainsi, on trouve les proportions relatives aux composés issus de la dévolatilisation de boues de [Werther et Ogada, 1999] dans le tableau 2.1 ci-dessous. Pour plus de facilité d'utilisation, les pourcentages ont été ramenés au % massique de MS :

Carbone fixe	Cendres	Composés volatils				NOx précurseur			Autre
		CO	C_nH_m	CO_2	H_2	NH_3	HCN	C-N	
3,6	51	19,71	14,13	6,99	1,45	1,59	0,28	0,115	1,135

%massique de MS

Tableau 2.1. Les composés issus de la dévolatilisation de boues.

2.3. Réactions de combustion

2.3.1. Combustion du carbone fixe

Durant la combustion du carbone fixe, le flux d'air introduit dans le four amène l'oxygène de l'air en contact avec la particule de carbone. L'oxygène entre alors en réaction d'oxydation avec la surface de la particule de carbone pour produire du monoxyde de carbone (CO) et du

dioxyde de carbone (CO_2). Cependant, le carbone fixe est une substance poreuse, aussi l'oxygène diffuse à l'intérieur des pores et oxyde le carbone dans la particule, ce qui rend le mécanisme très complexe. Cette réaction est toujours exothermique.

En considérant uniquement la combustion à la surface de la particule (combustion primaire), on obtient la réaction globale suivante [Basu et Fraser, 1991] :



Où $\beta = \frac{[C_{CO}]}{[C_{CO_2}]}$ définit le ratio des concentrations de $[\text{CO}]$ et de $[\text{CO}_2]$ formés

La combustion dépend en fait du régime de combustion dans lequel la particule est incinérée. On distingue trois régimes [Basu et Fraser, 1991] :

1. La cinétique chimique est très lente par rapport à la diffusion de l'oxygène dans les particules. On a alors une répartition uniforme de l'oxygène, et c'est la densité de la particule plutôt que son diamètre qui diminue.
2. La cinétique chimique est très rapide par rapport à la diffusion de l'oxygène. Cela arrive sur des particules de taille importante.
3. Cas intermédiaire. Il y a alors pénétration limitée de l'oxygène, et les pores à proximité de la surface externe consomment la plus grande quantité d'oxygène. Ces conditions sont réunies pour des particules de taille moyenne.

En combustion de charbon, les mécanismes de combustion passent successivement du 2^{ème} régime, au 3^{ème} puis au 1^{er}. On a donc en général plusieurs modèles de cinétique.

2.3.2. Combustion des combustibles volatils

Les hydrocarbures légers formés lors de l'étape de dévolatilisation, réagissent avec l'oxygène présent dans une étape de combustion homogène. Ogada et Werther [Ogada et Werther, 1996] ont trouvé que les gaz issus de la dévolatilisation ont un comportement analogue à celui du propane (C_3H_8) et un pouvoir calorifique équivalent. Les gaz volatils sont brûlés dans les bulles formées dans le lit bouillonnant et finissent la combustion dans le lit post-combustion.

Les réactions de combustion [Eyglunent, 1997] sont les suivantes :



Pour la réaction d'oxydation des hydrocarbures (C_nH_m), soit la réaction est complète et produit du dioxyde de carbone (CO_2), soit elle est incomplète et produit aussi du monoxyde de carbone (CO).

2.4. Formation et réduction de NO_x et N_2O

Un point de départ important pour une meilleure compréhension des mécanismes de formation et de réduction des oxydes d'azote et du protoxyde d'azote est l'étude pour la combustion du charbon. En effet, les études ont été effectuées pour ce combustible, et les mécanismes ne changent pas fondamentalement. Dans un deuxième temps, les spécificités liées aux boues d'épurations sont étudiées. Cette partie est basée sur les résultats de [Werther et Ogada, 1999].

2.4.1. Formation et réduction de NO_x et N_2O dans la combustion de charbon en lit fluidisé

Les oxydes d'azote sont la somme du monoxyde d'azote (NO) et du dioxyde d'azote (NO_2) formés durant la combustion. Le dioxyde d'azote résulte de l'oxydation du monoxyde d'azote par l'oxygène de l'air à basse température ($<600^\circ\text{C}$). Après sa formation, le dioxyde d'azote sera rapidement converti en monoxyde d'azote. On pourra donc trouver très localement du dioxyde d'azote dans la zone de combustion, mais les quantités émises à la sortie du four seront négligeables. Le dioxyde d'azote représentant moins de 5% des oxydes d'azote, on considérera par la suite que le monoxyde d'azote et les oxydes d'azote sont interchangeables et on les notera NO_x .

Sources de formation du monoxyde d'azote

On admet aujourd'hui l'existence de trois sources de formation du monoxyde d'azote [Gratias, 2002] :

- NO thermique : formé à partir de l'azote de l'air.
- NO précoce (ou « prompt NO ») : formé à partir de l'azote de l'air réagissant avec le combustible.
- NO du combustible (« fuel NO ») : formé à partir de l'azote du combustible.

Le NO thermique est formé par l'oxydation de l'azote de l'air par l'oxygène lors de la combustion de l'air à hautes températures (1300°C). Ce mécanisme intervient dans des combustions comme la combustion du gaz naturel ou du charbon pulvérisé. Les températures n'atteignant jamais ces valeurs dans les lits fluidisés où la température est inférieure à 1000°C, ce mécanisme est négligeable.

La formation du NO précoce est plus complexe car elle se réalise en plusieurs étapes. Les radicaux hydrocarbonés (CH , CH_2 , ...) provenant de la dévolatilisation du combustible réagissent avec l'azote de l'air pour former du HCN. Cette dernière molécule pourra ensuite réagir pour donner du monoxyde d'azote avec les mêmes mécanismes que le NO du combustible.

La formation du NO du combustible est encore plus complexe, une partie de l'azote restant dans les particules, et l'autre étant libérée avec les gaz volatils. La proportion entre azote prisonnier et azote libéré est à peu près proportionnelle à la répartition entre le carbone fixe et les composés volatils. Les composés libérés avec les volatils sont les amines (principalement NH_3) et les cyanures (principalement HCN). Les composés précurseurs des NO_x et du N_2O sont donc NH_3 , HCN et C-N.

Formation des NO_x et du N_2O du combustible

Les oxydes d'azote et le protoxyde d'azote sont formés de deux manières :

- par oxydation des composés azotés des gaz volatils libérés (NH_3 et HCN) :
 - NH_3 peut se décomposer en radicaux hydroazotés (NH_2 , $\text{NH}\dots$), qui peuvent être oxydés en NO ou réagir avec NO et OH pour former du N_2 . Donc NH_3 est à la fois une source et un réducteur des oxydes d'azote.

- HCN peut se décomposer en NCO avec un radical d'oxygène qui réagit ensuite avec NO pour former du N₂O. C'est le mécanisme principal de formation de N₂O par la combustion du charbon en lit fluidisé.
- par catalyse hétérogène des espèces prisonnières du carbone particulaire :
Les principales espèces azotées générées durant la combustion de carbone fixe sont : NO, N₂O et N₂. La concentration en NO est plus grande que celle de N₂O. N₂O est très sensible à la température, et à une température supérieure à 900°C il se décompose en N₂.

Rôle du carbone fixe et des catalyseurs

Les concentrations en NH₃, HCN, NO_x et N₂O sont fonction des réactions de la phase gaz, des réactions catalytiques hétérogènes et des réactions gaz-solide.

Un acteur important est le carbone fixe. Il fournit la surface catalytique pour la réduction de monoxyde d'azote en phase gaz (réaction entre monoxyde de carbone et monoxyde d'azote catalysé par le carbone fixe). Il est estimé qu'environ la moitié du monoxyde d'azote formé est réduit par ce schéma réactionnel. De plus il est efficace pour la réduction du protoxyde d'azote, par voie catalytique ou directe.

D'autres facteurs jouent un rôle : la présence de chaux (CaO), d'oxyde de magnésium (MgO) et d'oxyde de fer (Fe₂O₃) dans le combustible peut être très efficace dans la catalyse de la réduction de monoxyde d'azote et protoxyde d'azote.

2.4.2. Application aux boues de station d'épuration

L'équipe scientifique de Werther ([Werther et Ogada, 1999]) compare les caractéristiques des boues à celles du charbon pour en déduire des spécificités sur la formation des oxydes d'azote et du protoxyde d'azote à partir des boues :

- les boues de station d'épuration ont une importante teneur en azote (6-8% voire 12% des MS en excluant les cendres). La libération étant proportionnelle aux matières volatiles, environ 90% de l'azote est libéré dans le gaz lors de la dévolatilisation.
- Après la dévolatilisation, une partie importante d'azote de boues en phase gaz se présente sous forme de composés ammoniacés (NH₃) ;

- Les boues ayant peu de carbone fixe, leur influence sur la formation et la réduction des oxydes d'azote et le protoxyde d'azote n'est pas considérée comme importante.
- Les boues ont par contre une quantité importante de cendres, qui contiennent de la chaux (CaO), et de l'oxyde de fer (Fe₂O₃). Si ceux-ci s'accumulent dans le lit, ils favorisent la réduction des oxydes d'azote.

Sur le dernier point concernant l'effet des cendres, il existe des contradictions :

- [Shimizu *et al.*, 2007] trouvent que les cendres de boues sèches favorisent la formation de monoxyde d'azote.
- [Tran *et al.*, 2007], considèrent que les cendres contiennent de nombreux composés minéraux : CaO, MgO, Fe₂O₃, Al₂O₃, SiO₂, P₂O₅, Na₂O, K₂O, ... qui sont des catalyseurs actifs de formation et réduction des oxydes d'azote et du protoxyde d'azote.

En conclusion l'influence des cendres dépend de leur composition réelle. Leur effet sur le comportement des émissions azotées doit être mesuré et discuté dans chaque cas spécifique. Actuellement, il n'existe pas de mécanismes précis, nous n'en tiendrons donc pas compte.

2.5. Le schéma réactionnel de référence [Liu et Gibbs, 2002]

Il n'existe pas à notre connaissance d'étude détaillée du schéma réactionnel de la combustion de boues en lit fluidisé. Les résultats disponibles dans la littérature portent en majorité sur la combustion du charbon [Jensen *et al.*, 1995], [Jensen et Johnsson, 1997], [Chen *et al.*, 2001], [Li *et al.*, 2004], [Tran *et al.*, 2007]. Cependant ces schémas privilégient les réactions en présence de carbone fixe qui régissent la combustion. Dans le cas de la combustion des boues, nous avons besoin d'un schéma réactionnel détaillé de la formation des polluants azotés. Les références de combustion des déchets [Marias, 1999] ou des boues [Khiari, 2006] ne sont pas non plus applicables car elles ne prennent pas suffisamment en compte les réactions chimiques. Nous avons retenu comme référence le schéma réactionnel de combustion de biomasse ([Liu et Gibbs, 2002]), ce combustible est proche des boues par la faible teneur en carbone fixe et la part importante de matières volatiles.

Ce schéma est celui qui correspond le mieux à nos besoins car il décrit en détail les réactions de formation et réduction de monoxyde d'azote et protoxyde d'azote. Comme tous les travaux traitant de la combustion, il s'appuie en partie sur des résultats connus de

combustion du charbon. Liu et Gibbs, [Liu et Gibbs, 2002], proposent un modèle de combustion de la biomasse en lit fluidisé circulant, ce modèle inclut la partie de dévolatilisation et 25 réactions chimiques, dont 20 concernent la formation des polluants azotés (NO et N₂O).

La répartition des composés issus de la dévolatilisation de la biomasse est présentée dans le tableau 2.2. Les hydrocarbures légers (C_nH_m) sont simplifiés en CH₄ et C₂H₆. Le méthane (CH₄) est le composé le plus important.

Carbone fixe	Cendres	Composés volatils					NO _x précurseur			Autre
		CO	CH ₄	C ₂ H ₆	CO ₂	H ₂	NH ₃	C-N	HCN	
17,91	0,49	58,4	10,2	1,4	9,2	2,2	0,134	0,027	0,024	0,015

%massique de MS

Tableau 2.2. Composés issus de la dévolatilisation de la biomasse [Liu et Gibbs, 2002].

Les 25 réactions sont présentées dans le tableau 2.3. A chacune d'elle est associée une expression de la cinétique de réaction (tableau 2.4). On peut classer ces réactions en six grandes catégories :

- Oxydation de NH₃ : réduction (R1) et formation (R2) de NO en phase homogène (gaz), réduction de NH₃ avec catalyseur, formation de NO avec catalyseur.
- Réduction de NO par CO et H₂ : réactions catalytiques
- Réduction de N₂O : réactions similaires, une en phase gaz, les autres catalytiques
- Réduction de NO par le carbone fixe
- Formation de NO et N₂O par HCN et C-N (azote prisonnier des particules de carbone fixe) : HCN et C-N sont d'abord oxydés en CNO qui est une espèce intermédiaire. Ensuite, CNO est oxydé très rapidement en NO et N₂O. Les proportions de NO et N₂O dépendent de la concentration en NO. Après la dévolatilisation, la concentration en NO est nulle, et seul R18 va avoir lieu, formant du NO. Au fur et à mesure que la quantité de NO va augmenter, la réaction R19 va être favorisée, formant du N₂O.
- Réactions de combustion : il existe plusieurs centaines de réactions élémentaires de combustion du CO, CH₄ et H₂ avec l'oxygène, largement étudiées dans la littérature [Pilling, 1997]. Les réactions utilisées ici sont des réactions globales ne faisant apparaître que les réactifs initiaux et les produits finaux.

Type	No.	Réaction	Homogène	Gaz-solide	Catalyseur
Oxydation de NH ₃ (formation et réduction de NO)	R1	$\text{NO} + \text{NH}_3 + 1/4\text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2 + 3/2\text{H}_2\text{O}$	♣		
	R2	$\text{NH}_3 + 5/4\text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + 3/2\text{H}_2\text{O}$	♣		
	R3	$\text{NH}_3 + 3/4\text{O}_2 \rightarrow 1/2\text{N}_2 + 3/2\text{H}_2\text{O}$			Carbone fixe
	R4	$\text{NH}_3 + 3/4\text{O}_2 \rightarrow 1/2\text{N}_2 + 3/2\text{H}_2\text{O}$			Cendres
	R5	$\text{NH}_3 + 3/4\text{O}_2 \rightarrow 1/2\text{N}_2 + 3/2\text{H}_2\text{O}$			CaO
	R6	$\text{NH}_3 + 5/4\text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + 3/2\text{H}_2\text{O}$			Carbone fixe
	R7	$\text{NH}_3 + 5/4\text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + 3/2\text{H}_2\text{O}$			Cendres
	R8	$\text{NH}_3 + 5/4\text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + 3/2\text{H}_2\text{O}$			CaO
Réduction de NO par CO et H ₂	R9	$\text{NO} + \text{CO} \rightarrow 1/2\text{N}_2 + \text{CO}_2$			Carbone fixe
	R10	$\text{NO} + \text{CO} \rightarrow 1/2\text{N}_2 + \text{CO}_2$			CaO
	R11	$\text{NO} + \text{H}_2 \rightarrow 1/2\text{N}_2 + \text{H}_2\text{O}$			CaO
Réduction de N ₂ O	R12	$\text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2 + 1/2\text{O}_2$			Carbone fixe
	R13	$\text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2 + 1/2\text{O}_2$			Cendres
	R14	$\text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2 + 1/2\text{O}_2$			CaO
	R15	$\text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2 + 1/2\text{O}_2$	♣		
Réduction de NO par C	R16	$\text{NO} + \text{C} \rightarrow 1/2\text{N}_2 + \text{CO}$		♣	
Formation de NO et N ₂ O par HCN et C-N	R17	$\text{HCN} + 1/2\text{O}_2 \rightarrow \text{CNO} + \text{H}$	♣		
	R18	$\text{CNO} + 1/2\text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{CO}$	♣		
	R19	$\text{CNO} + \text{NO} \rightarrow \text{N}_2\text{O} + \text{CO}$	♣		
	R20	$\text{C-N} + 1/2\text{O}_2 \rightarrow \text{CNO}$ $\text{CNO} + 1/2\text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{CO}$ $\text{CNO} + \text{NO} \rightarrow \text{N}_2\text{O} + \text{CO}$		♣	
Réaction de combustion	R21	$\text{C} + (2+\beta)/(2+2\beta)\text{O}_2 \rightarrow 1/(1+\beta)\text{CO}_2 + \beta/(1+\beta)\text{CO}$		♣	
	R22	$\text{CO} + 1/2\text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2$	♣		
	R23	$\text{CH}_4 + 3/2\text{O}_2 \rightarrow \text{CO} + 2\text{H}_2\text{O}$	♣		
	R24	$\text{H}_2 + 1/2\text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O}$	♣		
	R25	$\text{C}_2\text{H}_6 + 5/2\text{O}_2 \rightarrow 2\text{CO} + 3\text{H}_2\text{O}$	♣		

Tableau 2.3. Les réactions de référence (combustion de la biomasse) [Liu et Gibbs, 2002].

Le tableau 2.4 présente les expressions des vitesses des 25 réactions. La vitesse de réaction dépend des concentrations de réactifs et de la température de réaction. Toutes les concentrations de gaz [gaz] et de carbone fixe [C] sont exprimées en mol.m^{-3} . Pour les réactions faisant intervenir un solide (réaction gaz-solide ou avec catalyseur), l'expression fait intervenir la porosité ε du solide. Ainsi, ε_C est la porosité (fraction de vide) du carbone fixe dans le lit, $\varepsilon_C = [C] \cdot M_C / \rho_C$. Dans la réaction de combustion du carbone fixe (R21), sa vitesse de réaction respecte le modèle à cœur rétrécissant. Plus de détails sont donnés dans [Howard, 1989] et [Basu et Frasier, 1991].

La réaction de combustion de monoxyde de carbone (R22) présente une différence : sa vitesse de réaction dépend aussi de la concentration de vapeur d'eau. En fait, la réaction du monoxyde de carbone inclut beaucoup de réactions élémentaires. L'espèce intermédiaire OH accélère la réaction et elle peut être produite par la dégradation de la vapeur d'eau. Donc la vapeur d'eau est un réactif pour la vitesse de réaction R22.

Le paramètre cinétique est exprimé par la loi d'Arrhénus (ou parfois la loi d'Arrhénus-Kooij) :

$$\text{Loi d'Arrhénus : } k = k_0 \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (2.6)$$

$$(\text{Loi d'Arrhénus-Kooij : } k = k_0 T^b \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right))$$

Où :

- k est la constante de vitesse de réaction, sa dimension dépend de l'ordre de réaction, $\text{mol}^{(1-\tau)}. \text{m}^{-3(1-\tau)}. \text{s}^{-1}$, τ est l'ordre global de réaction.
- k_0 est le « facteur préexponentiel », il a la même dimension que k.
- T est la température de réaction. (b est le coefficient de Kooij, il peut être positif ou négatif et est déterminé expérimentalement.
- E_a est « l'énergie d'activation », J.mol^{-1} .
- R est la constante du gaz parfait : $8,314 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$.

La loi d'Arrhenius met en évidence la grande sensibilité de la constante de vitesse à la température (variation de forme exponentielle). Cette sensibilité dépend de la valeur d'énergie d'activation E_a : plus elle est élevée, plus la constante de vitesse sera sensible aux variations de température.

No.	Vitesse de réaction r_j (mol.m ⁻³ .s ⁻¹)	Paramètre cinétique
R1	$k_1[\text{NH}_3]^{0.5}[\text{NO}]^{0.5}[\text{O}_2]^{0.5}$	$k_1=1,07*10^{12} \exp(-29400/T)$
R2	$k_2[\text{NH}_3][\text{O}_2]$	$k_2=2,73*10^{14} \exp(-38160/T)$
R3	$k_3(\epsilon_C)[\text{NH}_3]$	$k_3=9,83*10^6 \exp(-10000/T)$
R4	$(\epsilon_{\text{cendre}})k_0[\text{NH}_3][\text{O}_2]/(k'+[\text{O}_2])$	$k_0=4,96*10^6 \exp(-10000/T)$; $k'=0,054$
R5	$k_5(\epsilon_{\text{CaO}})[\text{NH}_3]/(1+K_{\text{ads,H}_2\text{O}}[\text{H}_2\text{O}])$	$k_5=7,02*10^6 \exp(-10000/T)$; $K_{\text{ads,H}_2\text{O}}=11,8$
R6	$k_6(\epsilon_C)[\text{NH}_3]$	$k_6=1,09*10^7 \exp(-10000/T)$
R7	$(\epsilon_{\text{cendre}})k_0[\text{NH}_3][\text{O}_2]/(k'+[\text{O}_2])$	$k_0=3,1*10^6 \exp(-10000/T)$; $k'=0,054$
R8	$k_8(\epsilon_{\text{CaO}})[\text{NH}_3]/(1+K_{\text{ads,H}_2\text{O}}C_{\text{H}_2\text{O}})$	$k_5=2,82*10^7 \exp(-10000/T)$; $K_{\text{ads,H}_2\text{O}}=11,8$
R9	$k_9(\epsilon_C \rho_C)[\text{NO}]^{0.43}[\text{CO}]^{0.38}$	$k_9=1,37*10^6 \exp(-20900/T)$
R10	$k_{10}(\epsilon_{\text{CaO}})[\text{NO}][\text{CO}]$	$k_{10}=2,13*10^4 T \exp(-8920/T)$
R11	$k_{11}(\epsilon_{\text{CaO}})[\text{NO}][\text{H}_2]$	$k_{11}=2*10^7 \exp(-8623/T)$
R12	$k_{12}(\epsilon_C \rho_C)[\text{N}_2\text{O}]$	$k_{12}=43,5/d_C^{0.74} \exp(-10000/T)$
R13	$k_{13}(\epsilon_{\text{cendre}} \rho_{\text{cendre}})[\text{N}_2\text{O}]$	$k_{13}=1,7*10^6 \exp(-22150/T)$
R14	$k_{13}(\epsilon_{\text{CaO}} \rho_{\text{aO}})[\text{N}_2\text{O}]$	$k_{15}=1,3*10^6 \exp(-13330/T)$
R15	$k_{15}[\text{N}_2\text{O}]$	$k_{15}=5,7*10^9 \exp(-27000/T)$
R16	$k_{16}(\epsilon_C \rho_C)[\text{NO}]$	$k_{16}=7,44*10^4 \exp(-13900/T)$
R17	$k_{17}[\text{HCN}][\text{O}_2]$	$k_{17}=2,14*10^5 \exp(-10000/T)$
R18	$r_{17}^*p / (p+[\text{NO}])$	$p=1,02*10^9 \exp(-25460/T)$
R19	$r_{17}^*[\text{NO}] / (p+[\text{NO}])$	$p=1,02*10^9 \exp(-25460/T)$
R20	$d[\text{NO}]/dt=-[\text{N}/\text{C}]^*r_{21}^*(1-k[\text{NO}])/(1+k[\text{NO}])$ $d[\text{N}_2\text{O}]/dt=-[\text{N}/\text{C}]^*r_{21}^*k[\text{NO}]/(1+k[\text{NO}])$	$k=9*10^2 \exp(-3551/T)$
R21	$6(\epsilon_C/d_C)K_C[\text{O}_2]$	$K_C=1/(1/k_C+1/(\Phi k_g))$ $\Phi=(2+2\beta)/(2+\beta)$; $\beta=2511,9 \exp(-6240/T_C)$ $k_C=3,7 T_C \exp(-10824/T_C)$; $k_g=(Sh * D_g)/d_C$
R22	$k_{22}[\text{CO}][\text{O}_2]^{0.5}[\text{H}_2\text{O}]^{0.5}$	$k_{22}=3,25*10^7 \exp(-15098/T)$
R23	$k_{23}[\text{CH}_4]^{0.7}[\text{O}_2]^{0.8}$	$k_{23}=1,585*10^{10} \exp(-24157/T)$
R24	$k_{24}[\text{H}_2]^{1.5}[\text{O}_2]$	$k_{24}=3,262*10^9 T^{-1.5} \exp(-3420/T)$
R25	$k_{25}[\text{C}_2\text{H}_6][\text{O}_2]$	$k_{25}=1,068*10^8 T^{0.5} \exp(-20131/T)$

Tableau 2.4. Les vitesses de 25 réactions et leurs paramètres cinétiques ([Liu et Gibbs, 2002]).

2.6. Etude bibliographique de la modélisation de la combustion en réacteurs à lit fluidisé

Les modèles des réacteurs à lit fluidisé basés sur la connaissance des phénomènes ont été d'abord établis dans un objectif de dimensionnement [Shakourzadeh, 1992]. Puis des modèles ayant pour objectif la simulation d'une unité d'incinération dédiée à la formation des personnels ont été proposés pour l'incinération de déchets [Marias, 1999], [Mukadi, 1998], ou plus récemment pour l'incinération de boues [Khiari, 2006]. Ces outils de simulation doivent prédire le comportement des incinérateurs, à partir d'une description aussi complète que possible des différents processus physico-chimiques décrivant le procédé. Seuls les points essentiels à la suite du travail seront décrits, pour plus de détails, se référer aux références ci-dessus.

2.6.1. Hydrodynamique du réacteur

Les fours à lit fluidisé dense peuvent être décrits comme un assemblage de plusieurs zones [Shakourzadeh, 1992] :

- Une zone de jet, qui se trouve au-dessus de la grille, et qui a un comportement hydrodynamique complexe.
- Une partie fluidisée bouillonnante, qui caractérise le lit lui-même.
- Une zone de désengagement au-dessus de la surface du lit ; les particules sont projetées par éclatement des bulles et finissent leur combustion avec les gaz.
- Une zone de post-combustion.

Au sein du four se trouvent deux phases : les composés en phase solide et les composés en phase gazeuse. Si le four a un fonctionnement idéal, la phase gazeuse se comporte comme un réacteur piston, la phase contenant les solides étant dans la zone de fluidisation se comporte donc idéalement comme un fluide et donc le comportement hydrodynamique peut être considéré comme parfaitement agité (R.P.A.).

Le modèle proposé par [Marias, 1999], puis repris par [Khiari, 2006] (figure 2.3) propose :

- La caractérisation de la zone jet est classiquement négligée du fait de sa faible taille et de sa complexité,

- Dans les zones de désengagement et de post-combustion, les phases gaz sont représentées comme des réacteurs pistons.

La zone correspondant au lit fluidisé est celle qui pose le plus de problèmes de modélisation d'un point de vue hydrodynamique. Les modèles d'écoulement gaz-solide proposés dans la littérature considèrent que les particules forment une sorte de couche mobile qui se comporte globalement comme un fluide. Les modèles les plus utilisés présentent deux phases : une phase bulle, qui ne contient que des gaz (écoulement piston), et une phase émulsion (parfaitement agitée ou piston). Les transferts entre ces phases peuvent être directs ou à travers un film plus ou moins complexe séparant les deux régions.

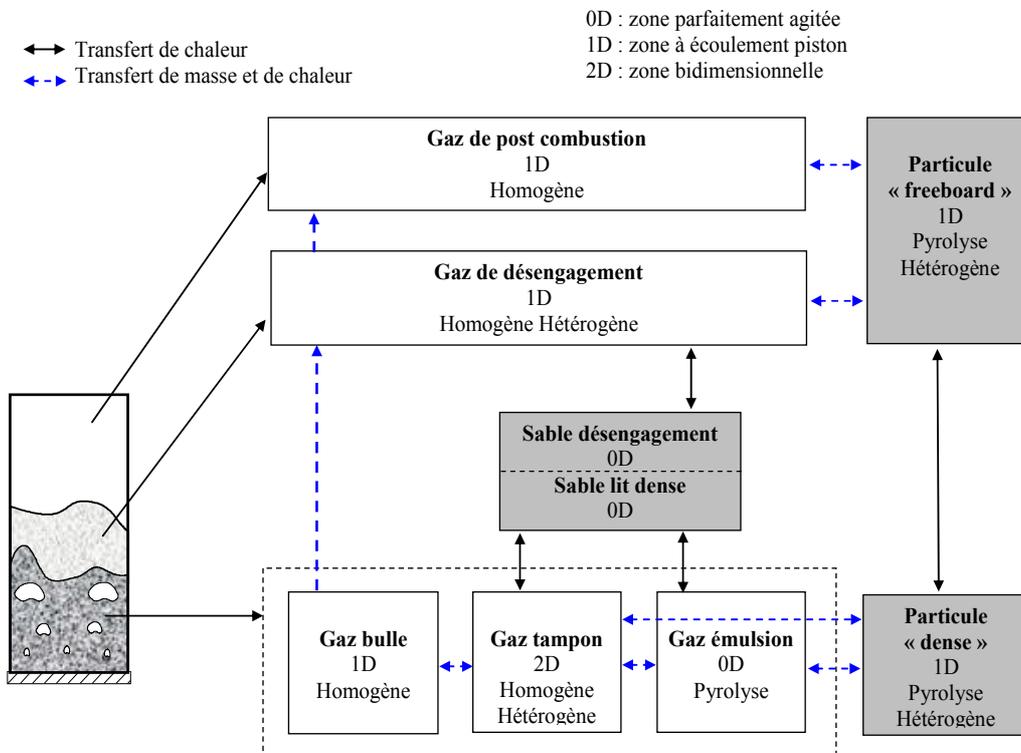


Figure 2.3. Représentation schématique du modèle de [Khiari, 2006].

Ces zones conduisent à écrire pour chacune d'elle des équations de transport, de conservation massique et énergétique incluant des termes de transport convectif et parfois diffusifs. Des conditions aux limites doivent être définies pour chaque équation. Ces équations font aussi intervenir certains mécanismes réactionnels (combustion du carbone fixe).

Ce type de modèle conduit à une grande complexité d'écriture et surtout à une grande lourdeur de mise en œuvre ainsi que des temps de calcul importants pour la simulation.

D'autres modèles hydrodynamiques peuvent être suivis : les modèles à dispersion axiale, (milieu continu homogène), modèles biphasiques (bulle et émulsion, modèle Davidson) [Cui et Stubington, 2001] [Gogebakan et Selçuk, 2004] [Ikonen et Kortela, 1994], [Bittanti *et al.*, 2000], les modèles à trois phases (existence d'un nuage, modèle Werther, modèle Kunii) [Shakourzadeh, 1992] [Reddy et Mohapatra, 1994], ou encore décrivant les quantités de mouvement (référentiels eulériens) ou enfin les modèles Lagrangiens décrit par les équations de Navier-Stokes [Zhou *et al.*, 2004]. Ces modèles sont proposés pour l'optimisation du four et la formation des opérateurs. Ils permettent de décrire la répartition des composés et des températures dans le four, mais ne sont pas pertinents pour prédire la composition des effluents gazeux ni le comportement thermique dynamique du four.

2.6.2. Modélisation de la combustion d'une particule

Basé sur les travaux de [Khiari, 2006], ce modèle ne prend en compte que la particule solide. Les réactions des produits gazeux ne sont pas intégrées au modèle.

Il est supposé que la particule de boues entrant dans le réacteur est instantanément transformée en un déchet équivalent composé d'eau, de gaz volatils, de carbone solide et de cendres. Aucune cinétique de séchage ou de pyrolyse n'est prise en compte. Seul le séchage a une énergie relative au départ de l'eau, la dévolatilisation est considérée comme athermique.

Les bilans de matière décrivent l'évolution de la masse des différents composants (eau, matière organique, carbone fixe). Ils permettent de suivre l'évolution de la taille et de la masse volumique d'une particule de carbone fixe dépendant des concurrences entre les cinétiques de réaction et les taux de diffusion de l'oxygène à l'intérieur de celle-ci.

Le bilan d'énergie permettant de modéliser la température d'une particule de carbone fixe. Celle-ci est une variable importante car les cinétiques des phénomènes rencontrés pendant l'incinération dépendent fortement de cette température. Cette température tient compte du transfert thermique externe à la particule (chaleur de convection entre la particule et l'air ; échange radiatif entre la particule et les parois du réacteur), ainsi que des énergies provenant des réactions chimiques et de l'énergie relative au séchage.

Ce modèle permet d'étudier l'impact de certaines conditions : température de l'air, coefficients de transfert, taille de la particule et teneur en eau en fonction de l'emplacement dans le four.

2.6.3. Modélisation d'incinérateur en lit fluidisé

Le modèle précédent est intégré dans le modèle hydrodynamique à cinq zones du four. Pour la phase gazeuse, plusieurs réactions chimiques sont ajoutées, notamment les réactions du NO thermique et celles liées à HCN. Or nous avons vu au paragraphe précédent que, d'une part, le NO thermique ne pouvait pas se former dans la gamme de température des fours à lit fluidisés, et que d'autre part le composé prépondérant était l'ammoniac (NH_3). Aussi ces réactions sont largement insuffisantes pour décrire la formation et la réduction des oxydes d'azote (NO_x) et du protoxyde d'azote (N_2O). Le fait d'avoir ajouté certaines réactions avec leurs cinétiques chimiques montre cependant que l'on ne peut modéliser ces phénomènes de pollution sans prendre en compte le schéma réactionnel et les cinétiques en phase gaz.

2.7. Démarche pour notre étude

Les connaissances sur les phénomènes de combustion des boues se basent sur le travail de [Werther et Ogada, 1999]. Les phénomènes connus sont en fait ceux de la combustion du charbon, à partir desquels sont déduits ceux des boues. La première et principale conclusion est que la combustion est dominée par le comportement des gaz volatils, le carbone fixe jouant un rôle mineur ; le manque de connaissance sur le rôle et la composition des cendres amène à ne pas en tenir compte. Les réactions de formation et de réduction des oxydes d'azote et du protoxyde d'azote sont nombreuses et complexes. Enfin, le modèle proposé par [Khiari, 2006] montre l'importance des températures qui déterminent les cinétiques de réaction, il montre aussi qu'un modèle hydrodynamique complexe n'est pas adapté à notre étude.

Ainsi le principal travail de modélisation à effectuer est avant tout un travail de simplification par sélection des phénomènes prépondérants. L'élément principal induisant les hypothèses est le fait que les phénomènes significatifs ont lieu en phase gaz. Aussi, nous pouvons en déduire :

- Les phénomènes prépondérants en phase gaz sont régis par des réactions chimiques.

- L'hydrodynamique complexe en plusieurs zones n'est plus nécessaire. En effet elle a pour objectif essentiel de pouvoir modéliser la phase solide du combustible (taille, répartition...). Aussi une simplification importante ne nuira pas à la pertinence du modèle.
- Les étapes de séchage et de dévolatilisation sont supposées instantanées et totales.

La démarche suivie dans ce travail est décrite sur la figure 2.4. Le chapitre 2, portant sur l'analyse du procédé est maintenant achevé. Le chapitre 3 pose les hypothèses fondamentales et établit le modèle d'incinération des boues en lit fluidisé. Les bilans matières et thermiques sont réalisés, le schéma réactionnel est simplifié. Le chapitre 4 permet de valider le comportement du modèle avec des données industrielles et le chapitre 5 propose une stratégie de commande. La démarche suivie est similaire à celles proposées par [Stephanopoulos, 1984] et [Corriou, 2001].

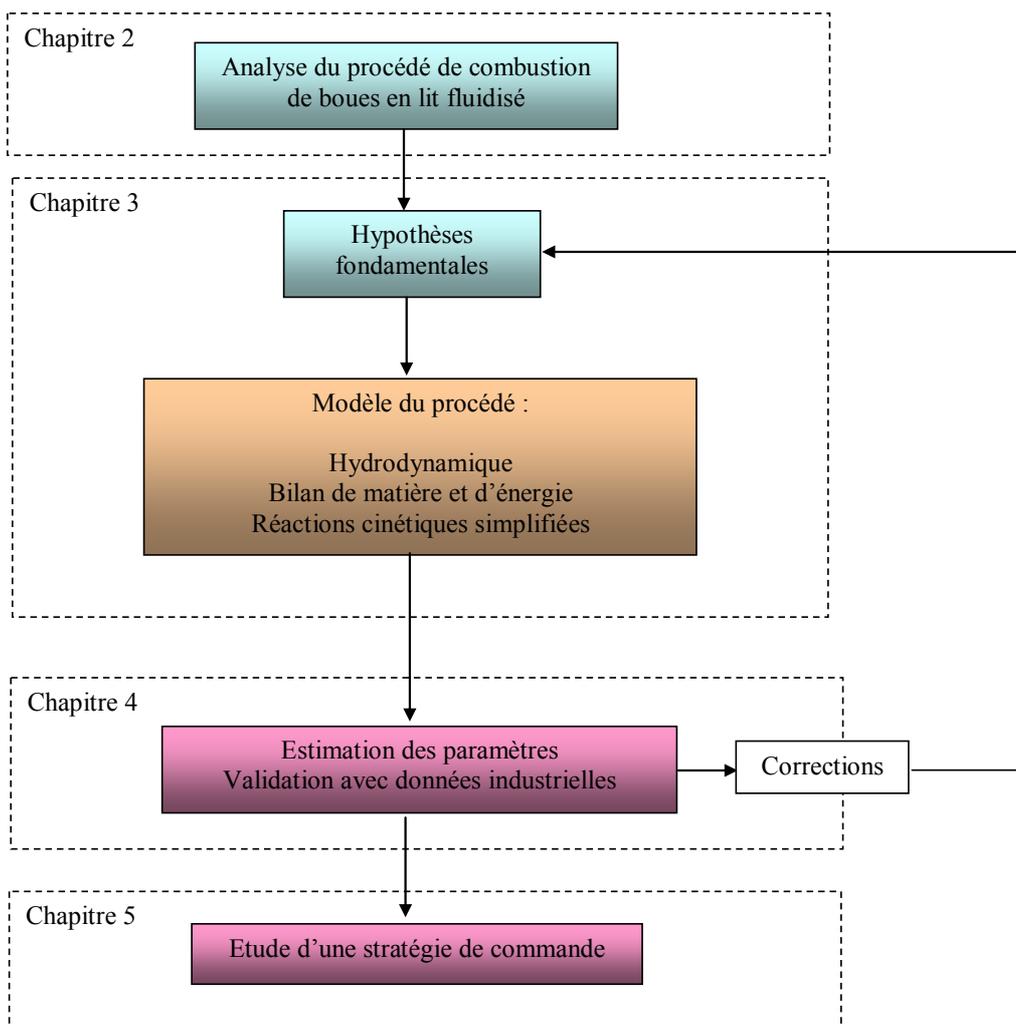


Figure 2.4. Méthodologie utilisée.

2.8. Conclusion du chapitre 2

Ce chapitre a permis dans une première partie d'exposer l'état des connaissances sur la combustion des boues. Une première remarque est que le nombre d'études sur ce sujet est assez restreint, et que les travaux sur lesquels sont basées les connaissances actuelles sont de l'équipe de Werther [Werther et Ogada, 1999], qui a effectué un travail très approfondi. Cependant une deuxième remarque qui vient immédiatement après est que toutes les références se basent sur les connaissances de la combustion du charbon. Certes, les études sur ce sujet sont nombreuses et détaillées, mais en contrepartie prennent en compte un grand nombre de considérations qui ne sont pas valables pour les boues. Et inversement, la littérature manque de connaissances sur les spécificités liées aux boues.

Ce chapitre a mis en relief les résultats suivants :

- Le paragraphe 2.1 décrit les étapes principales de l'incinération d'une particule de boues.
- Le paragraphe 2.2 étudie les étapes de séchage et de dévolatilisation, qui sont considérées comme étant instantanées et totales. Les boues en matières sèches se décomposent en trois parties : principalement en composés volatils, une partie importante en cendres et une faible proportion de carbone fixe. Il est conclu que cette combustion est dominée par le comportement des gaz volatils.
- Le paragraphe 2.3 précise les réactions de combustion du carbone fixe et des combustibles volatils. Ce sont les dernières réactions qui sont la source essentielle de chaleur.
- Le paragraphe 2.4 décrit le principe de formation et de réduction des oxydes d'azote et du protoxyde d'azote. Les réactions, très nombreuses et complexes, sont basées sur l'étude du charbon. Les conclusions principales sont que ces composés se forment à partir de l'azote contenu dans les boues. Les composés intermédiaires principaux sont les amines (NH_3) et les cyanures (HCN). Pour les boues, la faible teneur en carbone fixe le rend peu influent sur la formation et la réduction de ces polluants, alors qu'il est au contraire un composé très important dans la combustion du charbon. Enfin les mécanismes liés aux cendres ne sont pas bien connus.
- Le paragraphe 2.5 présente le schéma réactionnel de référence : l'étude de [Liu et Gibbs, 2002] propose un schéma détaillé des réactions et de l'expression de leur

cinétique. Il est cependant établi pour la combustion de la biomasse. Il faudra donc l'adapter à notre combustible.

- Le paragraphe 2.6 présente les modèles les plus proches de notre étude. Ceux-ci ne sont pas adaptés aux objectifs liés.
- Enfin, le paragraphe 2.7 présente la démarche de notre étude. La modélisation est établie dans le chapitre 3 à partir des éléments bibliographiques présentés dans ces deux premiers chapitres.

Chapitre 3. Modèle d'incinération des boues en lit fluidisé

Au chapitre 2, il a été présenté le principe de la combustion des boues. Les références bibliographiques montrent des modèles très complexes. Cependant l'hypothèse de l'absence de particules de boues dans le réacteur permet de simplifier considérablement les approches hydrodynamiques et réactionnelles.

Dans ce chapitre, un modèle constitué d'un système d'équations différentielles non linéaires est écrit à partir de bilans massiques et thermiques, incluant les cinétiques de réaction.

3.1. Principe et hypothèses de base

3.1.1. Principe

Le schéma de principe du four étudié est représenté sur la figure 3.1. Le four est séparé en deux zones principales : le lit bouillonnant et le lit post-combustion.

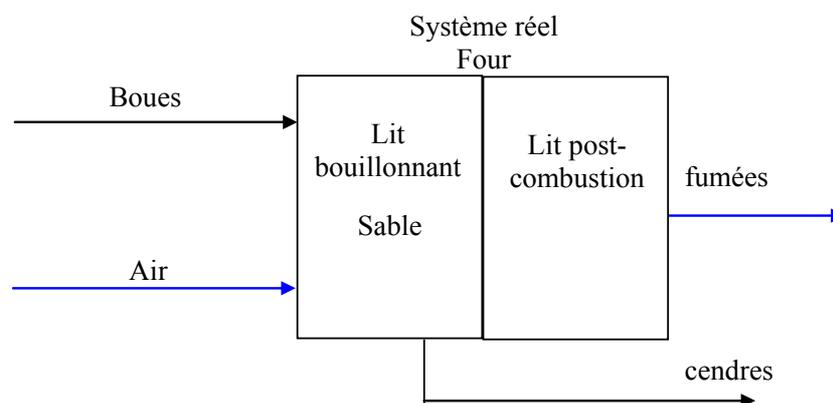


Figure 3.1. Schéma de principe du four.

Le lit bouillonnant est la partie fluidisée du lit. La dévolatilisation des boues a lieu à l'entrée du four. Nous avons montré au chapitre 2 que l'on pouvait négliger la quantité de particules de carbone fixe par rapport aux composés gazeux. Les boues non dévolatilisées et le carbone fixe issu de la dévolatilisation sont considérés comme négligeables. Le lit bouillonnant contient du sable en suspension, une phase gaz, les cendres issues de la

dévolatilisation. Le lit bouillonnant peut être considéré comme une phase gazeuse homogène et une phase particulaire hétérogène (cendres, sable).

La plus grande partie des cendres est évacuée par le bas du four, mais une faible partie est entraînée avec les gaz vers la sortie haute du four. Le lit post-combustion contient principalement du gaz. Il est considéré comme une phase gazeuse homogène, et les cendres dans cette partie sont négligées.

3.1.2. Hypothèses principales

- Les réacteurs sont des réacteurs parfaitement agités.
- Séchage et dévolatilisation instantanés.
- Dans le lit bouillonnant, la température des particules (sable, cendres) et des gaz sont identiques et uniformes.
- Dans le lit post-combustion, les gaz sont à une température uniforme.
- Les gaz sont supposés parfaits.
- La pression dans le four est la pression atmosphérique, soit 101300 Pa.

3.1.3. Choix des variables d'état

Les variables d'état sont soit les concentrations des composés chimiques présents, soit les températures. Les espèces chimiques sont :

- Les espèces carbonées : C (carbone fixe), CO, CO₂, C_nH_m.
On ne tient pas compte du carbone fixe qui est en quantité négligeable dans les boues. Les compositions des hydrocarbures C_nH_m sont inconnues. Dans la combustion de biomasse, ils sont constitués par CH₄ et C₂H₆, et ce dernier est en quantité faible par rapport à CH₄. Dans le modèle de combustion des boues, C_nH_m est modélisé en CH₄. On élimine aussi du dioxyde de carbone (CO₂), qui est un produit final stable et qui, n'intervenant pas dans la formation des polluants azotés, est considéré comme ne faisant pas partie de notre étude.
- Les espèces azotées : HCN, NH₃, NO_x, N₂O.
HCN et NH₃ sont les précurseurs des oxydes d'azote, NO_x est présenté par NO qui est le polluant azoté pris en compte dans la norme de rejet de la directive 2000/76/CE (Chapitre 1). On est donc amené à ne pas tenir compte du protoxyde

d'azote (N_2O) pour l'instant, mais celui-ci pourra être inclus facilement si nécessaire.

- Les autres composés : O_2 , H_2 , H_2O .

Le dioxygène est un composé très important pour les réactions, et sa concentration est donc une variable d'état. Par contre, le dihydrogène (H_2) est un gaz très volatil, et on considère qu'il est totalement et instantanément transformé en vapeur d'eau (H_2O). Sa teneur n'intervient donc pas variable d'état. Mais cette réaction, très fortement exothermique, sera incluse dans le bilan thermique. H_2O (sous forme de vapeur d'eau) provient principalement de l'étape de séchage. C'est un réactif dans la réaction de combustion de CO , sa concentration est donc une variable d'état.

Les variables d'état correspondant aux espèces chimiques retenues sont les concentrations de :

- monoxyde de carbone (CO), méthane (CH_4) ;
- oxygène (O_2), vapeur d'eau (H_2O) ;
- cyanure d'hydrogène (HCN), ammoniac (NH_3), monoxyde d'azote (NO) ;

La liste des variables d'état est donnée ci-dessous (C représente la concentration, exposant B représente le lit bouillonnant, exposant P représente le lit post-combustion, indice représente l'espèce chimique).

Lit bouillonnant (exposant B) : C_{CO}^B $C_{CH_4}^B$ $C_{O_2}^B$ $C_{H_2O}^B$ C_{HCN}^B $C_{NH_3}^B$ C_{NO}^B T^B

Lit post-combustion (exposant P) : C_{CO}^P $C_{CH_4}^P$ $C_{O_2}^P$ $C_{H_2O}^P$ C_{HCN}^P $C_{NH_3}^P$ C_{NO}^P T^P

3.2. Bilans globaux sur les débits

3.2.1. Débits des gaz sortant du four

L'une des difficultés de modélisation réside dans le fait que seuls les débits entrants sont mesurés. Il faut donc faire un bilan global pour estimer les débits sortants, en supposant qu'il n'y a pas d'accumulation de matière dans le four. La figure 3.2 représente les entrées et les sorties du four. Il y a deux entrées : air et boues ; et deux sorties : gaz et cendres.

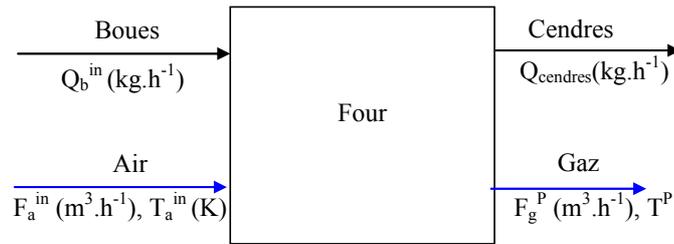


Figure 3.2. Représentation schématique des flux des entrées et sorties du four.

Le bilan massique global s'écrit :

$$Q_b^{in} + F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})} = Q_{cendres} + F_g^P \rho_{g(T^P)} \quad (3.1)$$

Où :

- Q_b^{in} est le débit massique des boues entrant dans le four, kg.h^{-1} .
- F_a^{in} est le débit volumique d'air injecté dans le four à la température T_a^{in} , $\text{m}^3\text{.h}^{-1}$.
- $Q_{cendres}$ est le débit massique des cendres sortant du four, kg.h^{-1} .
- F_g^P est le débit volumique de gaz sortant du four à la température du lit post-combustion T^P (K), $\text{m}^3\text{.h}^{-1}$.
- ρ_a et ρ_g sont les masses volumiques de l'air et du gaz, leurs valeurs dépendent de la température, kg.m^{-3} .

On a alors le débit massique $F_g^P \rho_{g(T^P)}$ de gaz sortant du four :

$$F_g^P \rho_{g(T^P)} = Q_b^{in} + F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})} - Q_{cendres} \quad (3.2)$$

Les masses volumiques du gaz et d'air sont obtenues à partir des propriétés des gaz parfaits. Le détail des calculs est dans l'Annexe A. On a :

$$\rho_{a(T_a^{in})} = \frac{P_0 M_{air}}{RT_a^{in}} \quad (3.3)$$

$$\rho_{g(T)} = \frac{P_0 M_{mel}}{RT} \quad (3.4)$$

Où :

- P_0 désigne la pression atmosphérique, $P_0=101300 \text{ Pa}$.
- R : la constante universelle des gaz parfaits, $R=8,314 \text{ J.mol}^{-1}\text{.K}^{-1}$.
- M_{air} est la masse molaire de l'air atmosphérique, $M_{air}=0,029 \text{ kg.mol}^{-1}$.
- M_{mel} est la masse molaire du mélange gazeux, $M_{mel}=0,025 \text{ kg.mol}^{-1}$.

Le débit massique du gaz est constant dans le four et sera le même dans les deux lits : $F_g^P \rho_{g(T^P)} = F_g^B \rho_{g(T^B)}$. Par contre le débit volumique qui dépend de la température sera différent selon la zone considérée. On a alors les débits des gaz sortant du lit bouillonnant et du lit post-combustion :

$$F_g^B = \frac{Q_b^{in} + F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})} - Q_{cendres}}{\rho_{g(T^B)}} \quad (\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}) \quad (3.5)$$

$$F_g^P = \frac{Q_b^{in} + F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})} - Q_{cendres}}{\rho_{g(T^P)}} \quad (\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}) \quad (3.6)$$

3.2.2. Expressions en fonction des caractéristiques des boues

Les caractéristiques des boues sont : l'humidité (f_{H_2O}), la fraction volatile (f_{vol}) et la fraction de cendres ($f_{cendres}$).

Le débit de la matière sèche des boues :

$$Q_{b,MS}^{in} = Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) \quad (\text{kg} \cdot \text{h}^{-1}) \quad (3.7)$$

Etant donnée l'hypothèse de non accumulation, nous supposons que toutes les cendres formées par la dévolatilisation sortent immédiatement. Les cendres sortant du four sont issues de la dévolatilisation :

$$Q_{cendres} = Q_{b,MS}^{in} f_{cendres} \quad (\text{kg} \cdot \text{h}^{-1}) \quad (3.8)$$

La fraction de carbone fixe étant négligée, on a :

$$f_{cendres} = 1 - f_{vol} \quad (\% \text{ de MS}) \quad (3.9)$$

L'équation (3.8) devient :

$$Q_{cendres} = Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) (1 - f_{vol}) \quad (\text{kg} \cdot \text{h}^{-1}) \quad (3.10)$$

Avec l'équation 3.10, les débits de gaz sortant du lit bouillonnant et du lit post-combustion (les équations 3.5 et 3.6) s'écrivent :

$$F_g^B = \frac{Q_b^{in} (1 - (1 - f_{H_2O}) (1 - f_{vol})) + F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})}}{\rho_{g(T^B)}} \quad (\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}) \quad (3.11)$$

$$F_g^P = \frac{Q_b^{in} (1 - (1 - f_{H_2O}) (1 - f_{vol})) + F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})}}{\rho_{g(T^P)}} \quad (\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}) \quad (3.12)$$

Le débit massique d'air $F_a^{in} \rho_a(T_a^{in})$ dépend de la température de l'air entrant du four. Le débit d'oxygène est déduit de la composition de l'air : 23,2% massique d'O₂, 76,8% massique d'N₂. On a le débit molaire d'oxygène entrant :

$$F_{O_2}^{in} = 0,232 F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})} / M_{O_2} \quad (\text{mol} \cdot \text{h}^{-1}) \quad (3.13)$$

Où : M_{O₂} est la masse molaire de l'oxygène, M_{O₂} = 0,032 kg.mol⁻¹.

3.2.3. Equations algébriques des débits des gaz après séchage et dévolatilisation des boues

A partir des caractéristiques des boues, et de la répartition des composés volatils, on peut établir les débits molaires de chaque composé gazeux :

- Débit de vapeur d'eau :

$$F_{H_2O}^{in} = Q_b^{in} f_{H_2O} / M_{H_2O} \quad (\text{mol} \cdot \text{h}^{-1}) \quad (3.14)$$

Où : M_{H₂O} est la masse molaire de H₂O, kg.mol⁻¹. f_{H₂O} est la fraction massique en eau des boues brutes (%MB).

- Débit des composés volatils :

$$\begin{bmatrix} F_{CO}^{in} \\ F_{CH_4}^{in} \\ F_{H_2}^{in} \end{bmatrix} = Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} \begin{bmatrix} f_{CO} / M_{CO} \\ f_{CH_4} / M_{CH_4} \\ f_{H_2} / M_{H_2} \end{bmatrix} \quad (\text{mol} \cdot \text{h}^{-1}) \quad (3.15)$$

Où :

- f_{vol} est la fraction massique des matières volatiles des boues (%MS).
- f_{CO}, f_{CH₄}, f_{H₂} sont les fractions massiques de CO, CH₄ et H₂ issus de la dévolatilisation (%MV).
- M_{CO}, M_{CH₄}, M_{H₂} sont les masses molaires de CO, CH₄ et H₂, kg.mol⁻¹.

- Débit des composés azotés :

De part leurs faibles valeurs, ils ne sont en général pas classés dans les composés volatils. La répartition des composés azotés après dévolatilisation dépend de la teneur en azote des boues à traiter (voir paragraphe 2.2.3) :

$$\begin{bmatrix} F_{HCN}^{in} \\ F_{NH_3}^{in} \end{bmatrix} = Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} \frac{f_N}{M_N} \times \begin{bmatrix} f_{N-HCN} \\ f_{N-NH_3} \end{bmatrix} \quad (\text{mol.h}^{-1}) \quad (3.16)$$

Où :

- M_N est la masse molaire d'azote, kg.mol^{-1} .
- f_N est la fraction massique d'azote (% de MS sauf cendres).
- f_{N-HCN} , f_{N-NH_3} sont les fractions de transformation de l'azote de boues f_N en molécules de HCN et NH_3 après la dévolatilisation (% de f_N).

Les caractéristiques des boues nécessaires pour établir les débits de gaz sont donc : f_{H_2O} , f_{vol} et f_N .

3.3. Equations de bilan matière et de bilan thermique

3.3.1. Schéma du modèle

La figure 3.3 représente le schéma du modèle, les entrées et les sorties du lit bouillonnant et du lit post-combustion. On peut remarquer que les flux entrants des matières volatiles se déduisent des étapes de séchage et de dévolatilisation. Les cendres ne sont pas représentées.

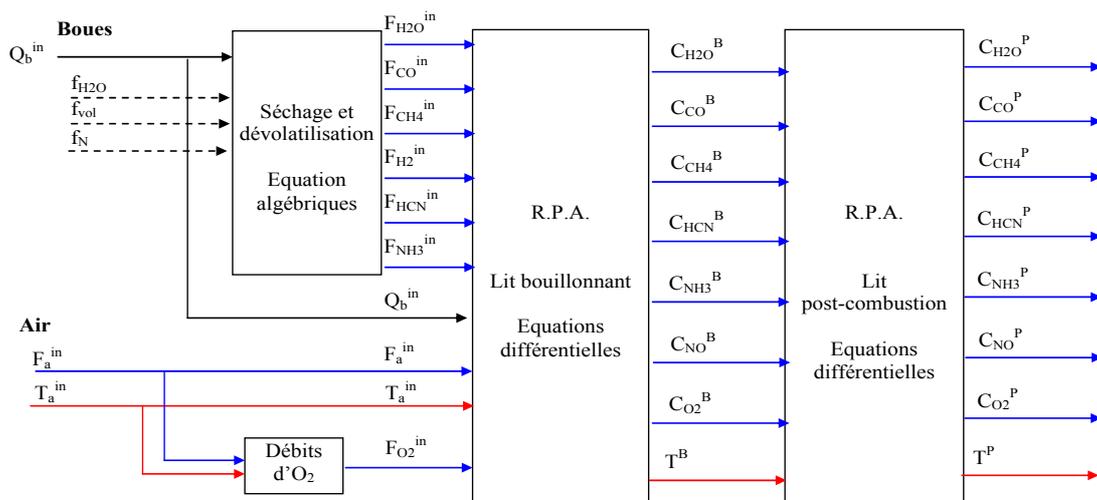


Figure 3.3. Schéma du modèle.

On peut maintenant écrire les bilans de matière et les bilans thermiques.

3.3.2. Bilan matière dans le lit bouillonnant

Il y a deux quantités essentielles pour un procédé chimique : masse et énergie [Stephanopoulos, 1984]. Les équations d'état lient les variables indépendantes par l'application du principe de conservation :

$$[\text{Accumulation de S}] = [\text{Entrée de S}] - [\text{Sortie de S}] + / - [\text{Génération / Consommation de S}] \quad (3.17)$$

La quantité **S** peut être une des quantités suivantes : *masse globale, masse d'un constituant particulier A, énergie totale*. Les variables d'états (masse, concentration, température) se déduisent de la quantité **S**.

Dans le lit bouillonnant, les bilans de conservation sont calculés sur les concentrations molaires de composants gazeux. Le volume du lit bouillonnant V^B est considéré constant. On a :

$$V^B \frac{dC_{H_2O}^B}{dt} = F_{H_2O}^{in} - C_{H_2O}^B F_g^B + \varphi_{H_2O}^B V^B \quad (3.18)$$

$$V^B \frac{dC_{CO}^B}{dt} = F_{CO}^{in} - C_{CO}^B F_g^B + \varphi_{CO}^B V^B \quad (3.19)$$

$$V^B \frac{dC_{CH_4}^B}{dt} = F_{CH_4}^{in} - C_{CH_4}^B F_g^B + \varphi_{CH_4}^B V^B \quad (3.20)$$

$$V^B \frac{dC_{HCN}^B}{dt} = F_{HCN}^{in} - C_{HCN}^B F_g^B + \varphi_{HCN}^B V^B \quad (3.21)$$

$$V^B \frac{dC_{NH_3}^B}{dt} = F_{NH_3}^{in} - C_{NH_3}^B F_g^B + \varphi_{NH_3}^B V^B \quad (3.22)$$

$$V^B \frac{dC_{NO}^B}{dt} = 0 - C_{NO}^B F_g^B + \varphi_{NO}^B V^B \quad (3.23)$$

$$V^B \frac{dC_{O_2}^B}{dt} = F_{O_2}^{in} - C_{O_2}^B F_g^B + \varphi_{O_2}^B V^B \quad (3.24)$$

Où :

- C_i^B est la concentration molaire du composant *i* dans le lit bouillonnant, mol.m^{-3} .
- V^B est le volume constant du lit bouillonnant, m^3 .
- φ_i^B est la vitesse de production ou de consommation du composant *i* par les réactions chimiques dans le lit bouillonnant, $\text{mol.m}^{-3}.\text{h}^{-1}$. Les vitesses de réactions seront explicitées plus loin.

3.3.3. Bilan matière dans le lit post-combustion

Comme dans le cas des bilans matières dans le lit bouillonnant, le volume du lit post-combustion V^P est considéré constant, les bilans dans le lit post-combustion s'écrivent :

$$V^P \frac{dC_{H_2O}^P}{dt} = C_{H_2O}^B F_g^B - C_{H_2O}^P F_g^P + \phi_{H_2O}^P V^P \quad (3.25)$$

$$V^P \frac{dC_{CO}^P}{dt} = C_{CO}^B F_g^B - C_{CO}^P F_g^P + \phi_{CO}^P V^P \quad (3.26)$$

$$V^P \frac{dC_{CH_4}^P}{dt} = C_{CH_4}^B F_g^B - C_{CH_4}^P F_g^P + \phi_{CH_4}^P V^P \quad (3.27)$$

$$V^P \frac{dC_{HCN}^P}{dt} = C_{HCN}^B F_g^B - C_{HCN}^P F_g^P + \phi_{HCN}^P V^P \quad (3.28)$$

$$V^P \frac{dC_{NH_3}^P}{dt} = C_{NH_3}^B F_g^B - C_{NH_3}^P F_g^P + \phi_{NH_3}^P V^P \quad (3.29)$$

$$V^P \frac{dC_{NO}^P}{dt} = C_{NO}^B F_g^B - C_{NO}^P F_g^P + \phi_{NO}^P V^P \quad (3.30)$$

$$V^P \frac{dC_{O_2}^P}{dt} = C_{O_2}^B F_g^B - C_{O_2}^P F_g^P + \phi_{O_2}^P V^P \quad (3.31)$$

Où :

- C_i^P est la concentration molaire du composant i dans le lit post-combustion, mol.m⁻³.
- V^P est le volume constant du lit post-combustion, m³.
- ϕ_i^P est la vitesse de production ou de consommation du composé i dans le lit post-combustion, mol.m⁻³.h⁻¹.

3.3.4. Bilan thermique du lit bouillonnant

L'équation 3.17 peut s'écrire dans le cas de bilans énergétiques :

$$\frac{d}{dt}(m.h) = \sum_{in} \rho_i F_i h_i - \sum_{out} \rho_j F_j h_j \pm Q \quad (3.32)$$

Où :

- m est la masse, kg.
- h est l'enthalpie, J.kg⁻¹.
- ρ est la masse volumique, kg.m⁻³.
- F est le flux volumique, m³.h⁻¹.
- Q est la chaleur reçue ou perdue, J.h⁻¹.

L'enthalpie s'écrit :

$$h = h_0 + \int_{T_0}^T c_p dT = c_p T \quad (3.33)$$

Où :

- $h_0 = c_p * T_0$, h_0 est l'enthalpie de référence, $J.kg^{-1}$, T_0 est la température de référence, $T_0=273,15K$.
- c_p est la chaleur spécifique supposée constante, $J.kg^{-1}.K^{-1}$.

Le bilan thermique doit tenir compte de l'ensemble des phénomènes se déroulant dans le lit bouillonnant, à savoir : un bilan des flux entrants et sortants, le séchage des boues, l'étape de dévolatilisation, les réactions chimiques, les échanges de chaleur.

Le lit bouillonnant comporte deux phases : une phase gazeuse et une phase particulaire, constituée par le sable et les cendres. Nous faisons l'hypothèse que les particules et le gaz sont toujours à la même température (réacteur parfaitement agité).

Les flux énergétiques sont détaillés :

- bilan des flux entrants et sortants

Flux entrants : air et boues ; flux sortants : gaz et cendres.

$$\left[c_{pa} \rho_{a(T_a^{in})} F_a^{in} T_a^{in} + c_{pb} Q_b^{in} T_b^{in} \right] - \left[c_{pg} \rho_g (T^B) F_g^B T^B + c_{p,cendres} Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) (1 - f_{vol}) T^B \right] \quad (3.34)$$

Où :

- c_{pa} , c_{pb} , c_{pg} , $c_{p,cendres}$ sont respectivement les chaleurs spécifiques de l'air, des boues, du gaz, des cendres, $J.kg^{-1}.K^{-1}$.
- c_{pb} et $c_{p,cendres}$ sont prises égales à $2000 J.kg^{-1}.K^{-1}$ (valeur de la chaleur spécifique de la biomasse).
- c_{pa} est supposé constant dans la gamme de température étudiée : $c_{pa}=1103 J.kg^{-1}.K^{-1}$.
- c_{pg} est supposé constant autour de la température étudiée ($850^\circ C$). Le gaz est principalement un mélange d'air et de vapeur d'eau. Dans une mono-incinération de boues humides en lit fluidisé, la vapeur d'eau représente environ 42% des fumées [Guibelin, 2000] (Annexe A). A $850^\circ C$, la chaleur spécifique de vapeur d'eau est $1996 J.kg^{-1}.K^{-1}$, et celle de l'air est $1166 J.kg^{-1}.K^{-1}$. On calcule donc : $c_{pg}=1996*42\%+1166*58\%=1512 J.kg^{-1}.K^{-1}$.

- Le séchage des boues

$$F_{H_2O}^{in} L_{H_2O} \quad (3.35)$$

Où : L_{H_2O} est la chaleur latente de vaporisation de l'eau, $L_{H_2O}=40644 \text{ J.mol}^{-1}$ [Eyglunent, 1997]. Si les boues sont humides, la transformation de l'eau de phase liquide à gazeuse consomme une quantité importante d'énergie.

- Les réactions chimiques

Si la réaction est en cours (cinétique), la chaleur produite ou consommée par les réactions chimiques est :

$$\sum_j (r_j^B V^B \Delta H_{R_j}) \quad (3.36)$$

Où :

- r_j^B est la vitesse de réaction j dans lit bouillonnant, $\text{mol.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$.
- ΔH_{R_j} est l'enthalpie de la réaction R_j , J.mol^{-1} . Si la réaction est exothermique, $\Delta H_{R_j} < 0$; si elle est endothermique, $\Delta H_{R_j} > 0$.

Si la réaction est totale et instantanée, la chaleur produite ou consommée par les réactions chimiques est :

$$F_i^{in} \times \Delta H_{R_j} \quad (3.37)$$

- Les échanges de chaleur

Au sein du lit bouillonnant, les échanges peuvent avoir lieu soit entre les particules (sable et cendre) et le gaz, soit entre le gaz et les parois du four, soit entre les particules et les parois du four. Ils sont alors convectifs (entre le gaz et les particules, entre le gaz et les parois du four), conductifs (entre les particules, entre les particules et les parois du four) ou radiatifs (particules et gaz). Ces échanges sont supposés négligeables devant les autres termes de l'équation.

En résumé, le bilan thermique du lit bouillonnant s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} (c_{ps} m_s^B T^B + c_{pg} m_g^B T^B) = & (c_{pa} \rho_a(T_a^{in}) F_a^{in} T_a^{in} + c_{pb} Q_b^{in} T_b^{in} - c_{pg} \rho_g(T^B) F_g^B T^B - c_{p,cendres} Q_b^{in} (1-f_{H_2O})(1-f_{vol}) T^B) \\ & - (F_{H_2O}^{in} L_{H_2O}) - \sum_j r_j^B V^B \Delta H_{R_j} \end{aligned} \quad (3.38)$$

Où :

- m_s^B et m_g^B sont les masses de sable et de gaz dans le lit bouillonnant, kg.

- c_{ps} est la chaleur spécifique de sable, il est supposé égal à $1050 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ [Howard, 1989].

Considérant que la masse de gaz est faible par rapport à la masse de sable, le terme de masse de gaz est négligé. On a :

$$c_{ps} m_s^B \frac{dT^B}{dt} = \left(c_{pa} \rho_{a(T_a^in)} F_a^in T_a^in + c_{pb} Q_b^in T_b^in - c_{pg} \rho_{g(T^B)} F_g^B T^B - c_{p,cendres} Q_b^in (1 - f_{H_2O}) (1 - f_{vol}) T^B \right) - (F_{H_2O}^in L_{H_2O}) - \sum_j r_j^B V^B \Delta H_{R_j} \quad (3.39)$$

3.3.5. Bilan thermique du lit post-combustion

Dans le lit post-combustion, il n'y a qu'une seule phase constituée de gaz à une température uniforme T^P . Les entrées du lit post-combustion sont uniquement des gaz. Les flux énergétiques sont détaillés :

- Bilan des flux entrant et sortants

$$c_{pg} \rho_{g(T^B)} F_g^B T^B - c_{pg} \rho_{g(T^P)} F_g^P T^P \quad (3.40)$$

- Les réactions chimiques

$$\sum_j r_j^P V^P \Delta H_{R_j} \quad (3.41)$$

En résumé, le bilan thermique du lit post-combustion s'écrit :

$$\frac{d}{dt} (c_{pg} m_g^P T^P) = \left(c_{pg} \rho_{g(T^B)} F_g^B T^B - c_{pg} \rho_{g(T^P)} F_g^P T^P \right) - \sum_j r_j^P V^P \Delta H_{R_j} \quad (3.42)$$

Où : m_g^P est la masse de gaz dans le lit post-combustion, kg.

La masse de gaz totale dans le lit post-combustion est supposée constante. On la suppose toujours égale à $\rho_{g(850^\circ\text{C})} \times V^P$.

Le bilan thermique du lit post-combustion s'écrit :

$$c_{pg} m_g^P \frac{dT^P}{dt} = \left(c_{pg} \rho_{g(T^B)} F_g^B T^B - c_{pg} \rho_{g(T^P)} F_g^P T^P \right) - \sum_j r_j^P V^P \Delta H_{R_j} \quad (3.43)$$

3.4. Les réaction chimiques de combustion des boues en lit fluidisé

Dans le chapitre 2, nous avons montré un schéma réactionnel de référence qui comprend 25 réactions chimiques appliquées à la combustion de la biomasse : 5 réactions de combustion de carbone fixe et des gaz volatils, 20 réactions de formation et de réduction de NO et N₂O. Cependant ce schéma réactionnel est complexe (25 réactions) et il doit être rendu plus pertinent en considérant les spécificités liées à la composition des boues et à leur combustion en lit fluidisé.

3.4.1. Sélection des réactions chimiques pertinentes par rapport à la composition des boues

Dans un premier temps, nous allons sélectionner les réactions chimiques ayant lieu dans le lit bouillonnant. Le tableau 3.1 ci-dessous présente les valeurs des compositions de boues et de biomasse issues de la dévolatilisation. Les proportions des composés issus des boues sont calculées d'après [Werther et Ogada, 1999] (tableau 2.1), les proportions des composés issus de la biomasse sont calculées d'après [Liu et Gibbs, 2002] (tableau 2.2).

	Carbone fixe	Cendres	Composés volatils				NOx précurseur		
			CO	C _n H _m	CO ₂	H ₂	NH ₃	C-N	HCN
Boues	3,6	51	19,71	14,13	6,99	1,45	1,9	0,115	0,28
Biomasse	17,91	0,49	58,4	11,6	9,2	2,2	0,134	0,027	0,024
%massique de MS									

Tableau 3.1. Comparaison des composés issus de la dévolatilisation des boues et de la biomasse.

En théorie, les réactions proposées pour la combustion de la biomasse s'appliquent aussi à la combustion des boues. Cependant ce schéma réactionnel est complexe (25 réactions) et il doit être rendu plus pertinent en considérant les spécificités liées à la composition des boues et à leur combustion en lit fluidisé. En consultant le tableau 2.3, il est considéré que :

1. Pour les réactions catalytiques (R3 à R14), il existe trois catalyseurs : le carbone fixe, les cendres et la chaux (CaO). Dans le cas de la combustion des boues, il n'est pas utilisé de chaux. La faible teneur en carbone fixe des boues amène à négliger les réactions contenant du carbone fixe. Les mécanismes des réactions catalysées par les cendres dans la combustion des boues ne sont pas vraiment connus (chapitre 2). Il est

proposé ici une réaction similaire à la réaction homogène. Nous pouvons donc éliminer cette réaction. Si le fait de la négliger s'avère une hypothèse trop forte, la valeur cinétique de la réaction homogène doit être modifiée. En résumé, toutes les réactions catalytiques R3-R14 sont éliminées.

2. Pour les réactions gaz-solide, le solide est soit le carbone fixe (R16 et R21) soit l'azote prisonnier du carbone fixe (C-N) (R20). L'azote prisonnier du carbone fixe (C-N) est en quantité plus faible que l'azote libéré sous forme de composés volatils (HCN et NH_3) en raison de la faible teneur de carbone fixe dans les boues. Dans le tableau 3.1, on voit que l'azote prisonnier du carbone fixe des boues est de 0,115% de MS, mais que la somme de NH_3 et HCN est de 1,87% de MS. Donc un rapport supérieur à 10. En conclusion, les réactions gaz-solide R16 R20 R21 sont négligées.
3. N_2O n'est pas pris en compte dans le modèle de combustion de boues. Les réactions de réduction de N_2O (R12-R15) sont donc négligées.
4. Tous les hydrocarbures C_nH_m sont supposés être du CH_4 . C_2H_6 n'est pas pris en compte dans le modèle de combustion de boues, car il est supposé être en faible quantité. De plus, leurs rôles sont essentiellement thermiques.
5. Dans les oxydations de HCN, R17 R18 et R19, CNO est un produit de réaction intermédiaire qui produit ensuite NO et N_2O . Les trois réactions peuvent être assemblées en deux réactions R17R18 et R17R19. Ceci permettra de ne pas introduire de variable supplémentaire dans le modèle.

Enfin, après la simplification, on a sept réactions homogènes dans le lit bouillonnant, ce schéma réactionnel est présenté dans le tableau 3.2. Dans le lit post-combustion, les réactions homogènes gazeuses continuent. Mais la combustion d'hydrogène étant très rapide, elle est supposée instantanée et totale dans le lit bouillonnant. Donc, dans le lit post-combustion, il existe six réactions homogènes (R1, R2, R1718, R1719, R22, R23).

Type	No.	Réaction
Oxydation de NH ₃ (formation et réduction de NO)	R1	NO+NH ₃ +1/4O ₂ →N ₂ +3/2H ₂ O
	R2	NH ₃ +5/4O ₂ →NO+3/2H ₂ O
Formation de NO et N ₂ O par HCN	R17R18	HCN + O ₂ → NO+CO +H
	R17R19	HCN + 1/2 O ₂ + NO → N ₂ O+CO + H
Réaction de combustion	R22	CO + 1/2 O ₂ → CO ₂
	R23	CH ₄ + 3/2 O ₂ → CO + 2H ₂ O
	R24	H ₂ + 1/2 O ₂ → H ₂ O

Tableau 3.2. Réactions chimiques dans la combustion des boues en lit fluidisé.

3.4.2. Ecriture des vitesses et des enthalpies de réaction

A partir des réactions chimiques du tableau 3.2, on peut écrire les vitesses de production et de consommation des composés dans le lit bouillonnant :

$$\begin{pmatrix} \varphi_{H_2O}^B \\ \varphi_{CO}^B \\ \varphi_{CH_4}^B \\ \varphi_{HCN}^B \\ \varphi_{NH_3}^B \\ \varphi_{NO}^B \\ \varphi_{O_2}^B \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 1.5 & 1.5 & 0 & 0 & 0 & 2 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & -1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & -1 & -1 & 0 & 0 \\ -1 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 1 & 1 & -1 & 0 & 0 \\ -0.25 & -1.25 & -1 & -0.5 & -0.5 & -1.5 \end{bmatrix} \times \begin{pmatrix} r_1^B \\ r_2^B \\ r_{1718}^B \\ r_{1719}^B \\ r_{22}^B \\ r_{23}^B \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} F_{H_2}^{in} \times 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ -F_{H_2}^{in} \times 0.5 \end{pmatrix} / V_B \quad (3.44)$$

Où :

- La matrice stœchiométrique présente la relation entre les variables d'état et les réactions, les valeurs de la matrice sont issues des réactions du tableau 3.2.
 - Dans le cas du lit bouillonnant, la vitesse de R24 est instantanée, donc la vapeur d'eau et l'oxygène sont directement produits et consommés par une entrée du modèle $F_{H_2}^{in}$: 1 mole d'hydrogène produit 1 mole de vapeur d'eau et consomme 0.5 mole d'oxygène.
 - r_j^B est la vitesse de la réaction j dans le lit bouillonnant, exprimée en $\text{mol.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$.
- A partir du tableau 2.4, on peut écrire :

$$\begin{pmatrix} r_1^B \\ r_2^B \\ r_{1718}^B \\ r_{1719}^B \\ r_{22}^B \\ r_{23}^B \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} k_1^B (C_{NH_3}^B)^{0.5} (C_{NO}^B)^{0.5} (C_{O_2}^B)^{0.5} \\ k_2^B (C_{NH_3}^B) (C_{O_2}^B) \\ k_{1718}^B (C_{HCN}^B) (C_{O_2}^B) \\ k_{1719}^B (C_{HCN}^B) (C_{O_2}^B) \\ k_{22}^B (C_{CO}^B) (C_{H_2O}^B)^{0.5} (C_{O_2}^B)^{0.5} \\ k_{23}^B (C_{CH_4}^B)^{0.7} (C_{O_2}^B)^{0.8} \end{pmatrix} \quad (3.45)$$

Où :

- k_j^B est la constante de réaction j dans le lit bouillonnant.

Dans le modèle du lit post-combustion, il n'y a pas de réaction R24. Les vitesses des réactions chimiques s'écrivent :

$$\begin{pmatrix} \varphi_{H_2O}^P \\ \varphi_{CO}^P \\ \varphi_{CH_4}^P \\ \varphi_{HCN}^P \\ \varphi_{NH_3}^P \\ \varphi_{NO}^P \\ \varphi_{O_2}^P \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 1.5 & 1.5 & 0 & 0 & 0 & 2 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & -1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & -1 & -1 & 0 & 0 \\ -1 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 1 & 1 & -1 & 0 & 0 \\ -0.25 & -1.25 & -1 & -0.5 & -0.5 & -1.5 \end{bmatrix} \times \begin{pmatrix} r_1^P \\ r_2^P \\ r_{1718}^P \\ r_{1719}^P \\ r_{22}^P \\ r_{23}^P \end{pmatrix} \quad (3.46)$$

$$\begin{pmatrix} r_1^P \\ r_2^P \\ r_{1718}^P \\ r_{1719}^P \\ r_{22}^P \\ r_{23}^P \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} k_1^P (C_{NH_3}^P)^{0.5} (C_{NO}^P)^{0.5} (C_{O_2}^P)^{0.5} \\ k_2^P (C_{NH_3}^P) (C_{O_2}^P) \\ k_{1718}^P (C_{HCN}^P) (C_{O_2}^P) \\ k_{1719}^P (C_{HCN}^P) (C_{O_2}^P) \\ k_{22}^P (C_{CO}^P) (C_{H_2O}^P)^{0.5} (C_{O_2}^P)^{0.5} \\ k_{23}^P (C_{CH_4}^P)^{0.7} (C_{O_2}^P)^{0.8} \end{pmatrix} \quad (3.47)$$

Dans le bilan thermique, les chaleurs produites viennent principalement de la combustion des matières volatiles, donc des composés CO, CH₄ et H₂. Pour les réactions de NH₃ et HCN (R1, R2, R1718, R1719), leurs enthalpies de réactions sont négligées du fait des faibles quantités et des faibles enthalpies des réactions de NH₃ et HCN. Dans les deux lits, on a :

$$r_{22}^B \Delta H_{R22} V^B + r_{23}^B \Delta H_{R23} V^B + F_{H_2}^{in} \Delta H_{R24} \quad (3.48)$$

$$r_{22}^P \Delta H_{R22} V^P + r_{23}^P \Delta H_{R23} V^P \quad (3.49)$$

Les valeurs des enthalpies des réactions sont $\Delta H_{R22} = -283460 \text{ J.mol}^{-1}$, $\Delta H_{R23} = -519610 \text{ J.mol}^{-1}$, $\Delta H_{R24} = -241590 \text{ J.mol}^{-1}$ [Eyglunet, 1997].

3.5. Modèle du four

L'ensemble des équations et hypothèses présentées dans ce chapitre est repris ici.

Hypothèses :

- Le lit bouillonnant et le lit post-combustion sont assimilés à deux Réacteurs Parfaitement Agités (R.P.A.).
- Le séchage et la dévolatilisation sont instantanés.
- Il n'y a pas de carbone fixe dans le four.
- Les sables et les cendres sont chimiquement inertes.
- NO est le seul polluant azoté, il représente les NOx.
- Dans le lit bouillonnant, la température des particules (sable, cendres) et des gaz sont identiques et uniformes.
- Dans le lit post-combustion, les gaz sont à une température uniforme.
- Les gaz sont supposés parfaits.
- La pression dans le four est la pression atmosphérique, soit 101,3 kPa.
- La chaleur consommée par la dévolatilisation est négligée.
- La chaleur produite ou consommée par les réactions de formation et réduction de NO sont négligées.
- Les échanges de chaleur sont négligés.

Equations :

Forme générale des équations :

$$\dot{x} = f(x, u, w) \quad (3.50)$$

Où :

x représente les états du modèle :

$$x = [C_{H_2O}^B, C_{CO}^B, C_{CH_4}^B, C_{HCN}^B, C_{NH_3}^B, C_{NO}^B, C_{O_2}^B, T^B, C_{H_2O}^P, C_{CO}^P, C_{CH_4}^P, C_{HCN}^P, C_{NH_3}^P, C_{NO}^P, C_{O_2}^P, T^P] \quad (3.51)$$

u représente les entrées connues du modèle :

$$u = [Q_b^{in}, F_a^{in}, T_a^{in}] \quad (3.52)$$

w représente les entrées inconnues du modèle, c'est-à-dire la composition des boues :

$$w = [f_{H_2O}, f_{vol}, f_N] \quad (3.53)$$

$$\begin{pmatrix} \frac{dC_{H_2O}^B}{dt} \\ \frac{dC_{CO}^B}{dt} \\ \frac{dC_{CH_4}^B}{dt} \\ \frac{dC_{HCN}^B}{dt} \\ \frac{dC_{NH_3}^B}{dt} \\ \frac{dC_{NO}^B}{dt} \\ \frac{dC_{O_2}^B}{dt} \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} F_{H_2O}^{in} \\ F_{CO}^{in} \\ F_{CH_4}^{in} \\ F_{HCN}^{in} \\ F_{NH_3}^{in} \\ 0 \\ F_{O_2}^{in} \end{bmatrix} / V_B - \begin{pmatrix} C_{H_2O}^B \\ C_{CO}^B \\ C_{CH_4}^B \\ C_{HCN}^B \\ C_{NH_3}^B \\ C_{NO}^B \\ C_{O_2}^B \end{pmatrix} \times \frac{F_g^B}{V^B} + \begin{pmatrix} \varphi_{H_2O}^B \\ \varphi_{CO}^B \\ \varphi_{CH_4}^B \\ \varphi_{HCN}^B \\ \varphi_{NH_3}^B \\ \varphi_{NO}^B \\ \varphi_{O_2}^B \end{pmatrix} \quad (3.54)$$

$$\begin{aligned} c_{ps} m_s^B \frac{dT^B}{dt} = & \left(c_{pa} \rho_{a(T_a^in)} F_a^in T_a^in + c_{pb} Q_b^in T_b^in - c_{pg} \rho_{g(T^B)} F_g^B T^B - c_{p.cendres} Q_b^in (1-f_{H_2O})(1-f_{vol}) T^B \right) \\ & - (F_{H_2O}^in L_{H_2O}) - (r_{22}^B \Delta H_{R22} V^B + r_{23}^B \Delta H_{R23} V^B + F_{H_2}^in \Delta H_{R24}) \end{aligned} \quad (3.55)$$

$$\begin{pmatrix} \frac{dC_{H_2O}^P}{dt} \\ \frac{dC_{CO}^P}{dt} \\ \frac{dC_{CH_4}^P}{dt} \\ \frac{dC_{HCN}^P}{dt} \\ \frac{dC_{NH_3}^P}{dt} \\ \frac{dC_{NO}^P}{dt} \\ \frac{dC_{O_2}^P}{dt} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{H_2O}^B F_g^B - C_{H_2O}^P F_g^P \\ C_{CO}^B F_g^B - C_{CO}^P F_g^P \\ C_{CH_4}^B F_g^B - C_{CH_4}^P F_g^P \\ C_{HCN}^B F_g^B - C_{HCN}^P F_g^P \\ C_{NH_3}^B F_g^B - C_{NH_3}^P F_g^P \\ C_{NO}^B F_g^B - C_{NO}^P F_g^P \\ C_{O_2}^B F_g^B - C_{O_2}^P F_g^P \end{pmatrix} / V^P + \begin{pmatrix} \varphi_{H_2O}^P \\ \varphi_{CO}^P \\ \varphi_{CH_4}^P \\ \varphi_{HCN}^P \\ \varphi_{NH_3}^P \\ \varphi_{NO}^P \\ \varphi_{O_2}^P \end{pmatrix} \quad (3.56)$$

$$c_{pg} m_g^P \frac{dT^P}{dt} = \left(c_{pg} \rho_{g(T^B)} F_g^B T^B - c_{pg} \rho_{g(T^P)} F_g^P T^P \right) - (r_{22}^P \Delta H_{R22} V^P + r_{23}^P \Delta H_{R23} V^P) \quad (3.57)$$

Avec

$$\begin{bmatrix} F_{H_2O}^{in} \\ F_{CO}^{in} \\ F_{CH_4}^{in} \\ F_{H_2}^{in} \\ F_{HCN}^{in} \\ F_{NH_3}^{in} \\ F_{O_2}^{in} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} Q_b^{in} f_{H_2O} / M_{H_2O} \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_{CO} / M_{CO} \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_{CH_4} / M_{CH_4} \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_{H_2} / M_{H_2} \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_N f_{N-HCN} / M_N \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_N f_{N-NH_3} / M_N \\ 0,232 F_a^{in} \rho_a(T_a^{in}) / M_{O_2} \end{bmatrix} \quad (3.58)$$

$$F_g^B = \frac{Q_b^{in} (1 - (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol})) + F_a^{in} \rho_a(T_a^{in})}{\rho_{g(T^B)}} \quad (3.59)$$

$$F_g^P = \frac{Q_b^{in} (1 - (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol})) + F_a^{in} \rho_a(T_a^{in})}{\rho_{g(T^P)}} \quad (3.60)$$

$$\begin{pmatrix} \varphi_{H_2O}^B \\ \varphi_{CO}^B \\ \varphi_{CH_4}^B \\ \varphi_{HCN}^B \\ \varphi_{NH_3}^B \\ \varphi_{NO}^B \\ \varphi_{O_2}^B \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 1.5 & 1.5 & 0 & 0 & 0 & 2 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & -1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & -1 & -1 & 0 & 0 \\ -1 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 1 & 1 & -1 & 0 & 0 \\ -0.25 & -1.25 & -1 & -0.5 & -0.5 & -1.5 \end{bmatrix} \times \begin{pmatrix} r_1^B \\ r_2^B \\ r_{1718}^B \\ r_{1719}^B \\ r_{22}^B \\ r_{23}^B \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} F_{H_2}^{in} \times 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ -F_{H_2}^{in} \times 0.5 \end{pmatrix} / V_B \quad (3.61)$$

$$\begin{pmatrix} r_1^B \\ r_2^B \\ r_{1718}^B \\ r_{1719}^B \\ r_{22}^B \\ r_{23}^B \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} k_1^B (C_{NH_3}^B)^{0.5} (C_{NO}^B)^{0.5} (C_{O_2}^B)^{0.5} \\ k_2^B (C_{NH_3}^B) (C_{O_2}^B) \\ k_{1718}^B (C_{HCN}^B) (C_{O_2}^B) \\ k_{1719}^B (C_{HCN}^B) (C_{O_2}^B) \\ k_{22}^B (C_{CO}^B) (C_{H_2O}^B)^{0.5} (C_{O_2}^B)^{0.5} \\ k_{23}^B (C_{CH_4}^B)^{0.7} (C_{O_2}^B)^{0.8} \end{pmatrix} \quad (3.62)$$

$$\begin{pmatrix} \varphi_{H_2O}^P \\ \varphi_{CO}^P \\ \varphi_{CH_4}^P \\ \varphi_{HCN}^P \\ \varphi_{NH_3}^P \\ \varphi_{NO}^P \\ \varphi_{O_2}^P \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 1.5 & 1.5 & 0 & 0 & 0 & 2 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & -1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & -1 & -1 & 0 & 0 \\ -1 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 1 & 1 & -1 & 0 & 0 \\ -0.25 & -1.25 & -1 & -0.5 & -0.5 & -1.5 \end{bmatrix} \times \begin{pmatrix} r_1^P \\ r_2^P \\ r_{1718}^P \\ r_{1719}^P \\ r_{22}^P \\ r_{23}^P \end{pmatrix} \quad (3.63)$$

$$\begin{pmatrix} r_1^P \\ r_2^P \\ r_{1718}^P \\ r_{1719}^P \\ r_{22}^P \\ r_{23}^P \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} k_1^P (C_{NH_3}^P)^{0.5} (C_{NO}^P)^{0.5} (C_{O_2}^P)^{0.5} \\ k_2^P (C_{NH_3}^P) (C_{O_2}^P) \\ k_{1718}^P (C_{HCN}^P) (C_{O_2}^P) \\ k_{1719}^P (C_{HCN}^P) (C_{O_2}^P) \\ k_{22}^P (C_{CO}^P) (C_{H_2O}^P)^{0.5} (C_{O_2}^P)^{0.5} \\ k_{23}^P (C_{CH_4}^P)^{0.7} (C_{O_2}^P)^{0.8} \end{pmatrix} \quad (3.64)$$

3.6. Paramètres du modèle

Les paramètres suivant apparaissent dans différentes équations :

- Les paramètres connus servant aux conversions (tableau 3.3) : les masses molaires des composés, les paramètres utilisés dans le calcul de masse molaire de l'air et du gaz ($\rho_{a(T)}$ et $\rho_{g(T)}$).
- Les paramètres physiques du four (tableau 3.4) : volumes, masse de sable. Ces valeurs sont déduites des données industrielles (Annexe B). Cette annexe détaille le calcul de la hauteur du lit bouillonnant par des équations empiriques.
- Les paramètres thermiques (tableau 3.5) : les enthalpies de réactions, les capacités calorifiques, ...
- La répartition des composés volatils et des précurseurs de NOx issus de la dévolatilisation (tableau 3.6).
- Les paramètres cinétiques (tableau 3.7) : les constantes de réactions k_j .

Paramètres connus :

On peut considérer que les paramètres des tableaux 3.3, 3.4, et 3.5 sont connus et vont peu influencer la dynamique du modèle.

Notation	Signification	Valeur	Unité
M_{H_2O}	Masse molaire de H_2O	0,018	kg.mol ⁻¹
M_{CO}	Masse molaire de CO	0,026	
M_{CH_4}	Masse molaire de CH_4	0,016	
M_{H_2}	Masse molaire d' H_2	0,002	
M_N	Masse molaire d' N	0,014	
M_{O_2}	Masse molaire d' O_2	0,032	
M_{air}	Masse molaire de l'air atmosphérique	0,029	
M_{mel}	Masse molaire du mélange gazeux dans le four	0,025	
T_0	Température de 273,15°K	273,15	°K
R	Constante universelle des gaz parfaits	8,314	J.mol ⁻¹ .K ⁻¹
P_0	Pression atmosphérique	101300	Pa
$\rho_{a(T)}$	Masse volumique de l'air à la température T, $\rho_{a(T)} = \frac{P_0 M_{air}}{RT}$	353/T	kg.m ⁻³
$\rho_{g(T)}$	Masse volumique du gaz à la température T, $\rho_{g(T)} = \frac{P_0 M_{mel}}{RT}$	305/T	kg.m ⁻³

Tableau 3.3. Les paramètres « connus » servant aux conversions.

Notation	Signification	Valeur	Unité
V^B	Volume du lit bouillonnant	11,5	m ³
V^P	Volume du lit post-combustion	74,5	m ³
m_s^B	Masse de sable dans le lit bouillonnant	14000	kg
m_g^P	Masse de gaz dans le lit bouillonnant	22	kg

Tableau 3.4. Les paramètres du « Four ».

Notation	Signification	Valeur	Unité
c_{pa}	Chaleur spécifique à pression atmosphérique de l'air (T=550°C)	1103	J.kg ⁻¹ .K ⁻¹
c_{pg}	Chaleur spécifique à pression atmosphérique du gaz (T=850°C)	1512	J.kg ⁻¹ .K ⁻¹
c_{pb}	Chaleur spécifique à pression atmosphérique des boues	2000	J.kg ⁻¹ .K ⁻¹
$c_{p,cendres}$	Chaleur spécifique à pression atmosphérique des cendres	2000	J.kg ⁻¹ .K ⁻¹
c_{ps}	Chaleur spécifique à pression atmosphérique du sable	1050	J.kg ⁻¹ .K ⁻¹
T_{am}	Température de l'air ambiante	293,15	°K
L_{H_2O}	Chaleur latente de l'eau	40644	J.mol ⁻¹
ΔH_{R22}	Enthalpie de la réaction R22	-283460	J.mol ⁻¹
ΔH_{R23}	Enthalpie de la réaction R23	-519610	J.mol ⁻¹
ΔH_{R24}	Enthalpie de la réaction R24	-241590	J.mol ⁻¹

Tableau 3.5. Les paramètres « thermiques ».

Paramètres inconnus :

Les paramètres de la répartition issue de la dévolatilisation des boues dans le tableau 3.6 sont supposés constants, mais dépendent en fait des conditions opératoires et de la composition des boues. Ils seraient plus exacts de les considérer comme des fonctions dépendant de la température et de la composition des boues. Par manque de connaissance, on utilise les valeurs proposées par la littérature (Chapitre 2).

Notation	Signification	Valeur	Unité
f_{CO}	Fraction massique de CO issu de la dévolatilisation	43,43	% de MV
f_{CH_4}	Fraction massique de CH ₄ issu de la dévolatilisation	31,12	% de MV
f_{H_2}	Fraction massique de H ₂ issu de la dévolatilisation	3,2	% de MV
f_{CO_2}	Fraction massique de CO ₂ issu de la dévolatilisation	15,39	% de MV
f_{N-HCN}	Fraction de transformation de l'azote des boues en HCN après dévolatilisation	10	% de f_N
f_{N-NH_3}	Fraction de transformation de l'azote des boues en NH ₃ après dévolatilisation	90	% de f_N

Tableau 3.6. Les paramètres de « répartition » issue de la dévolatilisation des boues.

Les paramètres liés aux réactions chimiques dans le tableau 3.7 vont influencer la dynamique des concentrations des variables d'états et des températures.

Notation	Signification	Valeur	Unité
k_1^B	Constante cinétique de la réaction R1 dans le lit bouillonnant	$1,07 \cdot 10^{12} \exp(-29400/T^B)$	$m^{1.5} \cdot mol^{-0.5} \cdot s^{-1}$
k_1^P	Constante cinétique de la réaction R1 dans le lit post-combustion	$1,07 \cdot 10^{12} \exp(-29400/T^P)$	$m^{1.5} \cdot mol^{-0.5} \cdot s^{-1}$
k_2^B	Constante cinétique de la réaction R2 dans le lit bouillonnant	$2,73 \cdot 10^{14} \exp(-38160/T^B)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$
k_2^P	Constante cinétique de la réaction R2 dans le lit post-combustion	$2,73 \cdot 10^{14} \exp(-38160/T^P)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$
k_{1718}^B	Constante cinétique de la réaction R1718 dans le lit bouillonnant	$2,14 \cdot 10^5 \exp(-10000/T^B) p / (p+[NO])$ $p=1,02 \cdot 10^9 \exp(-25460/T^B)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$
k_{1718}^P	Constante cinétique de la réaction R1718 dans le lit post-combustion	$2,14 \cdot 10^5 \exp(-10000/T^P) p / (p+[NO])$ $p=1,02 \cdot 10^9 \exp(-25460/T^P)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$
k_{1719}^B	Constante cinétique de la réaction R1719 dans le lit bouillonnant	$2,14 \cdot 10^5 \exp(-10000/T^B) [NO] / (p+[NO])$ $p=1,02 \cdot 10^9 \exp(-25460/T^B)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$
k_{1719}^P	Constante cinétique de la réaction R1719 dans le lit post-combustion	$2,14 \cdot 10^5 \exp(-10000/T^P) [NO] / (p+[NO])$ $p=1,02 \cdot 10^9 \exp(-25460/T^P)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$
k_{22}^B	Constante cinétique de la réaction R22 dans le lit bouillonnant	$3,25 \cdot 10^7 \exp(-15098/T^B)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$
k_{22}^P	Constante cinétique de la réaction R22 dans le lit post-combustion	$3,25 \cdot 10^7 \exp(-15098/T^P)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$
k_{23}^B	Constante cinétique de la réaction R23 dans le lit bouillonnant	$1,585 \cdot 10^{10} \exp(-24157/T^B)$	$m^{1.5} \cdot mol^{-0.5} \cdot s^{-1}$
k_{23}^P	Constante cinétique de la réaction R23 dans le lit post-combustion	$1,585 \cdot 10^{10} \exp(-24157/T^P)$	$m^{1.5} \cdot mol^{-0.5} \cdot s^{-1}$

Tableau 3.7. Les paramètres « cinétiques ».

3.7. Démarche de validation

3.7.1. Conditions de validation du modèle

Dans les paragraphes précédents, nous avons écrit le modèle en considérant des bilans entrée/sortie impliquant le plus possible de phénomènes, notamment sur les cinétiques de réaction en phase gaz. Cependant, et malgré de nombreuses simplifications à partir des références bibliographiques, ce modèle reste un modèle complexe, comprenant de nombreux paramètres. Une validation fine de ce modèle ne peut être possible que sur un pilote instrumenté : il faudrait disposer de toutes les entrées du modèle (composition des boues, débits, températures des boues et de l'air), ainsi que de tous les états (composition et température des gaz dans le lit bouillonnant ainsi qu'à la sortie du four). Enfin il faut disposer d'un jeu de mesures reproduisant suffisamment la dynamique du comportement du réacteur pour caler les nombreux paramètres, ce qui nécessiterait de très nombreuses expériences.

Or les conditions industrielles ne peuvent remplir ces contraintes. Toutefois, la seule garantie d'avoir sélectionné les phénomènes principaux est de pouvoir valider sur des données industrielles et non de laboratoire, qui nécessitent ensuite une extrapolation aux conditions industrielles.

La démarche suivie est par conséquent d'utiliser les mesures industrielles disponibles et d'adapter le modèle à celles-ci. Aussi nous allons être amenés à réduire considérablement la complexité des équations. L'objectif est de faire ressortir les points clés de la dynamique de fonctionnement, et de rendre le modèle le plus transposable possible à d'autres fours industriels d'incinération des boues.

Un obstacle important à la validation du modèle est le peu de connaissances liées à la dévolatilisation. En effet, on sait que la composition des gaz volatils dépend à la fois de la composition des boues brutes et de la température du lit bouillonnant. Cependant les mécanismes ne sont pas connus, il n'y a pas de modélisation possible. De plus, il n'est pas concrètement possible de faire des mesures dynamiques, les gaz volatils étant à l'intérieur du lit bouillonnant. Un des objectifs de la validation est de savoir si cet obstacle peut être contourné.

3.7.2. Démarche suivie

La démarche générale de la validation d'un modèle de connaissance suit les étapes suivantes :

- Choix d'un fichier de mesures pour l'identification des paramètres du modèle. Ce fichier doit être au maximum représentatif de l'ensemble de la plage de fonctionnement et doit contenir des informations sur le comportement dynamique du procédé afin de pouvoir distinguer les paramètres et obtenir une précision suffisante.
- Identification des paramètres sur les mesures sélectionnées par l'utilisation d'un critère quadratique de l'erreur de mesure.
- Validation du comportement du modèle avec des mesures non utilisées pour l'identification. En fonction des résultats, modifications éventuelles du modèle, et à nouveau étape d'identification jusqu'à obtenir un résultat satisfaisant.

Mais on ne peut pas utiliser directement cette démarche pour deux raisons principales :

- La composition des boues en entrée est inconnue (l'humidité, la quantité de matières volatiles, la teneur en azote).
- La répartition issue de la dévolatilisation est mal connue.

Ces considérations nous amènent à proposer une démarche basée sur le calage successif de quelques paramètres, permettant de découpler les problèmes. La démarche proposée est :

- Choix des fichiers de mesures utilisés pour le calage du modèle et des fichiers qui seront utilisés pour la validation.
- L'originalité qui sera développée est de découpler le modèle en deux sous-modèles qui permettront d'affiner les raisonnements.
- Identification des paramètres sur les mesures sélectionnées par l'utilisation d'un critère quadratique de l'erreur de mesure.
- Validation du comportement du modèle avec des mesures non utilisées pour l'identification.
- Discussion.

3.8. Conclusion du Chapitre 3

La démarche suivie est la suivante :

- Le paragraphe 3.1 pose les hypothèses principales : le four est séparé en deux zones parfaitement agitées (lit bouillonnant et lit post-combustion). Les températures sont uniformes. Les variables d'états retenues sont les composés principaux et les températures, soit 16 variables d'états.
- Le paragraphe 3.2 permet d'établir les expressions algébriques des débits de gaz : gaz sortants, oxygène entrant, gaz issus de la dévolatilisation. Les gaz dépendent de trois caractéristiques des boues : l'humidité (f_{H_2O}), la fraction volatile (f_{vol}) et éventuellement la teneur en azote (f_N).
- Le paragraphe 3.3 établit les bilans massiques et thermiques pour chaque lit.
- Dans le paragraphe 3.4, les réactions pertinentes sont sélectionnées à partir de la référence [Liu et Gibbs, 2002]. Le critère principal de simplification est l'absence de solide dans le four (carbone fixe, catalyseur). On aboutit à sélectionner 7 réactions dans le lit bouillonnant et 6 réactions dans le lit post-combustion.
- Les paragraphes 3.5 et 3.6 reprennent l'ensemble du modèle et ses paramètres. Ces derniers sont répartis par catégorie. Le classement fait ressortir la spécificité des paramètres cinétiques sur la dynamique du modèle.
- Enfin, le paragraphe 3.7 aborde la méthodologie de validation du modèle.

Chapitre 4. Validation du modèle avec des données industrielles

Le chapitre 3 a permis d'établir un modèle d'incinération des boues. Ce chapitre va permettre de comparer le comportement du modèle avec des mesures industrielles. Dans une première partie, le modèle est adapté au problème des entrées non mesurées qui est la composition des boues entrant dans le four. Le modèle est simplifié et divisé en deux sous-modèles afin d'en diminuer les degrés de liberté. Les paramètres cinétiques sont ensuite identifiés à l'aide de mesure. Enfin, le modèle complet est validé avec les autres mesures disponibles.

4.1. Adaptation du modèle au problème des entrées non mesurées

4.1.1. Les grandeurs mesurées

La figure 4.1 présente les grandeurs mesurées sur la station industrielle d'incinération des boues d'épuration en lit fluidisé dont nous avons les données. Les mesures sont relevées toutes les minutes, centralisées sur un superviseur puis archivées en séquences d'une journée. Nous disposons donc de mesures dynamiques. Seules les données utilisées sont présentées, pour plus de détails, se référer à l'Annexe C.

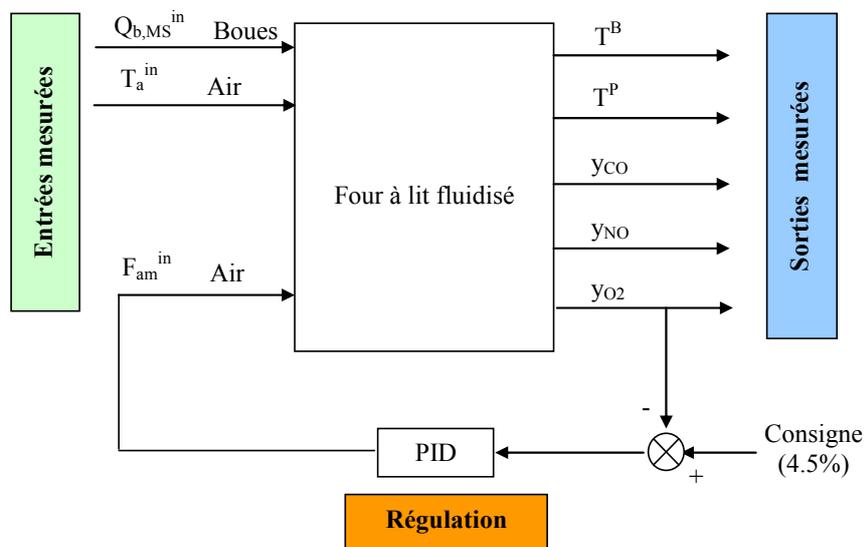


Figure 4.1. Les grandeurs mesurées de la station industrielle.

Il y a deux flux d'entrée : les boues et l'air. La seule grandeur mesurée pour les boues entrantes est le débit de matière sèche ($Q_{b,MS}^{in}$). La siccité des boues est mesurée hors ligne par prélèvements à un intervalle de plusieurs jours. Elle est estimée par l'industriel aux alentours de 24%, soit une fraction massique d'eau (f_{H_2O}) de l'ordre de 76%. Afin d'être cohérent avec l'écriture du modèle au chapitre 3, nous écrivons le débit total de boues entrant dans le four:

$$Q_b^{in} = \frac{Q_{b,MS}^{in}}{1 - f_{H_2O}} \text{ (kg.h}^{-1}\text{)} \quad (4.1)$$

La température des boues n'est pas mesurée. Elle peut être soit à une température ambiante, soit à une température plus élevée à cause de l'étape de déshydratation mécanique préalable. Nous prendrons comme hypothèse que les boues sont à la température ambiante.

Le flux d'air entrant est caractérisé par son débit (F_{am}^{in}) à température ambiante (T_{am}) et la température d'entrée dans le four (T_a^{in}). Afin de déterminer le flux d'air réel entrant dans le four à la température (T_a^{in}), une adaptation de la mesure doit être effectuée :

$$F_a^{in} = \frac{F_{am}^{in} T_{am}}{T_a^{in}} \text{ (m}^3\text{.h}^{-1}\text{)} \quad (4.2)$$

L'état de l'intérieur du four est caractérisé par les températures du lit bouillonnant (T^B) et du lit post-combustion (T^P) qui sont toutes deux mesurées.

Enfin nous disposons de mesures de la composition du gaz sortant du four. Ces compositions sont mesurées avec des unités correspondant aux unités industrielles habituellement employées :

- y_{CO} est la concentration volumique de monoxyde de carbone sortant du four en ppmv ($\text{cm}^3\text{.m}^{-3}$) ; correspondant à la variable d'état C_{CO}^P , concentration en mol.m^{-3} .
- y_{O_2} est le pourcentage volumique d' O_2 sortant du four, correspondant à la variable d'état $C_{O_2}^P$, concentration en mol.m^{-3} .
- y_{NO} est la concentration massique sortant de la cheminée, mg.Nm^{-3} , correspondant à la variable d'état C_{NO}^P , concentration en mol.m^{-3} .

Les variables d'état sont converties afin de correspondre aux unités des mesures. Les équations sont :

$$y_{O_2} = \frac{C_{O_2}^P \times M_{O_2}}{\rho_{O_2(T^P)}} \times 100 \text{ (\%)} \quad \left(\frac{[mol.m^{-3}] \times [kg.mol^{-1}]}{[kg.m^{-3}]} \right) \quad (4.3)$$

$$y_{CO} = \frac{C_{CO}^P \times M_{CO}}{\rho_{CO(T^P)}} \times 10^6 \text{ (ppmv)} \quad \left(\frac{[mol.m^{-3}] \times [kg.mol^{-1}]}{[kg.m^{-3}]} \right) \quad (4.4)$$

Pour les NOx sortant de la cheminée, l'expression est différente des précédentes, car le débit de gaz sortant de la cheminée est plus grand que le débit de gaz sortant du lit en raison d'un tirage de fumée.

$$y_{NO} = (C_{NO}^P \times M_{NO} \times 10^6) \times \frac{F_g^P}{F_{f0}} \text{ (mg.Nm}^{-3}\text{)} \quad \left([mol.m^{-3}] \times [kg.mol^{-1}] \times \frac{[m^3.h^{-1}]}{[Nm^3.h^{-1}]} \right) \quad (4.5)$$

Où : F_{f0} est le débit d'extraction des fumées dans la cheminées dans les conditions de 0°C et 101.3 kPa, il est mesurée en $Nm^3.h^{-1}$. C'est une mesure industrielle.

La concentration en oxygène sortant du four est régulé pour conserver une proportion de 4,5% du volume du gaz. On ne pourra donc pas observer de comportement dynamique sur le dioxygène. En effet, il est impossible d'ouvrir la boucle !

4.1.2. Simplification du modèle en vue de la validation

La difficulté principale de l'exploitation des mesures vient du fait que la composition des boues à traiter ainsi que la répartition des composés issus de la dévolatilisation ne sont pas connues. Au niveau du modèle, seules les sorties sont mesurées, tandis que les états intermédiaires ne sont pas mesurés. A priori, plusieurs combinaisons entre les entrées et les états intermédiaires peuvent amener la sortie du four aux mêmes valeurs de température et d'oxygène. En effet, ils sont influencés par l'ensemble des composés chimiques. Il faut donc adapter le modèle pour pouvoir le valider.

Le modèle proposé au chapitre 3 comporte seize variables d'état, tandis que dans le site industriel, il y a cinq grandeurs mesurées. Le nombre de variables non mesurées excède donc de 11 le nombre de variables mesurées. Nous pouvons rajouter la composition des boues qui n'est pas connue. Afin de limiter au maximum les variables liées à cette composition, nous avons ramené celles-ci à trois grandeurs principales: la teneur en eau (f_{H_2O}), la fraction des composés volatils (f_{vol}) et la fraction d'azote (f_N). Ceci rajoute donc 3 variables au modèle. Le modèle, non seulement est complexe à manipuler du fait du grand nombre de variables, mais

de plus la validation ne sera pas significative. Il est donc nécessaire de définir une démarche cohérente afin de parvenir à une validation du comportement du modèle.

La première étape consiste en une simplification du nombre de variables d'état.

En examinant le modèle, on remarque que les concentrations des composés H_2O , CH_4 , HCN et NH_3 ne sont jamais mesurées, ce qui amène à établir les hypothèses suivantes:

- On a supposé que les boues ne contiennent pas de matière carbonée, et que de plus le ratio de formation de précurseur de NO_x est de 10% pour le HCN , contre 90% pour le NH_3 . Nous supposons donc que le composé HCN est en faible quantité, et qu'il peut donc être négligé. Les variables d'état C_{HCN}^B, C_{HCN}^P sont donc supprimées, ainsi que les réactions chimiques associées R17R18 et R17R19.
- Le méthane CH_4 est un gaz qui va influencer fortement la température du four, mais qui n'est pas mesuré en sortie du four. Une raison probable est que son émission est supposée nulle, et qu'il est entièrement oxydé en monoxyde de carbone (CO) dans le four. Il n'apparaîtra donc plus dans le modèle comme variable d'état: $C_{CH_4}^B, C_{CH_4}^P$ sont éliminées. Par contre il est rajouté des termes statiques de création de CO et d' H_2O ainsi que de consommation d' O_2 dans les bilans des composés, termes similaires à ceux rajoutés pour l'équation d'oxydation de l'hydrogène (R24) : on remplace l'expression r_{23}^B par $F_{CH_4}^{in} / V^B$ dans l'équation 3.44. De même l'apport thermique est maintenu dans les équations de bilan thermique: on remplace l'expression $r_{23}^B \Delta H_{R23} V^B$ par $F_{CH_4}^{in} \Delta H_{R23}$ dans l'équation de bilan thermique du lit bouillonnant (3.48). Tout le CH_4 étant consommé dans le lit bouillonnant, il n'apparaît plus de terme dans l'équation de bilan de T^P , et le terme $r_{23}^P \Delta H_{R23} V^P$ est supprimé (3.49).

Après la simplification, il reste donc 12 variables d'états :

$$x = [C_{H_2O}^B, C_{CO}^B, C_{NH_3}^B, C_{NO}^B, C_{O_2}^B, T^B, C_{H_2O}^P, C_{CO}^P, C_{NH_3}^P, C_{NO}^P, C_{O_2}^P, T^P] \quad (4.6)$$

Ce modèle ramène le nombre de variables inconnues à 10 (figure 4.2). Le fait d'éliminer des variables d'états permet aussi de diminuer le nombre de réactions, diminuant ainsi le nombre de paramètres à identifier. Le modèle ne possède plus que trois réactions chimiques: la réduction de NO (R1), la formation de NO (R2) et l'oxydation de CO (R22).

La structure du modèle simplifié est présentée sur la figure 4.2. Ce schéma montre les modifications apportées au modèle: le nombre de variables inconnues est réduit à 12, celui des réactions chimiques à 3 dans chaque lit. Les mesures de débit de boues et d'air sont adaptées aux entrées du modèle.

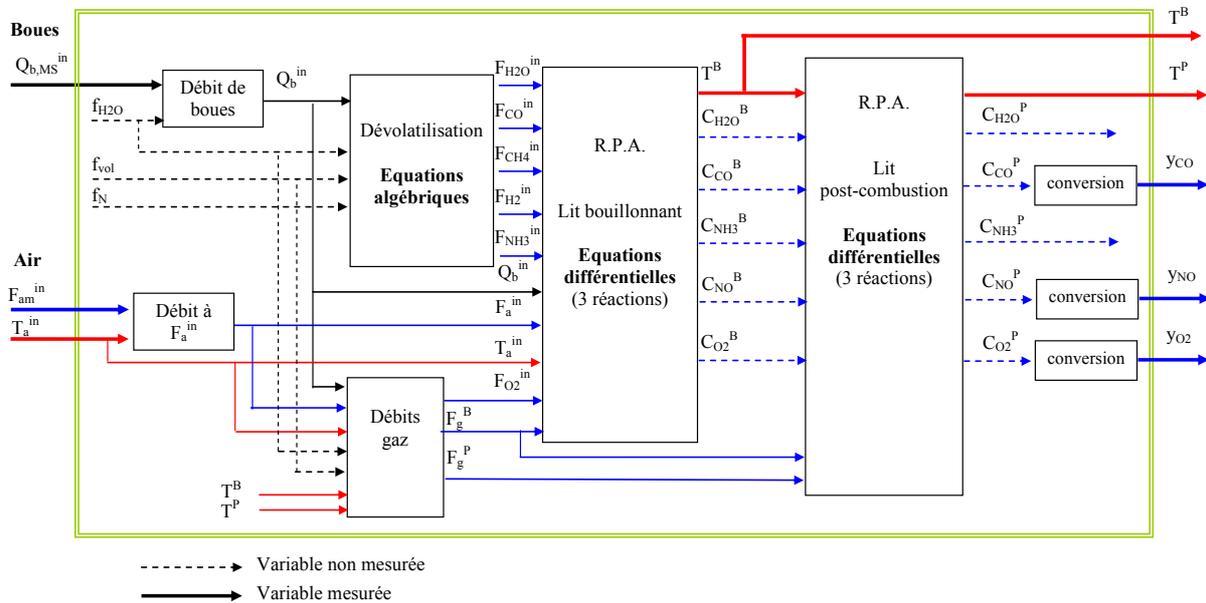


Figure 4.2. Représentation schématique du modèle simplifié.

Ce schéma permet de mettre en évidence une difficulté importante pour la validation du modèle: la composition des boues, représentée par les variables f_{H_2O} , f_{vol} et f_N , est inconnue. Il faut donc soit trouver un moyen de reconstruire ces valeurs, soit les affecter arbitrairement à une valeur constante:

- On suppose a priori que la siccité des boues est à peu près constante, du fait du séchage préalable des boues.
- La fraction volatile représente la partie des boues qui va induire les effets macroscopiques principaux du four: variations de la température et de la consommation d'oxygène, par l'intermédiaire des réactions des composés volatils. Elle est donc variable.
- La fraction d'azote, est aussi variable, mais sa part est trop faible pour intervenir sur les paramètres opératoires (température, quantité d'oxygène). Par défaut, nous supposons donc qu'elle est constante.

Le paragraphe suivant propose de reconstituer la fraction volatile à partir des mesures.

4.1.3. Estimation de la fraction volatile des boues

Nous proposons de reconstituer le paramètre f_{vol} en utilisant les mesures. En effet, la fraction volatile f_{vol} va induire les effets macroscopiques principaux du four : variation de la température et consommation d'oxygène, par l'intermédiaire des réactions des composés volatils.

Le maintien en excès d'oxygène impose une combustion globale totale. Aussi nous pouvons considérer que le four est globalement en équilibre statique pour ces composés. Cette hypothèse permet d'établir le bilan statique global sur l'oxygène.

Le bilan statique de dioxygène peut être globalement décrit par:

$$\text{Flux d'O}_2 \text{ entrant} - \text{flux d'O}_2 \text{ sortant} - \text{flux d'O}_2 \text{ consommé} = 0 \quad (4.7)$$

En reprenant le modèle du chapitre 3, nous pouvons écrire:

- flux d'O₂ entrant: $F_{O_2}^{in}$ (mol/h).
- flux d'O₂ sortant: $-C_{O_2}^P \times F_g^P$ où F_g^P en $m^3 \cdot h^{-1}$, $C_{O_2}^P$ en $mol \cdot m^{-3}$.
- flux d'O₂ consommé: les cinétiques de réaction sont remplacées par un terme global de consommation:

$$Q_{b,MS}^{in} f_{vol} S_{O_2_vol} / M_{O_2} \quad (mol \cdot h^{-1}) \quad (4.8)$$

Où : $S_{O_2_vol}$ est le nombre de kg d'O₂ nécessaire par kg de gaz volatil, établi à partir des coefficients stœchiométriques des réactions de consommation d'oxygène par les matières volatiles (tableau 3.2 : R22 R23 R24) :

$$S_{O_2_vol} = \left(\frac{f_{CO}}{M_{CO}} \times 0.5 + \frac{f_{CH_4}}{M_{CH_4}} \times 2 + \frac{f_{H_2}}{M_{H_2}} \times 0.5 \right) \times M_{O_2} = 1,75 \text{ kgO}_2/\text{kg gaz volatils} \quad (4.9)$$

Le bilan d'O₂ s'écrit alors :

$$F_{O_2}^{in} - C_{O_2}^P \times F_g^P + 1,75 Q_{b,MS}^{in} f_{vol} / M_{O_2} = 0 \quad (4.10)$$

Le débit de gaz sortant du four F_g^P est lui-même dépendant de la fraction des matières volatiles, on le remplace donc par l'équation 3.12. Le débit total des boues est remplacé par la relation 4.1 fonction du débit de boues en MS et de l'humidité. En développant et réorganisant l'équation 4.10, on a:

$$f_{vol} = \frac{\left(\frac{C_{O_2}^P}{\rho_{g(T^P)}} - \frac{0,232}{M_{O_2}} \right) F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})} + \frac{Q_{b,MS}^{in}}{1 - f_{H_2O}} f_{H_2O}}{\left(\frac{C_{O_2}^P}{\rho_{g(T^P)}} + \frac{1,75}{M_{O_2}} \right) Q_{b,MS}^{in}} \quad (4.11)$$

Le schéma du modèle algébrique de reconstruction de f_{vol} est présenté sur la figure 4.3 ci-dessous. Etant donné qu'il utilise des mesures et non des variables d'état, il peut être simulé indépendamment du modèle. La mesure de la concentration d'oxygène sortant du four est utilisée.

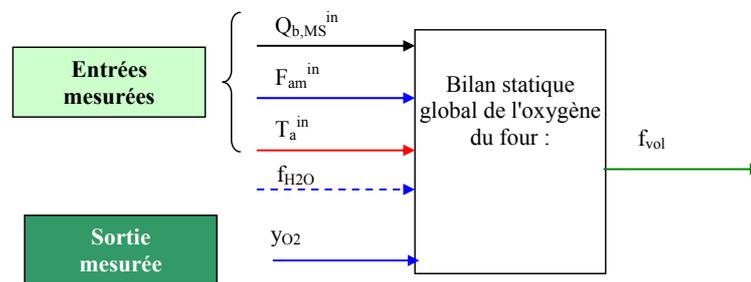


Figure 4.3. Modèle algébrique de reconstruction de la composition des boues

4.2. Sous modèle de combustion et sous modèle des NOx

4.2.1. Séparation en deux sous modèles

En examinant les mesures dont nous disposons et en les comparant avec le modèle, nous pouvons faire deux remarques :

- Certaines grandeurs sont très facilement mesurables (températures, oxygène...). On peut donc considérer qu'un modèle en ligne peut récupérer ces mesures directement, et les éliminer des variables d'état.
- Les équations du modèle concernant les oxydes d'azote dépendent exclusivement de ces grandeurs facilement mesurables, et ne dépendent pas des autres composés de la combustion (CH₄, CO etc..).

On peut donc séparer les données en deux sous-groupes. Un premier sous groupe comprend les variables qui vont influencer sur les températures : c'est le groupe représenté par la

combustion carbonée, en excluant les composés azotés. Elle comprend : les températures, le monoxyde de carbone, la vapeur d'eau et l'oxygène ($C_{H_2O}^B, C_{CO}^B, C_{O_2}^B, T^B, C_{H_2O}^P, C_{CO}^P, T^P$). La mesure de la concentration en dioxygène $C_{O_2}^P$ est utilisée comme entrée du modèle pour reconstituer la fraction volatile des boues. Nous obtenons donc le sous-modèle suivant :

$$\begin{cases} \dot{x}_1 = f_1(x_1, u_1, w_1) & \text{où } x_1 = [C_{H_2O}^B, C_{CO}^B, C_{O_2}^B, T^B, C_{H_2O}^P, C_{CO}^P, T^P] \\ u_1 = [Q_{b,MS}^{in}, F_{am}^{in}, T_a^{in}, y_{O_2}] & \text{et } w_1 = [f_{H_2O}] \\ y_1 = [T^B, y_{CO}, T^P] \end{cases} \quad (4.12)$$

Où x_1 représente le vecteur d'état, u_1 le vecteur des entrées mesurées du modèle, w_1 le vecteur des entrées non mesurées et y_1 le vecteur des sorties mesurées du modèle. Pour ce sous-modèle 1, nous avons donc réduit le nombre de variables d'état x_1 à 7, les entrées inconnues w_1 à 1. Avec 3 variables mesurées, le nombre de variables non mesurées est donc de 5.

De plus, il ne reste qu'une seule réaction dynamique, qui est la réaction de combustion du monoxyde de carbone CO (R22).

On peut ensuite créer un modèle réduit, indépendant du premier sous-modèle, et ne comprenant que la partie azotée :

$$\begin{cases} \dot{x}_2 = f_2(x_2, u_2, w_2, y_1) & \text{où } x_2 = [C_{NH_3}^B, C_{NO}^B, C_{NH_3}^P, C_{NO}^P] \\ u_2 = [Q_{b,MS}^{in}, F_{am}^{in}, T_a^{in}, y_{O_2}, T^P, T^B] & \text{et } w_2 = [f_{H_2O}, f_N] \\ y_2 = [y_{NO}] \end{cases} \quad (4.13)$$

Où x_2 représente le vecteur d'état, u_2 le vecteur des entrées mesurées du modèle, w_2 le vecteur des entrées non mesurées et y_2 le vecteur des sorties mesurées du modèle. Pour le sous-modèle 2, nous avons donc réduit le nombre de variables d'état x_2 à 4, les entrées inconnues w_2 à 2. Avec 1 variable mesurée, le nombre de variables non mesurées est donc de 5.

De plus, il reste deux réactions: la réaction R1 de réduction de NO par NH_3 et la réaction R2 de formation de NO par NH_3 .

Les sous-modèles x_1 et x_2 peuvent être simulés indépendamment. L'ensemble $[x_1, x_2]$ conduit au modèle complet de simulation.

4.2.2. Sous modèle de combustion

La structure du sous modèle de combustion est présentée sur la figure 4.4. On peut voir que le nombre de variables d'état est fortement réduit.

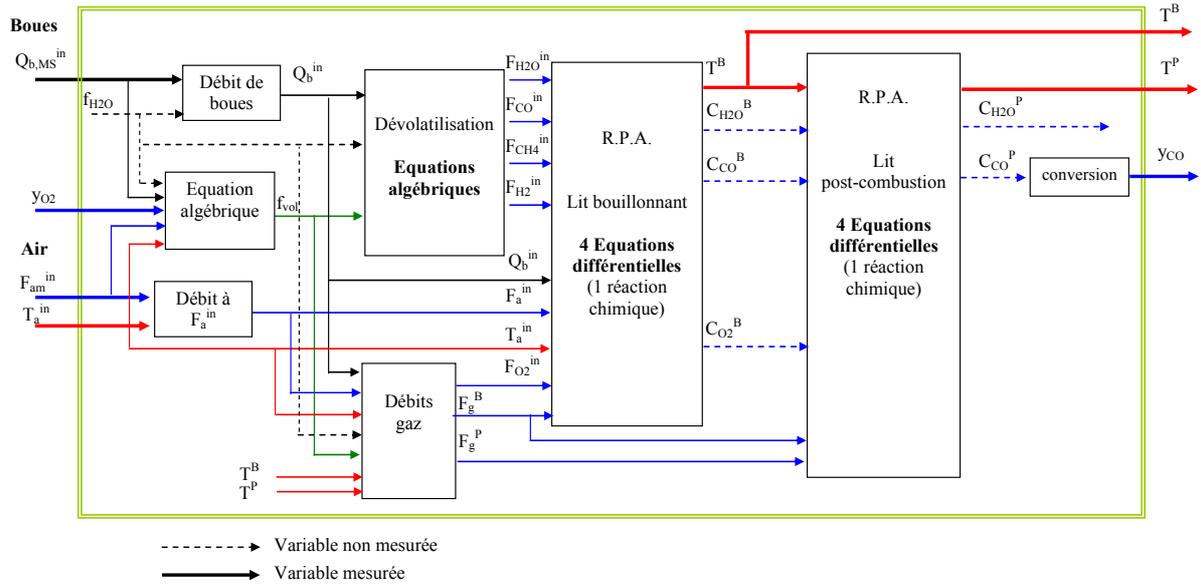


Figure 4.4. Structure du sous modèle de combustion

Les équations du sous modèle de combustion sont les suivantes :

$$\begin{pmatrix} \frac{dC_{H_2O}^B}{dt} \\ \frac{dC_{CO}^B}{dt} \\ \frac{dC_{O_2}^B}{dt} \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} F_{H_2O}^in \\ F_{CO}^in \\ F_{O_2}^in \end{bmatrix} / V_B - \begin{pmatrix} C_{H_2O}^B \\ C_{CO}^B \\ C_{O_2}^B \end{pmatrix} \times \frac{F_g^B}{V^B} + \begin{pmatrix} \phi_{H_2O}^B \\ \phi_{CO}^B \\ \phi_{O_2}^B \end{pmatrix} \quad (4.14)$$

$$\begin{aligned} c_{ps} m_s^B \frac{dT^B}{dt} = & (c_{pa} F_a^in \rho_a(T_a^in) T_a^in + c_{pb} Q_b^in T_b^in - c_{pg} \rho_g(T^B) F_g^B T^B - c_{p,cendres} Q_b^in (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol}) T^B) \\ & - (F_{H_2O}^in L_{H_2O}) - (r_{22}^B \Delta H_{R22} V^B + F_{CH_4}^in \Delta H_{R23} + F_{H_2}^in \Delta H_{R24}) \end{aligned} \quad (4.15)$$

$$\begin{pmatrix} \frac{dC_{H_2O}^P}{dt} \\ \frac{dC_{CO}^P}{dt} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{H_2O}^B F_g^B - C_{H_2O}^P F_g^P \\ C_{CO}^B F_g^B - C_{CO}^P F_g^P \end{pmatrix} / V^P + \begin{pmatrix} \varphi_{H_2O}^P \\ \varphi_{CO}^P \end{pmatrix} \quad (4.16)$$

$$c_{pg} m_g^P \frac{dT^P}{dt} = \left(c_{pg} \rho_{g(T^B)} F_g^B T^B - c_{pg} \rho_{g(T^P)} F_g^P T^P \right) - \left(r_{22}^P \Delta H_{R22} V^P \right) \quad (4.17)$$

Avec

$$\begin{pmatrix} \varphi_{H_2O}^B \\ \varphi_{CO}^B \\ \varphi_{O_2}^B \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ -1 \\ -0.5 \end{bmatrix} \times r_{22}^B + \begin{pmatrix} F_{H_2}^{in} + 2F_{CH_4}^{in} \\ F_{CH_4}^{in} \\ -0.5F_{H_2}^{in} - 1.5F_{CH_4}^{in} \end{pmatrix} / V_B \quad (4.18)$$

$$\begin{pmatrix} \varphi_{H_2O}^P \\ \varphi_{CO}^P \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ -1 \end{bmatrix} \times r_{22}^P \quad (4.19)$$

$$r_{22}^B = k_{22}^B (C_{CO}^B) (C_{H_2O}^B)^{0.5} (C_{O_2}^B)^{0.5} \quad (4.20)$$

$$r_{22}^P = k_{22}^P (C_{CO}^P) (C_{H_2O}^P)^{0.5} (C_{O_2}^P)^{0.5} \quad (4.21)$$

$$\begin{bmatrix} F_{H_2O}^{in} \\ F_{CO}^{in} \\ F_{CH_4}^{in} \\ F_{H_2}^{in} \\ F_{O_2}^{in} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} Q_b^{in} f_{H_2O} / M_{H_2O} \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_{CO} / M_{CO} \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_{CH_4} / M_{CH_4} \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_{H_2} / M_{H_2} \\ 0,232 F_a^{in} \rho_a(T_a^{in}) / M_{O_2} \end{bmatrix} \quad (4.22)$$

$$F_g^B = \frac{Q_b^{in} (1 - (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol})) + F_a^{in} \rho_a(T_a^{in})}{\rho_{g(T^B)}} \quad (4.23)$$

$$F_g^P = \frac{Q_b^{in} (1 - (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol})) + F_a^{in} \rho_a(T_a^{in})}{\rho_{g(T^P)}} \quad (4.24)$$

D'après le chapitre 3, les paramètres inconnus sont :

- Les paramètres cinétiques : k_{22}^B et k_{22}^P .
- La composition des boues : f_{H_2O} .
- La répartition des composés volatils issus de la dévolatilisation (f_{CO} , f_{CH_4} , f_{H_2}).

f_{vol} est reconstruit par l'équation 4.11.

4.2.3. Sous modèle des NOx

La structure de sous modèle des NOx est présentée dans la figure 4.5.

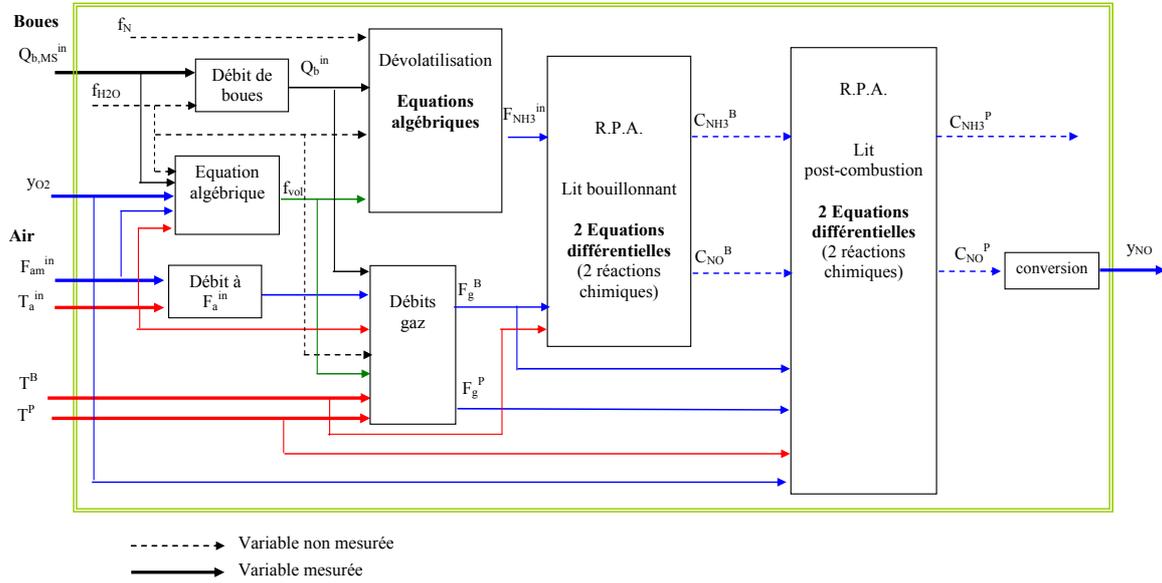


Figure 4.5. Structure du sous modèle des NOx.

Les équations de sous modèle des NOx sont les suivantes :

$$\begin{pmatrix} \frac{dC_{NH_3}^B}{dt} \\ \frac{dC_{NO}^B}{dt} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} F_{NH_3}^{in} \\ 0 \end{pmatrix} / V_B - \begin{pmatrix} C_{NH_3}^B \\ C_{NO}^B \end{pmatrix} \times \frac{F_g^B}{V^B} + \begin{pmatrix} \varphi_{NH_3}^B \\ \varphi_{NO}^B \end{pmatrix} \quad (4.25)$$

$$\begin{pmatrix} \frac{dC_{NH_3}^P}{dt} \\ \frac{dC_{NO}^P}{dt} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{NH_3}^B F_g^B - C_{NH_3}^P F_g^P \\ C_{NO}^B F_g^B - C_{NO}^P F_g^P \end{pmatrix} / V^P + \begin{pmatrix} \varphi_{NH_3}^P \\ \varphi_{NO}^P \end{pmatrix} \quad (4.26)$$

Avec

$$\begin{pmatrix} \varphi_{NH_3}^B \\ \varphi_{NO}^B \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} -1 & -1 \\ -1 & 1 \end{bmatrix} \times \begin{pmatrix} r_1^B \\ r_2^B \end{pmatrix} \quad (4.27)$$

$$\begin{pmatrix} \varphi_{NH_3}^P \\ \varphi_{NO}^P \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} -1 & -1 \\ -1 & 1 \end{bmatrix} \times \begin{pmatrix} r_1^P \\ r_2^P \end{pmatrix} \quad (4.28)$$

$$\begin{pmatrix} r_1^B \\ r_2^B \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} k_1^B & (C_{NH_3}^B)^{0.5} (C_{NO}^B)^{0.5} (C_{O_2}^B)^{0.5} \\ k_2^B & (C_{NH_3}^B) & (C_{O_2}^B) \end{pmatrix} \quad (4.29)$$

$$\begin{pmatrix} r_1^P \\ r_2^P \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} k_1^P & (C_{NH_3}^P)^{0.5} (C_{NO}^P)^{0.5} (C_{O_2}^P)^{0.5} \\ k_2^P & (C_{NH_3}^P) & (C_{O_2}^P) \end{pmatrix} \quad (4.30)$$

$$F_{NH_3}^{in} = Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_N / M_N \quad (4.31)$$

$$F_g^B = \frac{Q_b^{in} (1 - (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol})) + F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})}}{\rho_{g(T^B)}} \quad (4.32)$$

$$F_g^P = \frac{Q_b^{in} (1 - (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol})) + F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})}}{\rho_{g(T^P)}} \quad (4.33)$$

D'après le chapitre 3, les paramètres inconnus sont :

- Les paramètres cinétiques : k_1^B , k_1^P , k_2^B et k_2^P .
- La composition des boues : f_{H_2O} , f_N .

f_{vol} est reconstruit par l'équation 4.11.

4.3. Considérations sur les mesures

4.3.1. Les mesures pour l'identification des paramètres du modèle

Nous disposons de trois fichiers de deux jours (8h-56h) qui sont présentés de manière brute en Annexe C : fichier 1-figure C.2 ; fichier 2-figure C.3 ; fichier 3-figure C.4. Le fichier 1 présente un évènement de type impulsif, une injection manuelle de matières « graisses », qui est un déchet solide issu du traitement de l'eau (dégraissage), entraînant de fortes fluctuations des données. C'est le fichier de mesures le plus complet, car c'est le seul où les mesures de monoxyde de carbone sont exploitables. Le deuxième jeu de mesures présente beaucoup moins de variations : les débits de boues et d'air injectés sont constants. Toutefois le four ne fonctionne pas de manière idéale : à la fin du fichier la température du four diminue de manière régulière (40h-50h), les émissions des oxydes d'azote sont beaucoup plus importantes que dans le fichier 1. Enfin le troisième fichier de mesures correspond à un fonctionnement stable, mais avec un dépassement des concentrations en oxydes d'azote important.

Bien que l'évènement du fichier 1 soit probablement spécifique à la station considérée, il présente un grand intérêt au niveau de la dynamique induite par cet évènement : l'ensemble

des variables d'états fluctuent brutalement. Ce fichier permettra donc d'identifier les paramètres du modèle. Les deux autres fichiers permettront de valider le modèle avec des jeux de mesures n'ayant pas servi à l'identification.

Les mesures du fichier 1 sont présentées sur la figure 4.6. Les mesures sont prises sur 48h, de 8h du matin à 8h le surlendemain matin (soit à 56h). Les données ont été filtrées avec un filtre du premier ordre. L'injection manuelle de graisses est visible aux alentours de la 30^{ième} heure.

Sur la figure 4.6, nous pouvons d'abord voir les entrées du four : le débit de boues (Q_{bMS}^{in}), le débit d'air (F_{am}^{in}) et la température de l'air entrant (T_a^{in}). Le débit de boues est globalement stable autour de 900 kg.h^{-1} environ. Le débit d'air connaît un pic positif important, ce qui est dû à la boucle de régulation de l'oxygène. Le réacteur a eu besoin d'un apport important en oxygène. La température de l'air montre un pic négatif : l'air est réchauffé à l'aide d'un échangeur de chaleur avec les gaz sortants du four (Annexe C). L'important débit d'air demandé empêche l'échange de chaleur d'être suffisant et fait baisser la température de l'air. L'oxygène (y_{O_2}), variable régulée présente une assez grande stabilité autour du point de consigne de 4,5%.

Sur les courbes des températures, nous pouvons voir un grand pic, provoqué par la combustion des matières grasses introduites. Cette fluctuation se retrouve sur les oxydes d'azote. Le pic se trouve bien en dessous de la norme française actuelle autorisée (400 mg.Nm^{-3}). Cependant la norme européenne est de 200 mg.Nm^{-3} et on peut supposer que cette norme sera encore abaissée dans le futur. Enfin ce fichier est le seul pour lequel nous disposons de mesures de CO, qui sont à de très faibles concentrations.

En comparant les oxydes d'azote avec les deux températures mesurées (T^P et T^B), les oxydes d'azote présentent le même comportement dynamique que celles-ci. On vérifie ainsi l'importance de la température du lit dans la formation des oxydes d'azote.

Afin d'initialiser le modèle, nous avons choisi d'utiliser une partie des mesures pour définir un point de fonctionnement statique du modèle. Le jeu de mesure retenu pour déterminer le point de fonctionnement est constitué d'une plage de fonctionnement stable, soit des mesures prises entre 15h et 20h. Pour les mesures dynamiques utilisées pour l'identification des paramètres, on prend l'intervalle 25h-35h. Ces plages sont représentées par des rectangles sur la figure 4.6.

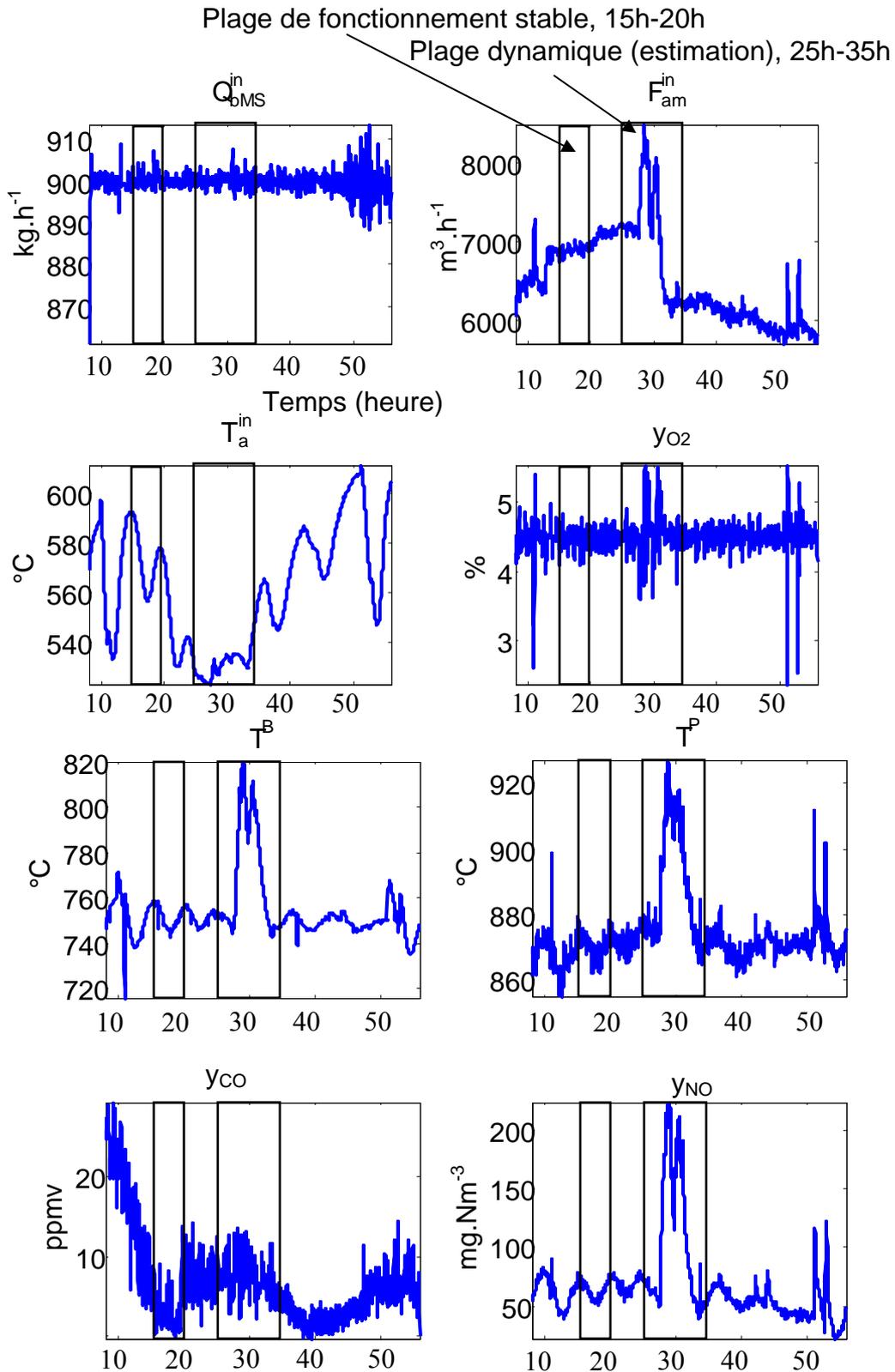


Figure 4.6. Les mesures du fichier 1.

4.3.2. Point de fonctionnement du four

La période de fonctionnement stabilisée sélectionnée dans le fichier 1 s'étend sur une plage de 5 heures (15 à 20h), soit 300 points. Ces mesures sont présentées sur la figure 4.7. On voit que cette séquence ne correspond pas exactement à un fonctionnement statique, mais plutôt à une plage de fonctionnement stable. En effet, il n'y a pas à proprement parler de point de fonctionnement stationnaire, dans la mesure où les entrées du four fluctuent en permanence. La température du lit bouillonnant semble suivre les fluctuations de la température de l'air injecté. Cette tendance montre que la quantité d'air entrant dans le four est suffisamment importante pour influencer la température du lit bouillonnant. La température du lit post-combustion semble suivre les mêmes tendances que la température du lit bouillonnant. La température du lit bouillonnant reste plus stable, probablement en raison de la présence du sable dans le lit fluidisé, ce qui maintient une inertie thermique. La concentration en monoxyde de carbone est très faible en raison de la régulation d'oxygène. Enfin les oxydes d'azote montrent une dynamique fluctuant rapidement et montrant que la température du lit bouillonnant influence probablement ce composé.

Le point de fonctionnement a été calculé comme la valeur moyenne des grandeurs mesurées. Ces valeurs serviront de point de référence statique afin d'initialiser le modèle autour d'un point de fonctionnement. La valeur moyenne obtenue est représentée avec des tirets rouges.

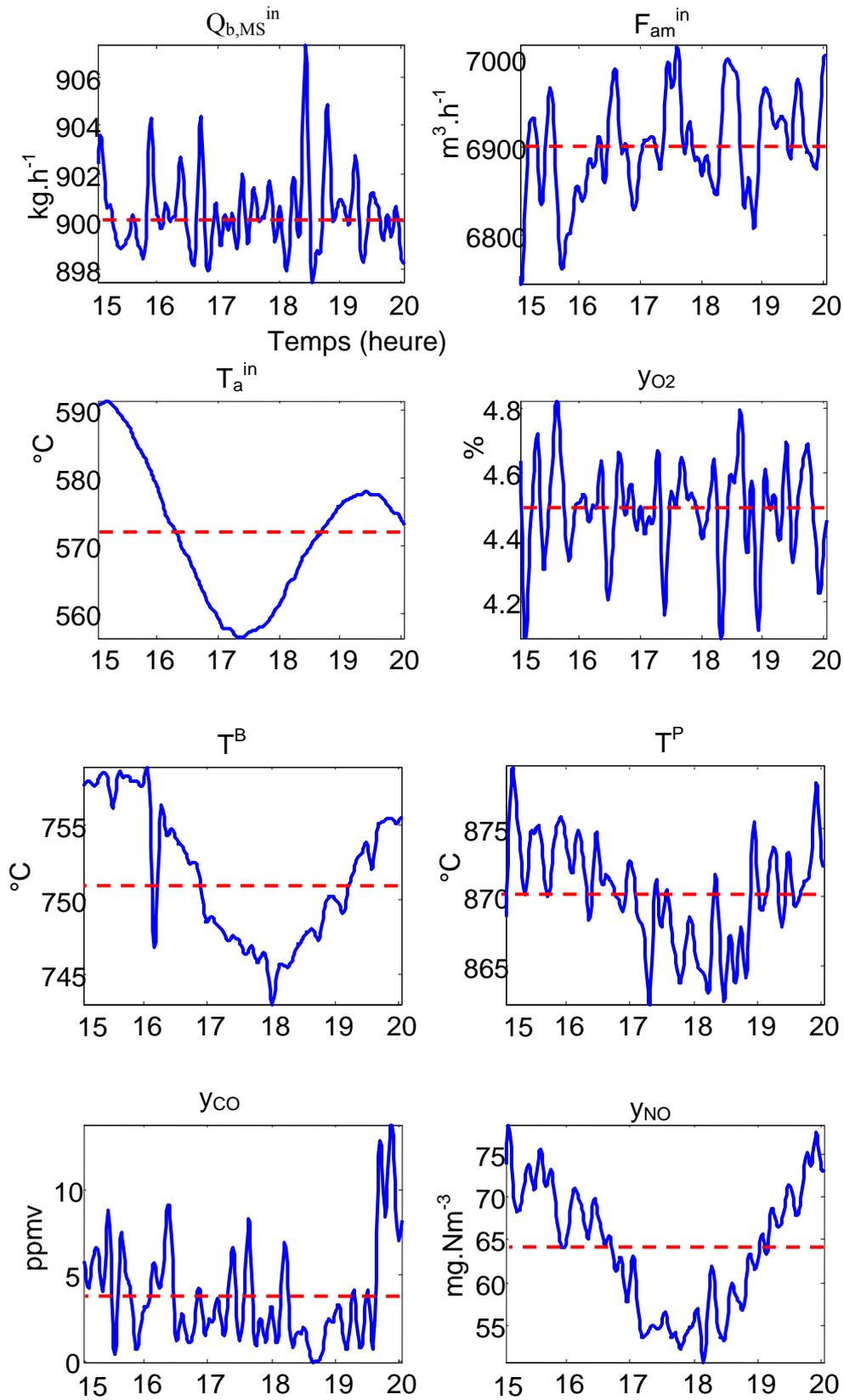


Figure 4.7. Point de fonctionnement - Fichier 1 (15h-20h).

La même démarche a été appliquée pour les autres fichiers: pour chacun des fichiers, nous avons sélectionné une séquence de fonctionnement qui nous paraissait stable. Nous avons calculé pour la séquence une valeur moyenne des variables. Le tableau 4.1 rassemble les valeurs moyennes de fonctionnement stable pour les trois fichiers. Les figures concernant les points de fonctionnement des fichiers 2 et 3 sont présentées dans l'Annexe D.

	$Q_{b,MS}^{in}$ (kg.h ⁻¹)	F_{am}^{in} (m ³ .h ⁻¹)	T_a^{in} (°C)	T^B (°C)	T^P (°C)	y_{O_2} (%)	y_{CO} (ppmv)	y_{NO} (mg.Nm ⁻³)
Fichier 1 (15h-20h)	900	6900	572	752	870	4,5	4	64
Fichier 2 (15h-28h)	800	6098	516	773	848	4,5	-	275
Fichier 3 (42h-50h)	900	6794	538	825	926	4,5	-	524

Tableau 4.1. Valeurs moyenne de fonctionnement stable pour les trois fichiers.

Les valeurs des entrées ($Q_{b,MS}^{in}$, F_{am}^{in} et T_a^{in}) et des températures (T^B et T^P) varient de moins de 5% autour de leur valeur moyenne. La concentration en oxydes d'azote varie au maximum de 25%. Celle du monoxyde de carbone est trop faible pour être significative.

Le point de fonctionnement est différent pour chaque fichier.

- Le débit de boues (en MS) est de 900 kg/h dans les fichiers 1 et 3, mais de 800 kg/h dans le fichier 2. Si on se réfère à la valeur de référence de production de 19 tonnes de boues par jour, on obtient un débit horaire de 800 kg/heure. Le débit de 900 kg/h correspond à un fonctionnement nominal, qui permet de compenser les arrêts éventuels du four.
- Les débits d'airs (entre 6000 et 7000 m³/h) permettent d'assurer la combustion complète.
- La température de l'air injecté varie entre 520 et 570 °C
- La température du lit bouillonnant du fichier 3 est la plus élevée comparée aux autres fichiers. Il en est de même pour la température du lit post-combustion.
- La concentration en oxygène est réglée à 4,5%
- La valeur de la concentration en monoxyde de carbone n'apparaît que pour le fichier 1.
- Les émissions des oxydes d'azote sont très faibles pour le fichier 1. Par contre pour les deux autres fichiers, et particulièrement le 3^{ème}, les émissions en oxydes d'azote sont importantes.

4.4. Estimation des paramètres du sous-modèle de combustion

4.4.1. Initialisation du sous modèle de combustion

Le tableau 4.2 présente les entrées mesurées et la composition de boues utilisées pour initialiser le modèle de combustion. Les entrées mesurées sont les valeurs moyennes de fonctionnement stable du fichier 1 (15h-20h), présentées au tableau 4.1. L'humidité des boues (f_{H_2O}) est prise à la valeur industrielle de 76%.

Entrées	$Q_{b,MS}^{in}$ (kg.h ⁻¹)	F_{am}^{in} (m ³ .h ⁻¹)	T_a^{in} (°C)	y_{O_2} (%)
	900	6900	572	4,5
Composition de boues	f_{H_2O} (%)			
	76			

Tableau 4.2. Les entrées pour l'initialisation du modèle de combustion.

Avec ces données, le modèle de combustion est simulé en prenant les paramètres aux valeurs de référence du chapitre 3 (paragraphe 3.6). Les valeurs initiales (valeurs d'initialisation du modèle) et finales (stabilisation du modèle) des deux températures et de la concentration en monoxyde de carbone sont présentées sur le tableau 4.3 :

	T^B (°C)	T^P (°C)	y_{CO} (ppmv)
Valeurs initiales	752	870	4
Valeurs finales	841	848	2

Tableau 4.3. Valeurs stabilisées des sorties du modèle.

Sur le tableau 4.3, on voit que les deux températures sont au final identiques. La température du lit bouillonnant est très élevée, la plupart du monoxyde de carbone est brûlé dans le lit bouillonnant. La concentration en monoxyde de carbone est très faible (quelques ppmv). Une des raisons de ce phénomène est probablement l'hypothèse d'absence de particules de carbone fixe, qui ralentissent la combustion. Ce point initial n'est pas acceptable pour utiliser le modèle pour une étude de sensibilité paramétrique. La température de post-combustion étant correcte, nous proposons d'agir seulement sur la température du lit bouillonnant. Pour cela, nous allons découpler les cinétiques de réaction de la température.

Les paramètres à identifier sont ceux de la cinétique $k_{22}(T)$:

$$k_{22}(T) = k_{022} \exp\left(-\frac{E_{a22}}{R} \frac{1}{T}\right), \text{ par la littérature, } k_{022}=3,25 \cdot 10^7 \text{ E}_{a22}/R=15098.$$

Nous proposons de considérer les deux cinétiques constantes pour chaque température: k_{22}^B et k_{22}^P . Ceci ne change pas le nombre de paramètres à identifier.

A la température $T^B=752^\circ\text{C}$, on a : $k_{22}^B=13 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.

A la température $T^P=870^\circ\text{C}$, on a $k_{22}^P=60 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.

D'après les résultats, seule la valeur de k_{22}^B doit être ajustée. Elle doit être diminuée, afin que la combustion ne soit pas complète dans le lit bouillonnant. Par essai-erreur, on trouve la valeur:

$$k_{22}^B=1,3 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}.$$

Nous proposons à partir de ce point stable d'effectuer une étude de sensibilité des paramètres cinétiques, afin de déterminer les paramètres les plus importants.

4.4.2. Sensibilité des températures et du monoxyde de carbone aux variations des paramètres

A partir des valeurs calées au point de fonctionnement, on va étudier la sensibilité des sorties par rapport aux variations de paramètres. Cette étude permettra d'établir les paramètres les plus importants à estimer.

A partir de la liste des paramètres mal connus du sous modèle de combustion, on sélectionne :

- La répartition des composés volatils issus de la dévolatilisation (f_{CO} , f_{CH_4} , f_{H_2}) reste identique à la littérature (Chapitre 3). Les paramètres de cette répartition ne sont pas globaux.
- La composition des boues ($f_{\text{H}_2\text{O}}$), est un paramètre global
- Les paramètres cinétiques : k_{22}^B et k_{22}^P , sont considérés constants.

Les paramètres sélectionnés sont au nombre de 3 :

- $k_{22}^B=1,3 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.
- $k_{22}^P=60 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.
- $f_{\text{H}_2\text{O}}=76\%$.

On fait varier les valeurs de ces paramètres dans un premier test de $\pm 5\%$ autour de leur valeur nominale (figure 4.8).

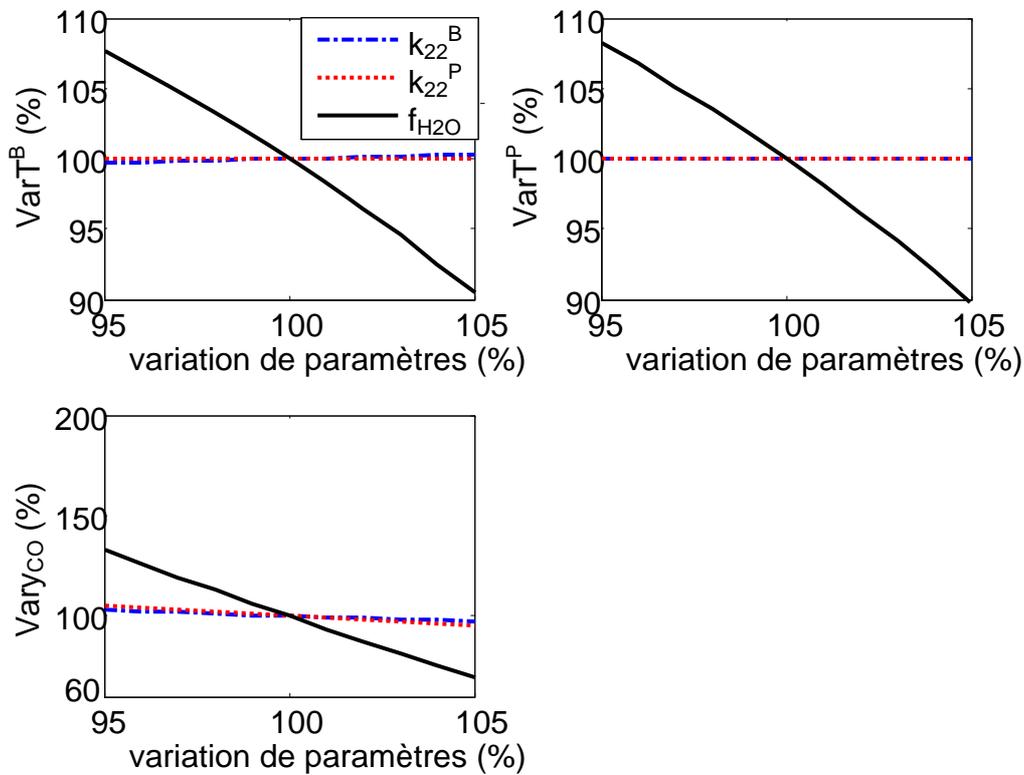


Figure 4.8. Sensibilités de sorties du sous modèle de combustion par rapport aux paramètres f_{H_2O} , k_{22}^B et k_{22}^P .

Les courbes de la figure 4.8 montrent que le paramètre le plus important est l'humidité des boues f_{H_2O} . Avec cette plage de variation, on ne peut pas distinguer les sensibilités des autres paramètres. Aussi on procède à un autre test en faisant varier les paramètres k_{22}^B et k_{22}^P de $\pm 50\%$. Les résultats sont présentés sur la figure 4.9.

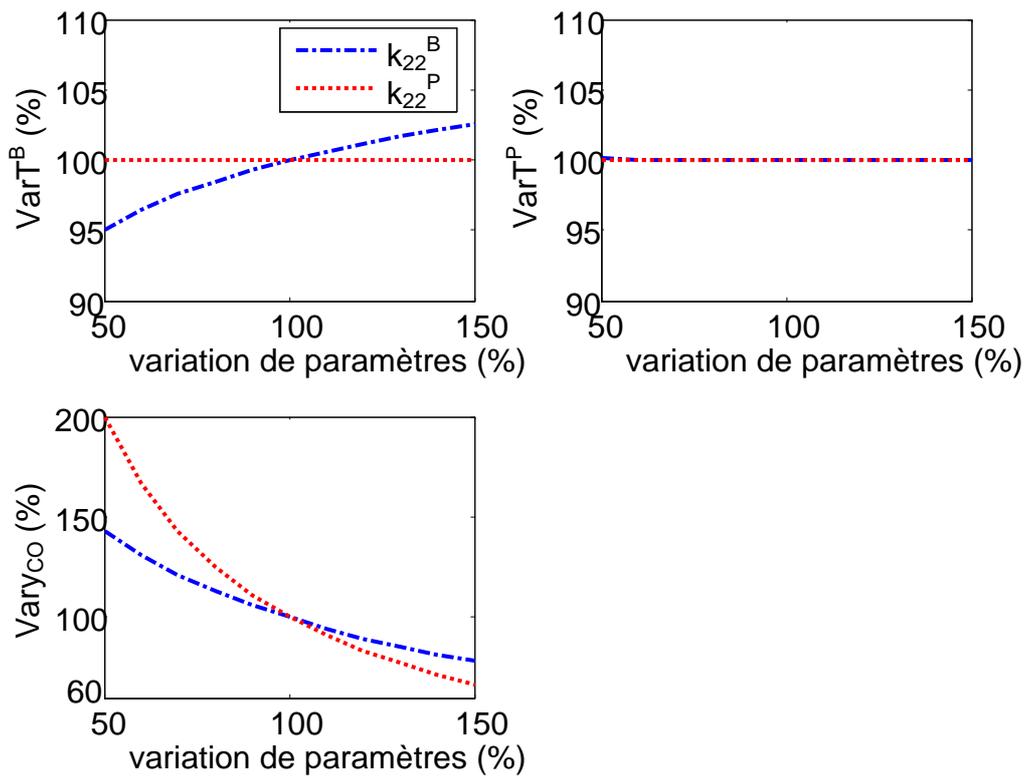


Figure 4.9. Sensibilités de sorties du sous modèle de combustion par rapport aux paramètres k_{22}^B et k_{22}^P .

La température du lit bouillonnant n'est pas du tout sensible aux variations du paramètre k_{22}^P , ce qui est logique. Les variations du paramètre k_{22}^B induisent une variation d'environ 720°C à 770°C. 720°C étant la température minimale du four avant injection de fuel, on peut considérer que la température du lit bouillonnant est sensible aux variations de ce paramètre. La température du lit post-combustion n'est sensible à aucun des paramètres k_{22}^B et k_{22}^P . Enfin, la concentration en monoxyde de carbone y_{CO} est sensible aux deux paramètres, avec une légère prédominance pour k_{22}^P .

En conclusion, le paramètre représentant l'humidité de boues f_{H_2O} doit être estimé en premier, et sera la valeur la plus précise. Ensuite les valeurs des paramètres cinétiques pourront être estimées. Nous pouvons aussi attribuer une grandeur mesurée à chaque paramètre : la température du lit bouillonnant permet d'estimer k_{22}^B , la concentration en monoxyde de carbone permet d'estimer k_{22}^P , enfin la température du lit post-combustion permettra d'estimer f_{H_2O} . La mesure de monoxyde de carbone étant assez bruitée, et les valeurs faibles amenant à une faible précision de la dynamique, la valeur de k_{22}^P sera la moins précise.

4.4.3. Estimation dynamique des paramètres du modèle de combustion

Estimation des paramètres k_{22}^B , k_{22}^P et f_{H_2O}

Les mesures dans l'intervalle 25h-35h du fichier 1 sont utilisées pour l'identification des paramètres. Les entrées mesurées qui seront utilisées comme entrées du modèle sont présentées dans la figure 4.10. Le débit de boues (en MS) est stable autour de 900 kg/h environ. Le débit et la température de l'air fluctuent de manière importante. La concentration en oxygène étant régulée, elle présente une assez grande stabilité autour du point de consigne de 4,5%. Cette mesure permet de reconstruire la composition f_{vol} .

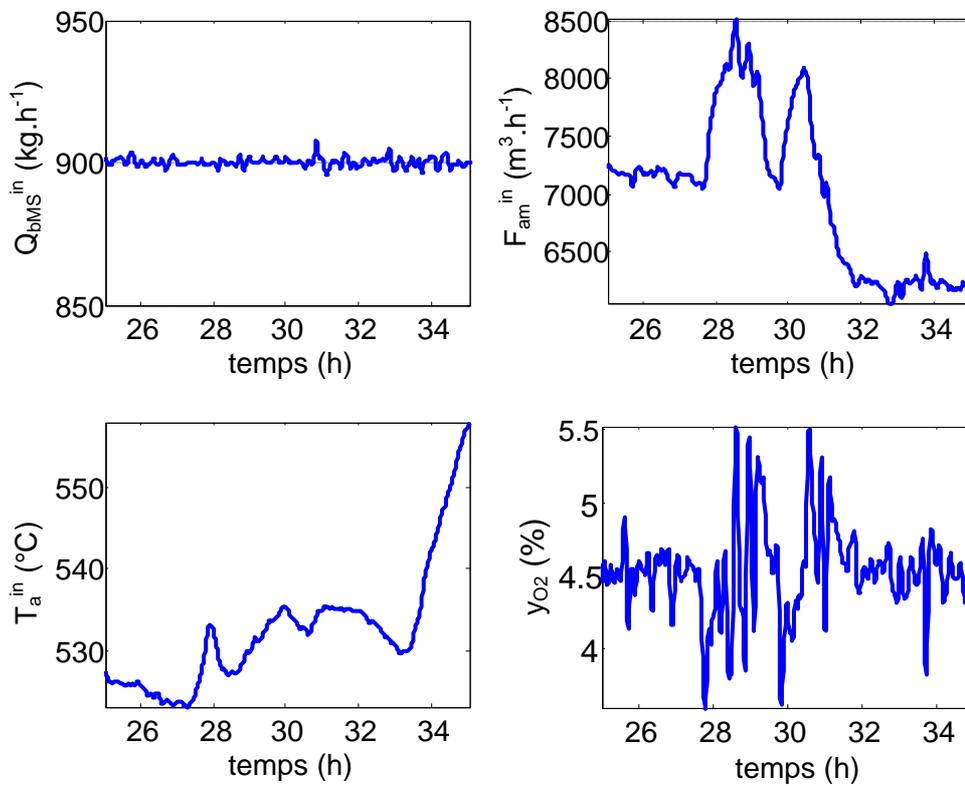


Figure 4.10. Les mesures du fichier 1 : entrées du modèle.

Les paramètres à identifier sont f_{H_2O} , k_{22}^B , k_{22}^P . On utilise un critère quadratique, donnant la différence entre les mesures et les sorties du modèle:

$$J = \sum_{i=1}^n (T_{mes}^B(i) - T_{sim}^B(i))^2 + \sum_{i=1}^n (T_{mes}^P(i) - T_{sim}^P(i))^2 + \sum_{i=1}^n (y_{CO,mes}(i) - y_{CO,sim}(i))^2 \quad (4.34)$$

Où : J est le critère à minimiser, l'indice « mes » représente les mesures, l'indice « sim » représente les résultats obtenus par simulation du modèle. n est le nombre de points de

mesures. La variable y_{CO} a une valeur très faible par rapport aux températures. On ne met pas de poids dans le critère, car cette mesure est très bruitée et peu fiable.

L'algorithme utilisé est l'algorithme de Gauss-Newton, avec le Hessien calculé numériquement (Matlab®). L'inconvénient de l'algorithme de Gauss-Newton, est qu'on trouve un minimum local, et donc le jeu de paramètres doit être initialisé à des valeurs proches du minimum du critère. Afin de vérifier que les résultats obtenus correspondent aux meilleurs possibles, l'algorithme du simplex a aussi été utilisé, malgré un temps de simulation très long.

Valeurs des paramètres identifiés :

- $k_{22}^B = 1,4 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.
- $k_{22}^P = 260 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.
- $f_{H_2O} = 78,28\%$.

Après identification, on compare les sorties du modèle : température du lit bouillonnant, température du lit post-combustion, et concentration de CO, avec les mesures (figure 4.11).

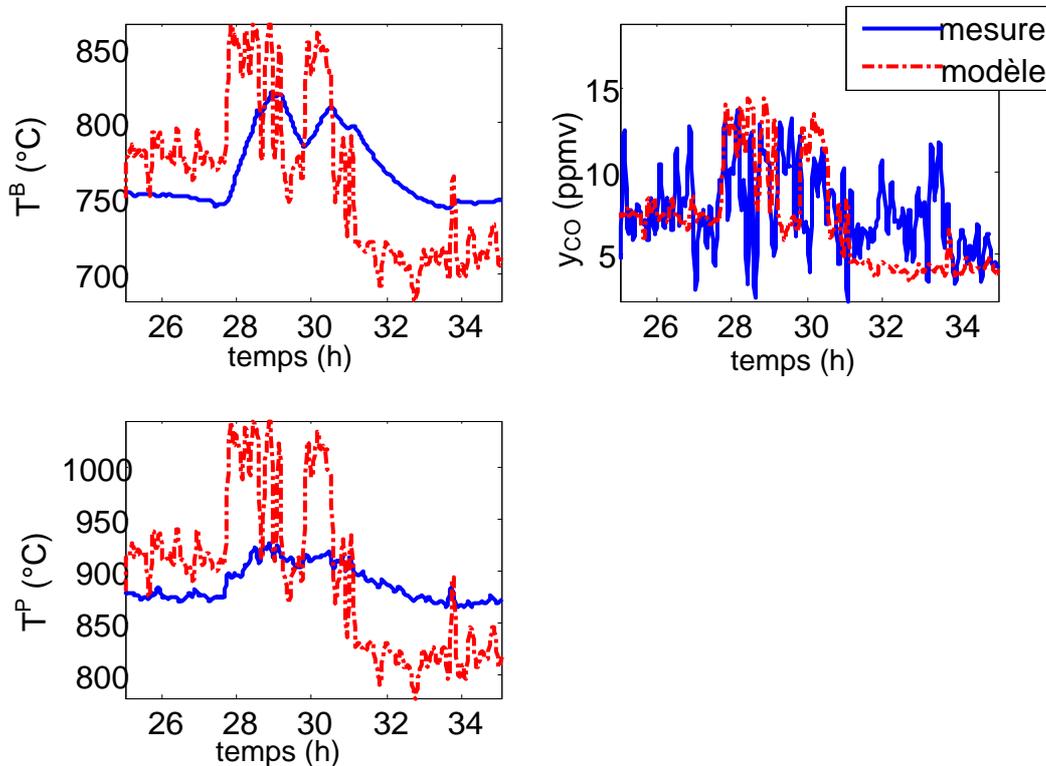


Figure 4.11. Comparaison des sorties T^B , T^P et y_{CO} des mesures et du modèle de combustion avec les paramètres identifiés k_{22}^B , k_{22}^P et f_{H_2O} .

On voit sur la figure 4.11, que la dynamique des températures n'est pas correctement représentée. Il semble que le modèle varie selon le débit d'air entrant et la fraction volatile (f_{vol}) reconstruite reproduit le bruit lié à la mesure d'oxygène (y_{O_2}). A partir des résultats de l'étude de sensibilité paramétrique, on peut en déduire que le paramètre de l'humidité de boues f_{H_2O} est en cause, et que la difficulté se situe au niveau du modèle. En effet, l'humidité des boues est supposée être constante, mais elle est variable et nous ne disposons pas de mesures. De plus, tous les phénomènes ne sont pas représentés dans le modèle, et f_{H_2O} est un paramètre intervenant dans la plupart des équations du modèle. On peut donc considérer qu'il joue le rôle de paramètre d'adaptation du modèle aux mesures. On propose donc de le reconstruire en utilisant la température de post-combustion du four.

Reconstruction de la teneur en humidité des boues f_{H_2O}

On suppose une nouvelle fois que le four est en équilibre statique global. Afin d'établir le bilan statique, on additionne les équations de bilan thermique du lit bouillonnant (l'équation 3.39) et du lit post-combustion (l'équation 3.43) et on annule que les dérivées. Le four est supposé adiabatique, donc la chaleur perdue par les parois du four est négligée. On a alors :

$$\begin{aligned} & \left(c_{pa} F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})} T_a^{in} + c_{pb} Q_b^{in} T_b^{in} - c_{pg} \rho_{g(T^p)} F_g^p T^p - c_{p,cendres} Q_b^{in} (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol}) T^B \right) \\ & - \left(F_{H_2O}^{in} L_{H_2O} \right) - \sum_j r_j^B V^B \Delta H_{R_j} - \sum_j r_j^P V^P \Delta H_{R_j} = 0 \end{aligned} \quad (4.35)$$

En considérant une combustion complète, la quantité de chaleur produite par l'ensemble des cinétiques de réaction dans les deux lits est remplacée par un terme global de quantité de chaleur de consommation des matières volatiles des boues :

$$\sum_j r_j^B V^B \Delta H_{R_j} + \sum_j r_j^P V^P \Delta H_{R_j} = Q_{b,MS}^{in} f_{vol} \Delta H_{vol} \quad (4.36)$$

Où : ΔH_{vol} est l'enthalpie de combustion des composés volatils, $J.kg^{-1}$.

Avec la répartition des gaz volatils, on a :

$$\Delta H_{vol} = \left(\frac{f_{CO}}{M_{CO}} + \frac{f_{CH_4}}{M_{CH_4}} \right) \times \Delta H_{R22} + \frac{f_{H_2}}{M_{H_2}} \times \Delta H_{R23} + \frac{f_{CH_4}}{M_{CH_4}} \times \Delta H_{R24} = -23,882 \text{ MJ/kg} \quad (4.37)$$

Avec l'équation 4.36, l'équation 4.35 s'écrit alors :

$$\begin{aligned} & \left(c_{pa} F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})} T_a^{in} + c_{pb} Q_b^{in} T_b^{in} - c_{pg} \rho_{g(T^p)} F_g^p T^p - c_{p,cendres} Q_b^{in} (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol}) T^B \right) \\ & - \left(F_{H_2O}^{in} L_{H_2O} \right) - Q_{b,MS}^{in} f_{vol} \Delta H_{vol} = 0 \end{aligned} \quad (4.38)$$

En résolvant le système des équations algébriques (4.38) et (4.11 - bilan statique d'oxygène), les deux compositions f_{H_2O} et f_{vol} peuvent être reconstruites en utilisant les mesures de y_{O_2} et de T^P . Cette dernière équation remplace l'équation de bilan de la température de post-combustion. La mesure de T^P devient une entrée du modèle. Le sous-modèle de combustion s'écrit maintenant:

$$\begin{cases} \dot{x}_1 = f_1(x_1, u_1, w_1) & \text{où } x_1 = [C_{H_2O}^B, C_{CO}^B, C_{O_2}^B, T^B, C_{H_2O}^P, C_{CO}^P] \\ u_1 = [Q_{b,MS}^{in}, F_{am}^{in}, T_a^{in}, y_{O_2}, T^P] \\ y_1 = [T^B, y_{CO}] \end{cases} \quad (4.39)$$

Estimation des paramètres k_{22}^B et k_{22}^P

En utilisant la nouvelle équation de bilan statique, pour reconstruire f_{H_2O} , on estime maintenant les paramètres k_{22}^B et k_{22}^P . Le nouveau critère quadratique à minimiser est écrit ci-dessous :

$$J = \sum_{i=1}^n (T_{mes}^B(i) - T_{sim}^B(i))^2 + \sum_{i=1}^n (y_{CO,mes}(i) - y_{CO,sim}(i))^2 \quad (4.40)$$

Avec les valeurs identifiées des paramètres, les sorties du modèle (température du lit bouillonnant et concentration de CO), sont comparées avec les valeurs mesurées dans la figure 4.12.

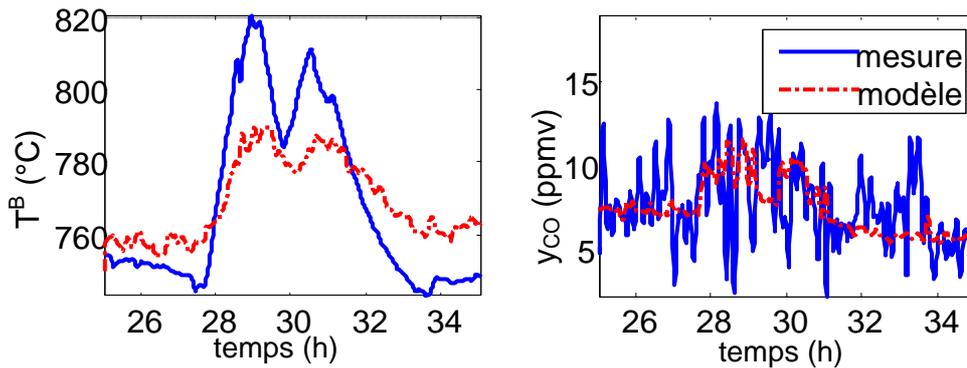


Figure 4.12. Comparaison entre les mesures et le modèle de combustion des variables T^B et y_{CO} avec les paramètres identifiés k_{22}^B , k_{22}^P .

Sur la figure 4.12, on voit que globalement les sorties du modèle sont cohérentes avec celles des mesures, et on peut dire que les paramètres sont bien identifiés. Par contre on

remarque que l'amplitude du pic de température T^B du modèle est plus faible. Ceci est dû au fait que k_{22}^B a été rendu constant alors qu'il varie en fonction de la température.

Paramètre	Valeur initiale	Valeur estimée
k_{22}^B	13	1.4
k_{22}^P	60	258

Tableau 4.4. Valeurs initiales et estimées des paramètres k_{22}^B et k_{22}^P du sous modèle de combustion.

Le tableau 4.4 permet de comparer les valeurs identifiées aux valeurs initiales de référence. Les valeurs initiales correspondent aux températures du point de fonctionnement de référence ($T^B=752^\circ\text{C}$, $T^P=870^\circ\text{C}$). On voit que le paramètre cinétique dans le lit bouillonnant est grandement diminué, mais qu'il est au contraire grandement augmenté dans le lit post-combustion. Ces variations sont probablement dues aux simplifications très importantes des réactions, qui en éliminant l'effet des particules dans le lit bouillonnant, rendent les réactions beaucoup plus rapides qu'en réel, d'où une importante diminution de la cinétique dans le lit bouillonnant.

Estimation des paramètres k_{022}^B , E_{a22}^B/R , k_{022}^P et E_{a22}^P/R

Pour améliorer le résultat précédent, on propose de réintroduire la loi d'Arrhénius indépendamment pour ces deux cinétiques. Il y aura donc quatre paramètres à identifier: k_{022}^B , E_{a22}^B/R , k_{022}^P et E_{a22}^P/R . On initialise les valeurs au point de référence, et on minimise le critère quadratique.

Avec les valeurs identifiées des paramètres, les sorties du modèle (température du lit bouillonnant et concentration de CO), sont comparées avec les valeurs mesurées dans la figure 4.13.

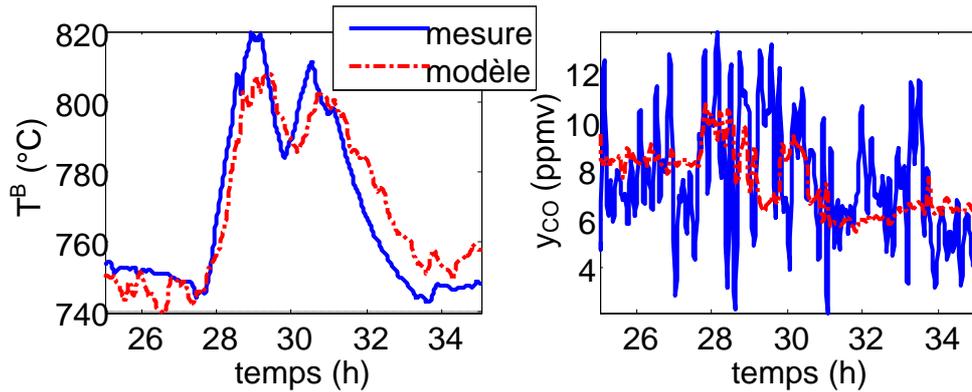


Figure 4.13. Comparaison entre les mesures et le modèle de combustion des variables T^B et y_{CO} en utilisant la loi d'Arrhénius.

Un tableau comparant les valeurs identifiées aux valeurs initiales de référence sont présentées dans le tableau 4.5. On voit que les valeurs sont très fortement diminuées. On vérifie qu'au point de fonctionnement statique ($T^B=752^\circ\text{C}$, $T^P=870^\circ\text{C}$), on retrouve les valeurs du paragraphe précédent. La différence de résultat est liée à la variation de la valeur des paramètres en fonction des températures du four.

Paramètre	Valeur de référence	Valeur estimée
k_{022}^B	$3,25 \cdot 10^7$	2211
E_{a22}^B/R	15098	7743
k_{022}^P	$3,25 \cdot 10^7$	3452
E_{a22}^P/R	15098	3001

Tableau 4.5. Valeurs initiales et estimées des paramètres en utilisant la loi d'Arrhénius.

On vérifie la cohérence du modèle en représentant les états internes dans le paragraphe suivant.

4.4.4. Représentation des états non mesurés du sous modèle de combustion

Sur la figure 4.14 sont représentés les autres états du modèle, ainsi que la composition des boues reconstituée. Les unités ont été volontairement maintenues en unités industrielles correspondant aux mesures afin d'en faciliter la lecture.

L'humidité (f_{H_2O}) et la teneur en composés volatils (f_{vol}) sont tout d'abord représentées. Nous pouvons voir le pic correspondant à l'injection de matières dans le four, qui est donc reconstitué. Nous pouvons aussi remarquer que la dynamique de f_{H_2O} est similaire à celle de f_{vol} , qui suggère une corrélation entre ces deux paramètres. Si la matière injectée est de composition similaire aux boues, alors cela correspondrait finalement à un pic de débit de boues.

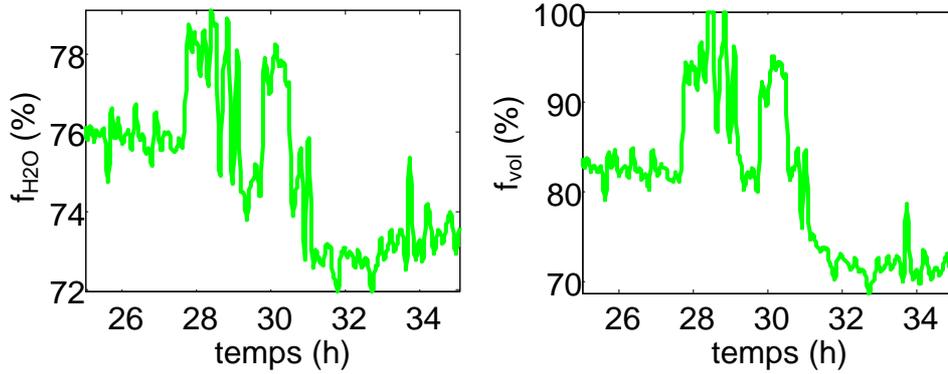
Les courbes suivantes montrent les variables d'état du lit bouillonnant:

- La teneur en vapeur d'eau du lit bouillonnant est aux alentours de 36%, avec une diminution pendant le pic d'injection, qui correspond à l'introduction d'une grande quantité d'air.
- La quantité de monoxyde de carbone est importante, puisque tout le carbone contenu dans les boues est transformé à ce niveau.
- Les pics d'oxygène correspondent à l'injection d'air

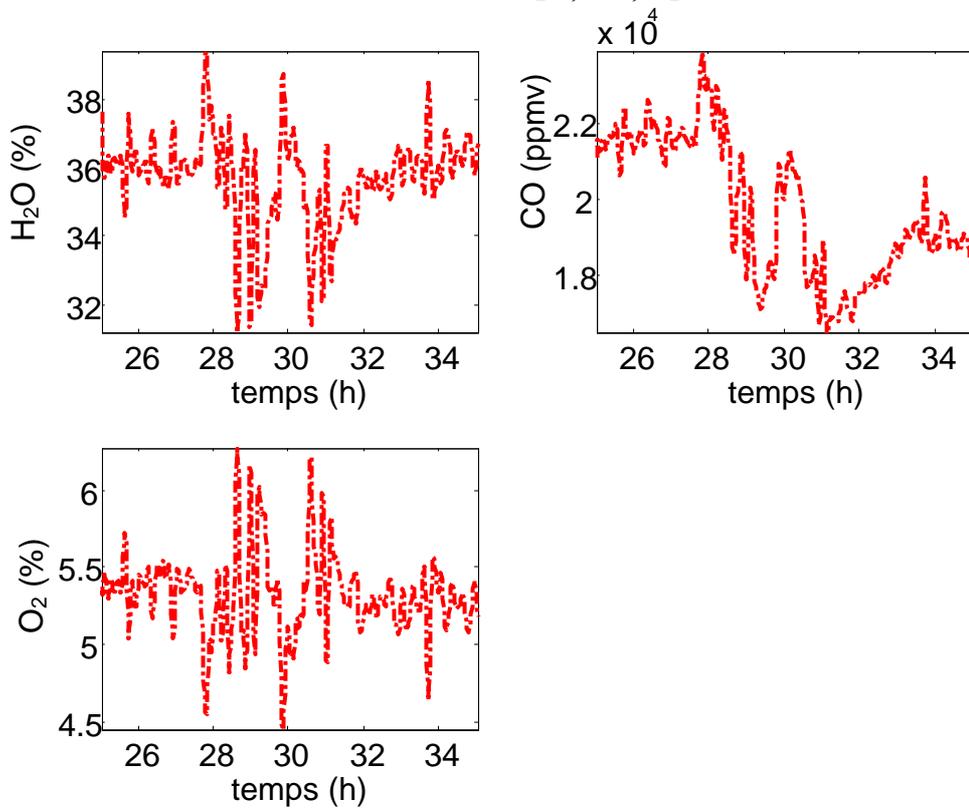
Enfin la dernière courbe correspond au lit post-combustion: l'humidité est similaire, ce qui suppose qu'elle est uniforme dans le four.

On peut considérer maintenant que les résultats sont suffisants pour procéder à la validation du modèle.

f_{H_2O} et f_{vol}



Modèle de combustion : en lit bouillonnant : H_2O , CO , O_2



Modèle de combustion : en lit post-combustion

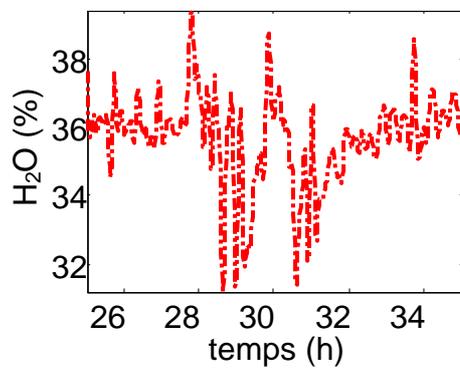


Figure 4.14. Les états non mesurés dans l'estimation de modèle de combustion.

4.5. Estimation des paramètres du sous-modèle des NOx

4.5.1. Initialisation du sous modèle des NOx

Le sous-modèle des NOx est repris du paragraphe 2, où la composition des boues (f_{vol} et $f_{\text{H}_2\text{O}}$) est reconstituée par le système d'équations statiques. Le sous-modèle s'écrit donc:

$$\begin{cases} \dot{x}_2 = f_2(x_2, u_2, w_2, y_1) & \text{où } x_2 = [C_{\text{NH}_3}^B, C_{\text{NO}}^B, C_{\text{NH}_3}^P, C_{\text{NO}}^P] \\ u_2 = [Q_{b,MS}^{\text{in}}, F_{\text{am}}^{\text{in}}, T_a^{\text{in}}, y_{\text{O}_2}, T^P, T^B] & \text{et } w_2 = [f_N] \\ y_2 = [y_{\text{NO}}] \end{cases} \quad (4.41)$$

Le point initial est le point de fonctionnement du fichier 1, repris sur le tableau 4.6 ci-dessous.

	$Q_{b,MS}^{\text{in}}$ (kg.h ⁻¹)	$F_{\text{am}}^{\text{in}}$ (m ³ .h ⁻¹)	T_a^{in} (°C)	T^B (°C)	T^P (°C)	y_{O_2} (%)	y_{NO} (mg.Nm ⁻³)
Fichier 1 (15h-20h)	900	6900	572	752	870	4,5	64

Tableau 4.6. Initialisation du modèle des NOx.

La valeur de la teneur en azote des boues (f_N) doit être fixée. Etant donné que les données du fichier 1 correspondent à une concentration faible de NO en sortie (64 mg.Nm⁻³), nous considérons que le cas correspondant à la littérature ($f_N=4,9\%$) est plus probablement le fichier 2 ($y_{\text{NO}}=314$ mg.Nm⁻³). En faisant un ratio, on trouve f_N proche de 1%. Nous utiliserons cette valeur pour l'identification des paramètres.

Avec ces données, le sous modèle de NOx est simulé en prenant les paramètres de référence du chapitre 3 (paragraphe 3.6). Le modèle se stabilise à $y_{\text{NO}}=1,4$ mg.Nm⁻³. Ce point initial est très faible et n'est pas acceptable pour utiliser le modèle pour une étude de sensibilité paramétrique.

Le sous-modèle des NOx possède deux réactions R1 et R2, ce qui donne 4 paramètres à identifier.

$$k_1(T) = k_{01} \exp\left(-\frac{E_{a1}}{R} \frac{1}{T}\right), \text{ par la littérature, } k_{01} = 1,07 \cdot 10^{12}, E_{a1}/R=29400.$$

A la température $T^B=752^\circ\text{C}$, on a $k_1^B=0.4 \text{ m}^{1.5} \cdot \text{mol}^{-0.5} \cdot \text{s}^{-1}$, à la température $T^P=870^\circ\text{C}$, on a $k_1^P=7,2 \text{ m}^{1.5} \cdot \text{mol}^{-0.5} \cdot \text{s}^{-1}$.

$$k_2(T) = k_{02} \exp\left(-\frac{E_{a2}}{R} \frac{1}{T}\right), \text{ par la littérature, } k_{02} = 2,73 \cdot 10^{14} \text{ et } E_{a2}/R=38160.$$

A la température $T^B=752^\circ\text{C}$, on a $k_2^B=0,02 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, à la température $T^P=870^\circ\text{C}$, on a $k_2^P=0,87 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.

Pour caler le modèle, on propose de rendre les cinétiques constantes. Etant donné que le modèle donne moins de NOx en sortie que les mesures, on diminue k_1 de la réaction R1, qui conduit à la réduction de NOx. On peut aussi éventuellement augmenter k_2 . Pour cela nous avons besoin de connaître les concentrations en NH_3 que nous donne le modèle:

$$\begin{aligned} C_{\text{NH}_3}^B &= 691 \text{ mg/Nm}^3. & C_{\text{NO}}^B &= 1,6 \text{ mg/Nm}^3. \\ C_{\text{NH}_3}^P &= 114 \text{ mg/Nm}^3. & C_{\text{NO}}^P &= 1,4 \text{ mg/Nm}^3. \end{aligned}$$

On voit que l'on a une quantité importante de NH_3 qui n'est pas transformée en NO. Aussi on peut augmenter la quantité de NO en augmentant la valeur des paramètres k_2^B et k_2^P .

Par essai-erreur on trouve:

$$k_2^B = 0,7 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \quad k_2^P = 30 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$$

Le point de stabilisation est alors:

$$\begin{aligned} C_{\text{NH}_3}^B &= 431 \text{ mg/Nm}^3. & C_{\text{NO}}^B &= 216 \text{ mg/Nm}^3. \\ C_{\text{NH}_3}^P &= 2 \text{ mg/Nm}^3. & C_{\text{NO}}^P &= 64 \text{ mg/Nm}^3. \end{aligned}$$

On voit le comportement de NH_3 : dans le lit bouillonnant, le phénomène prépondérant est la formation de NOx à partir des NH_3 issus de la dévolatilisation par la réaction R2. Dans le lit post-combustion, la réaction de réduction des NOx est la réaction la plus importante.

Le point stable est donc maintenant le point d'initialisation du sous modèle des NOx. Nous proposons à partir de ce point stable d'effectuer une étude de sensibilité des paramètres cinétiques, afin de déterminer les paramètres les plus importants.

4.5.2. Sensibilité des NOx et du NH₃ aux variations des paramètres cinétiques

A partir des valeurs calées au point de fonctionnement, on va étudier la sensibilité des sorties par rapport aux variations de paramètres. Cette étude permettra d'établir les paramètres les plus importants à estimer.

Les paramètres sélectionnés sont au nombre de 5 :

- $k_1^B = 0,4 \text{ m}^{1.5} \cdot \text{mol}^{-0.5} \cdot \text{s}^{-1}$
- $k_1^P = 7,2 \text{ m}^{1.5} \cdot \text{mol}^{-0.5} \cdot \text{s}^{-1}$
- $k_2^B = 0,7 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$
- $k_2^P = 30 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$
- $f_N = 1\%$.

On fait varier les valeurs de ces paramètres de $\pm 50\%$ autour de leur valeur nominale. Les variations relatives des sorties du modèle autour du point de fonctionnement sont présentées sur la figure 4.15.

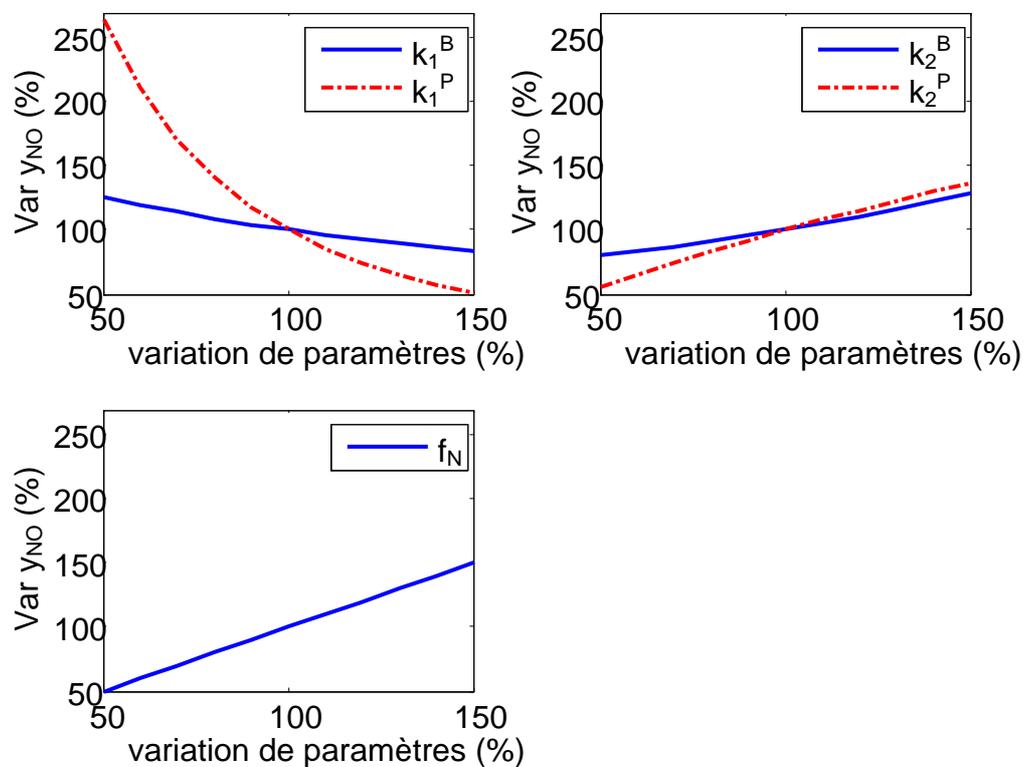


Figure 4.15. Sensibilité de sorties du modèle des NOx par rapport aux paramètres à identifier.

Sur la première figure, y_{NO} diminue quand k_1^B et k_1^P augmentent car ils accélèrent la réaction de réduction de NOx par R1. Sur la deuxième figure, y_{NO} augmente quand k_2^B et k_2^P augmentent car il s'agit de la réaction de formation des NOx. Enfin la sensibilité de y_{NO} par rapport à la fraction d'azote des boues est linéaire. Si on classe les paramètres par ordre d'importance décroissante :

$$k_1^P > f_N \approx k_2^P > k_1^B \approx k_2^B$$

En conclusion, les paramètres k_2^P , k_1^B et k_2^B ne sont pas des paramètres auquel les NOx sont sensibles. Aussi on conserve les valeurs de la littérature. Afin de conserver la sensibilité par rapport aux températures, on maintient la loi d'Arrhénius. Le paramètre f_N est maintenu à 1%. Pour les fichiers de validation, sa valeur sera calculée à priori en utilisant le fait que sa quantité est proportionnelle au y_{NO} du point de fonctionnement. Enfin, le paramètre le plus sensible étant k_1^P , on suppose k_1^P constant et on identifie sa valeur par minimisation d'un critère d'erreur quadratique.

4.5.3. Estimation des paramètres cinétiques à partir de la mesure des NOx

Le sous modèle des NOx est maintenant simulé avec les mesures du fichier 1 présentées au paragraphe précédent. Les paramètres sont initialisés aux valeurs de référence. On utilise un critère quadratique, donnant la différence entre les mesures et les sorties du modèle:

$$J = \sum_{i=1}^n (y_{NO,mes}(i) - y_{NO,sim}(i))^2 \quad (4.42)$$

Où : J est le critère à minimiser, $y_{NO,mes}$ est la mesure de la concentration en NOx, $y_{NO,sim}$ est la concentration en NOx du modèle, n est le nombre de points mesurés.

Après identification, le modèle est simulé et la sortie y_{NO} est comparée avec les mesures (figure 4.16).

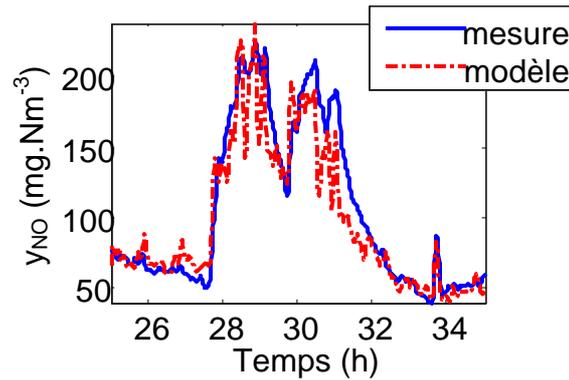


Figure 4.16. Comparaison de y_{NO} mesuré avec la sortie du modèle.

On voit que la courbe de la sortie du modèle est très proche de celle mesurée. La valeur du paramètre identifié est présentée dans le tableau 4.7. La valeur initiale de référence à 870°C est 7,2. La valeur estimée est fortement diminuée, ce qui affaiblit la réduction des NOx par NH₃. La différence entre les deux valeurs est acceptable, au vu des valeurs de k_1^B et k_2^B dans le lit bouillonnant. Le scénario actuel est que tout se passe dans le lit post-combustion, cela est peu probable. Une explication peut être que la teneur en azote des boues ($f_N=1\%$) ainsi que les cinétiques du lit bouillonnant k_1^B et k_2^B sont sous-estimées.

Paramètre	Valeur de référence	Valeur estimée
k_1^P	7,2	1

Tableau 4.7. Valeurs initiales et estimées des paramètres cinétiques du modèle des NOx.

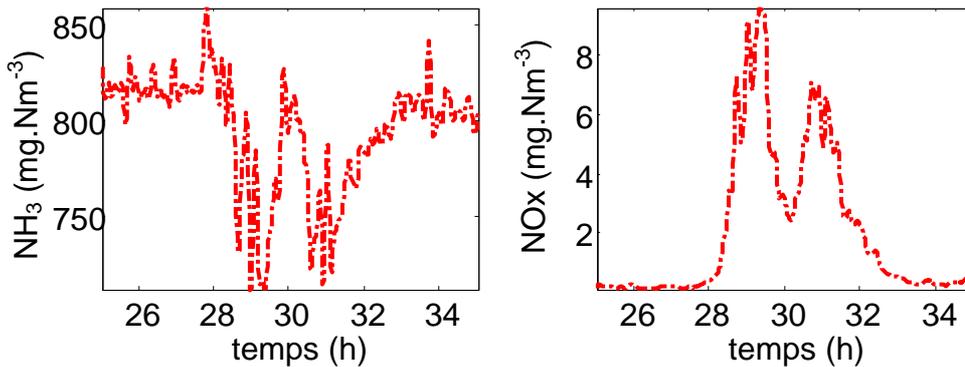
4.5.4. Représentation des états non mesurés du sous modèle des NOx

Sur la figure 4.17 sont représentés les autres états du modèle. Les unités ont été volontairement maintenues en unités industrielles correspondant aux mesures afin d'en faciliter la lecture.

Les premières figures montrent les variables d'état du lit bouillonnant. Les variations de NH₃ et NOx sont inversées (l'une diminue lorsque l'autre augmente, et inversement). Ces variations correspondent à la réaction R2 de formation de NOx à partir du NH₃. La quantité de NH₃ formée à l'issue de la dévolatilisation est très importante, et conduit à très peu de formation de NOx, ce qui correspond aux cinétiques très faibles de R2.

La dernière figure montre que la concentration de NH_3 en sortie reste non négligeable, bien que beaucoup moins importante. En effet la température plus élevée du four a conduit à former encore plus de NO_x , la valeur estimée de cinétique de réaction de réduction de NO_x a été réduite afin de permettre d'atteindre les valeurs mesurées de NO_x .

Sur le modèle de NO_x , en lit bouillonnant :



Sur le modèle de NO_x , en lit post-combustion :

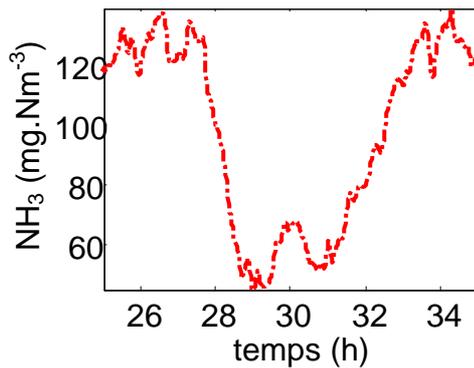


Figure 4.17. Etats non mesurés du sous modèle des NO_x

4.6. Validation du modèle

Les paramètres du modèle sont maintenant calés, et on utilise les fichiers 2 et 3 n'ayant pas servi à l'identification pour valider le modèle. Sur fichiers 2 et 3, on choisit deux plages de mesures pour la validation. Les mesures complètes sont disponibles en Annexe C. On utilise le modèle complet :

$$\begin{cases}
 \dot{x} = f(x, u, w) \\
 \text{où} \\
 x = [C_{H_2O}^B, C_{CO}^B, C_{NH_3}^B, C_{NO}^B, C_{O_2}^B, T^B, C_{H_2O}^P, C_{CO}^P, C_{NH_3}^P, C_{NO}^P] \\
 u = [Q_{b,MS}^{in}, F_{am}^{in}, T_a^{in}, y_{O_2}, T^P] \\
 w = [f_{CO}, f_{H_2}, f_N] \\
 y = [T^B, y_{NO}]
 \end{cases} \quad (4.43)$$

Où x représente le vecteur d'état, u le vecteur des entrées mesurées du modèle, w le vecteur des entrées non mesurées et y le vecteur des sorties mesurées du modèle.

Ces deux fichiers ayant une valeur de concentration en monoxyde de carbone nulle, on ne pourra donc pas valider ces mesures. De plus, T^P et y_{O_2} sont utilisés pour la reconstruction de perturbations f_{H_2O} et f_{vol} , par conséquent seules les mesures T^B et y_{NO} peuvent être validées.

4.6.1. Validation du modèle à l'aide des mesures du fichier 2

On choisit dans le fichier 2 l'intervalle de temps de 40h-50h pendant lequel la température du four et les NOx diminuent de manière régulière. Le fichier 2 correspond à un problème du séchage des boues en amont du four. Avant cet intervalle de temps (Annexe C – figure C.3, intervalle 32h-34h), on voit un arrêt d'injection des boues, puis une reprise avec apport de fuel. On peut supposer que l'humidité des boues est très importante ou bien que les matières volatiles sont faibles après le démarrage de la nouvelle recyclage de boues.

Les entrées du modèle sont présentées figure 4.18. Le débit de boues en MS est stable autour de 800 kg.h^{-1} environ. Le débit de l'air et la température de l'air ne subissent pas de grandes fluctuations. La température du lit post-combustion présente une pente légèrement décroissante et la courbe est très bruitée. La concentration en oxygène est régulée à 4,5%.

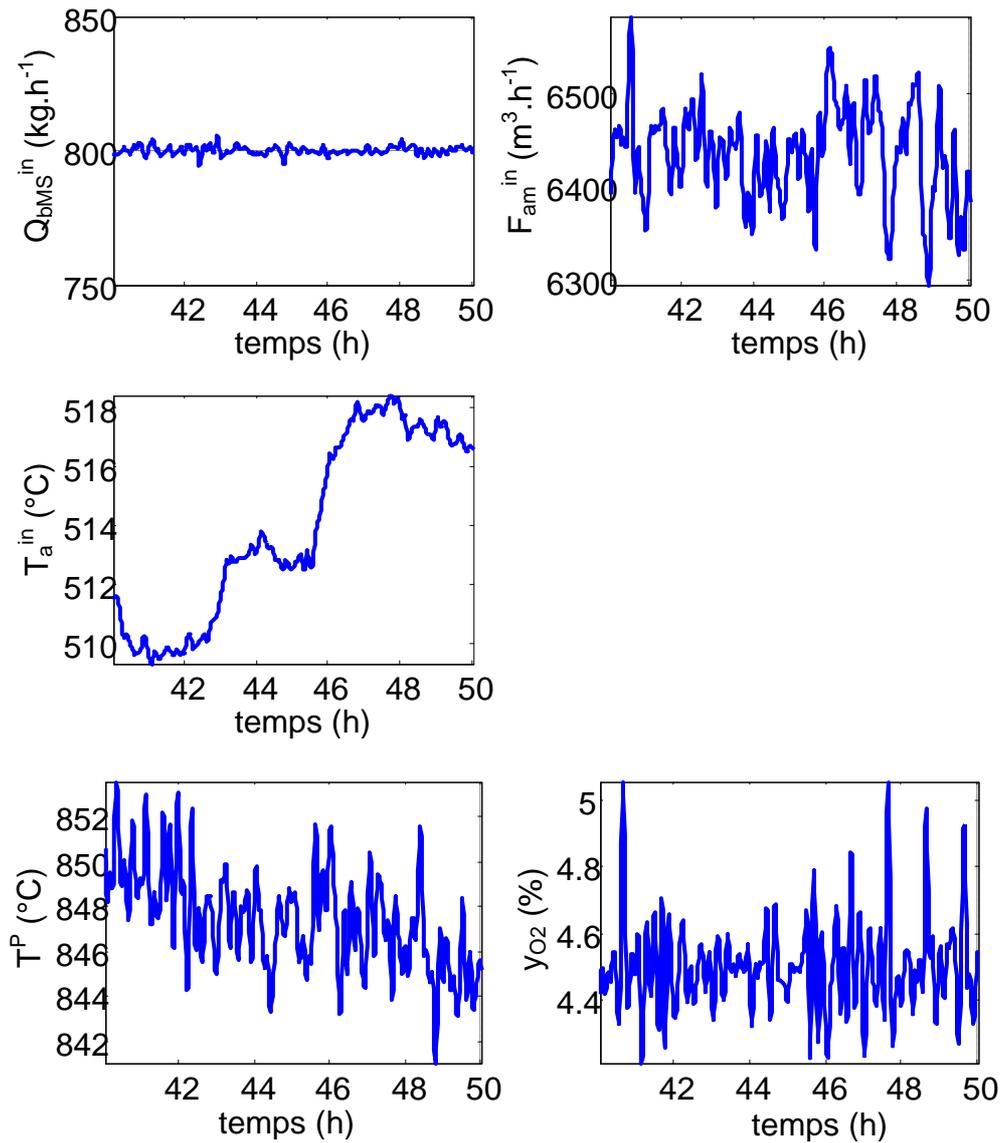


Figure 4.18. Les entrées du modèle (fichier 2).

Avec les valeurs des paramètres identifiés aux paragraphes précédents, le modèle est simulé. La teneur en azote est supposée de 1%, la répartition des composées issus de la dévolatilisation est laissée aux valeurs de la littérature. Sur la figure 4.19 on compare les sorties du modèle avec les mesures de température (T^B) et de concentration en NO_x (y_{NO}). On voit que ces deux variables du modèle présentent toutes des valeurs moins élevées que celles des mesures. Le modèle n'est pas validé.

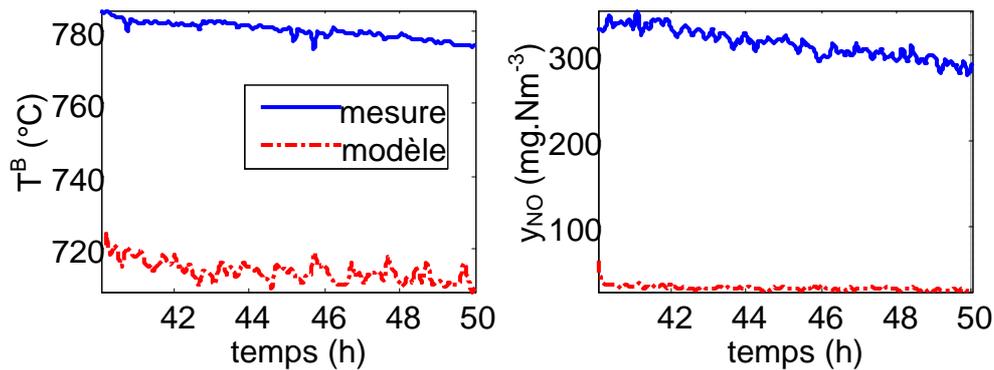


Figure 4.19. Validation du modèle à l'aide des mesures de validation dans le fichier 2.

On cherche maintenant à comprendre si un nouveau calage de la composition permet d'atteindre les mesures, on trouve par essai-erreur :

- Pour T^B , on modifie la répartition des composés volatils : $f_{CO}=23,43\%$, $f_{H_2}=9\%$ (dans le fichier 1 : $f_{CO}=43,43\%$, $f_{H_2}=3,2\%$).
- Pour les NO_x , on modifie l'azote des boues : $f_N=13\%$ (dans le fichier 1, $f_N=1\%$).

Le modèle est à nouveau simulé et les sorties sont comparées avec les mesures dans la figure 4.20 :

- La température du lit bouillonnant est cohérente avec les mesures. La tendance dynamique de la pente est bien reproduite, bien que la sortie du modèle ait un peu plus de fluctuations.
- La concentration en NO_x (y_{NO}) du modèle est cohérente avec les mesures. Toutefois les fluctuations sont importantes, ce qui correspond au bruit de la mesure de la température de post-combustion T^P .

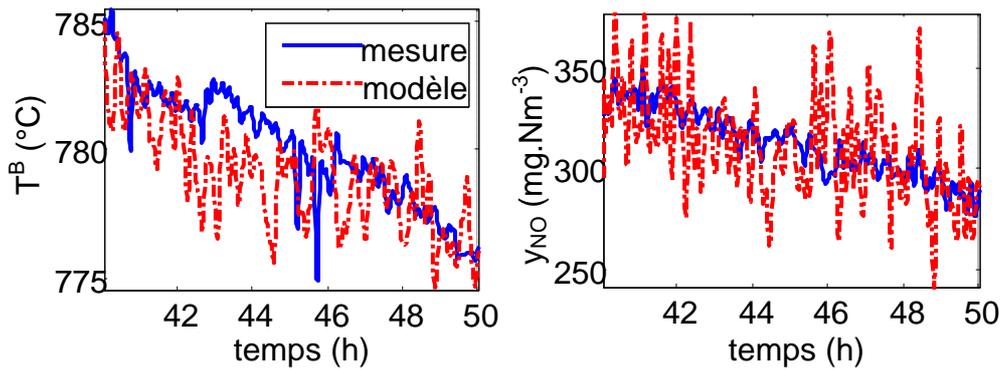


Figure 4.20. Validation du modèle à l'aide des mesures du fichier 2 après avoir ajusté la composition des boues.

Nous pouvons considérer que le modèle est validé pour ce fichier.

Examinons maintenant les états non mesurés du modèle (figure 4.21) :

L'humidité (f_{H_2O}) et la teneur en composés volatils (f_{vol}) sont tout d'abord représentées. Nous pouvons voir qu'ils se maintiennent aux alentours de $f_{H_2O} = 76,7\%$ et $f_{vol} = 83\%$ environ. Ils ne reproduisent pas la légère pente de la température de post-combustion, ce qui confirme l'hypothèse que c'est la répartition de la composition des boues en carbone, hydrogène et azote qui est en cause.

Les courbes suivantes montrent les variables d'état du lit bouillonnant:

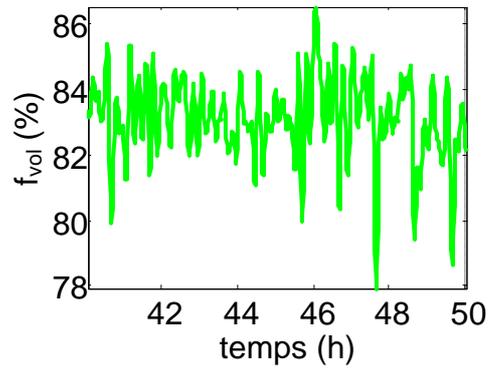
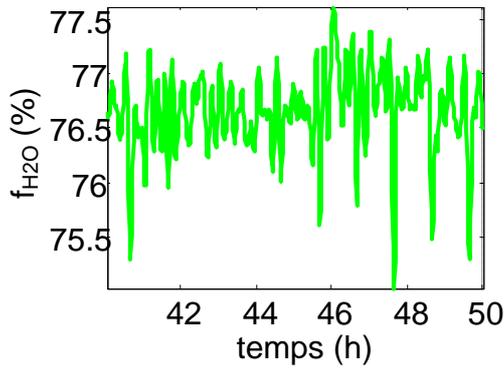
- La teneur en vapeur d'eau du lit bouillonnant est un peu plus élevée que dans le fichier 1: aux alentours de 40% au lieu de 36%.
- La quantité de monoxyde de carbone est importante, mais moins cependant que dans le fichier 1. Ceci confirme le fait que d'avoir augmenté cette fraction après la dévolatilisation est réaliste.
- L'oxygène est stable, à une teneur plus élevée que dans le lit post-combustion.
- La teneur en NH_3 est énorme, dix fois plus élevée que dans le fichier 1, ce qui correspond à l'augmentation de la teneur en azote dans les boues proposée. La valeur semble globalement constante.
- Les NO_x sont aussi en quantité beaucoup plus importante, la courbe présente par contre une pente correspondant à la baisse de la température de post-combustion.

Dans le lit post-combustion, on a:

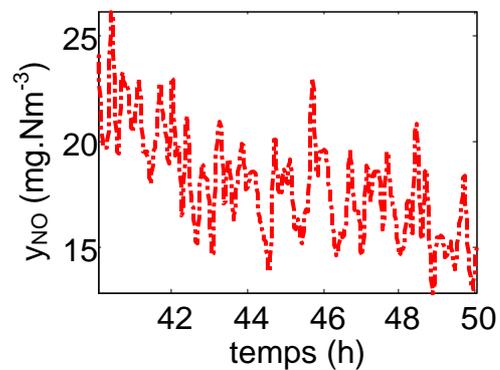
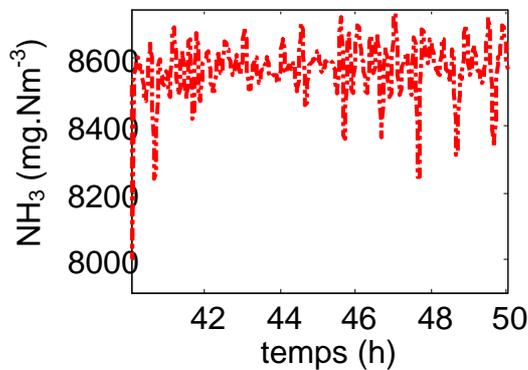
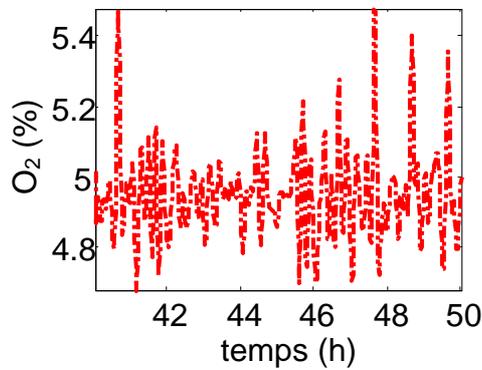
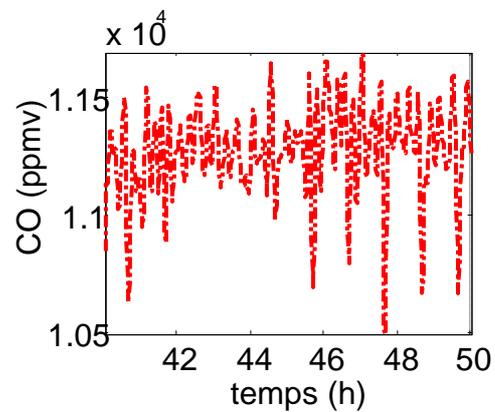
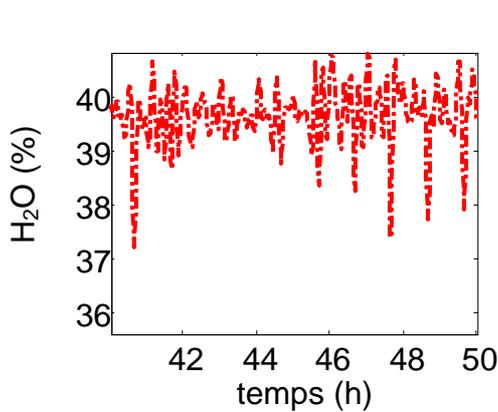
- La teneur en vapeur d'eau est identique à celle du lit bouillonnant
- La concentration en monoxyde de carbone est très faible, et est aux alentours de 4,5 ppmv.

- La quantité de NH_3 est encore assez importante. La pente est inverse de celle des NO_x , montrant l'activité de la réaction R2 de formation des NO_x .

Etats non mesurés dans la validation du fichier 2 (répartition de composés volatiles et f_N sont déjà fixés) :



Lit bouillonnant :



En lit post-combustion :

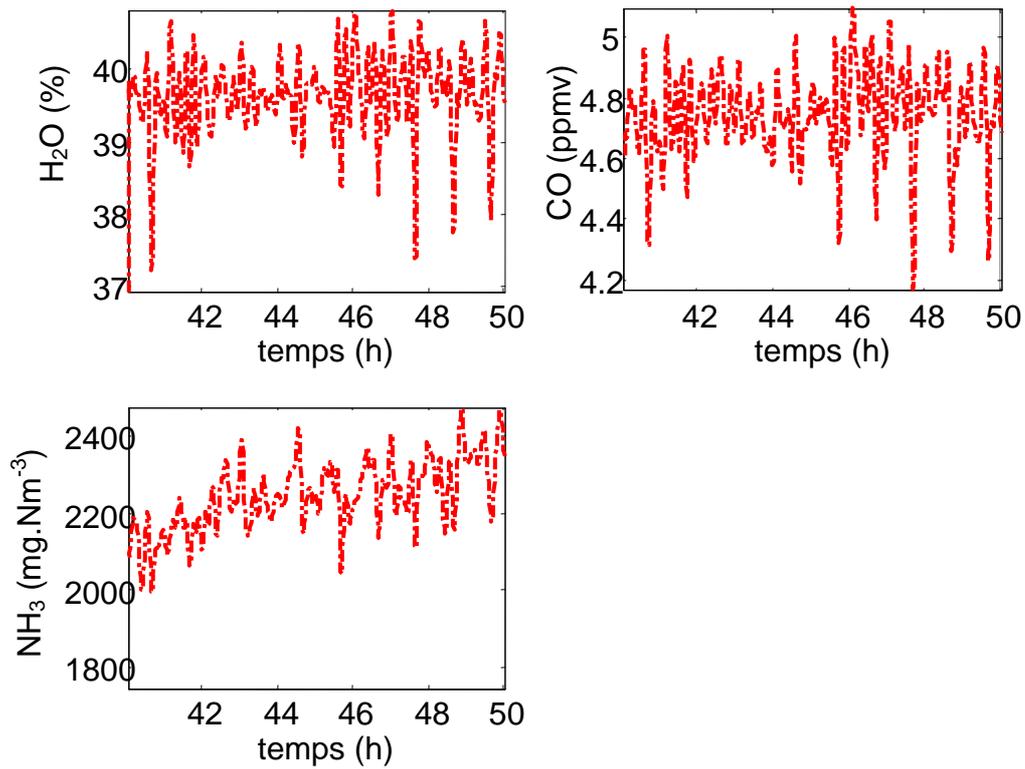


Figure 4.21. Etats non mesurés du modèle dans la validation du fichier 2 après avoir ajusté la composition des boues.

4.6.2. Validation du modèle à l'aide des mesures du fichier 3

Le troisième fichier de mesures correspond à un fonctionnement stable, mais avec un dépassement de NOx au-dessus de la norme de rejet de 400 mg.Nm^{-3} . Ce fichier permet donc de valider le modèle dans les conditions de dépassement de NOx. L'intervalle de temps retenu est entre 15h et 28h (l'intégralité des mesures est présenté dans l'annexe C), présentant une pente légère des températures et des NOx. Les entrées mesurées sont présentées figure 4.22.

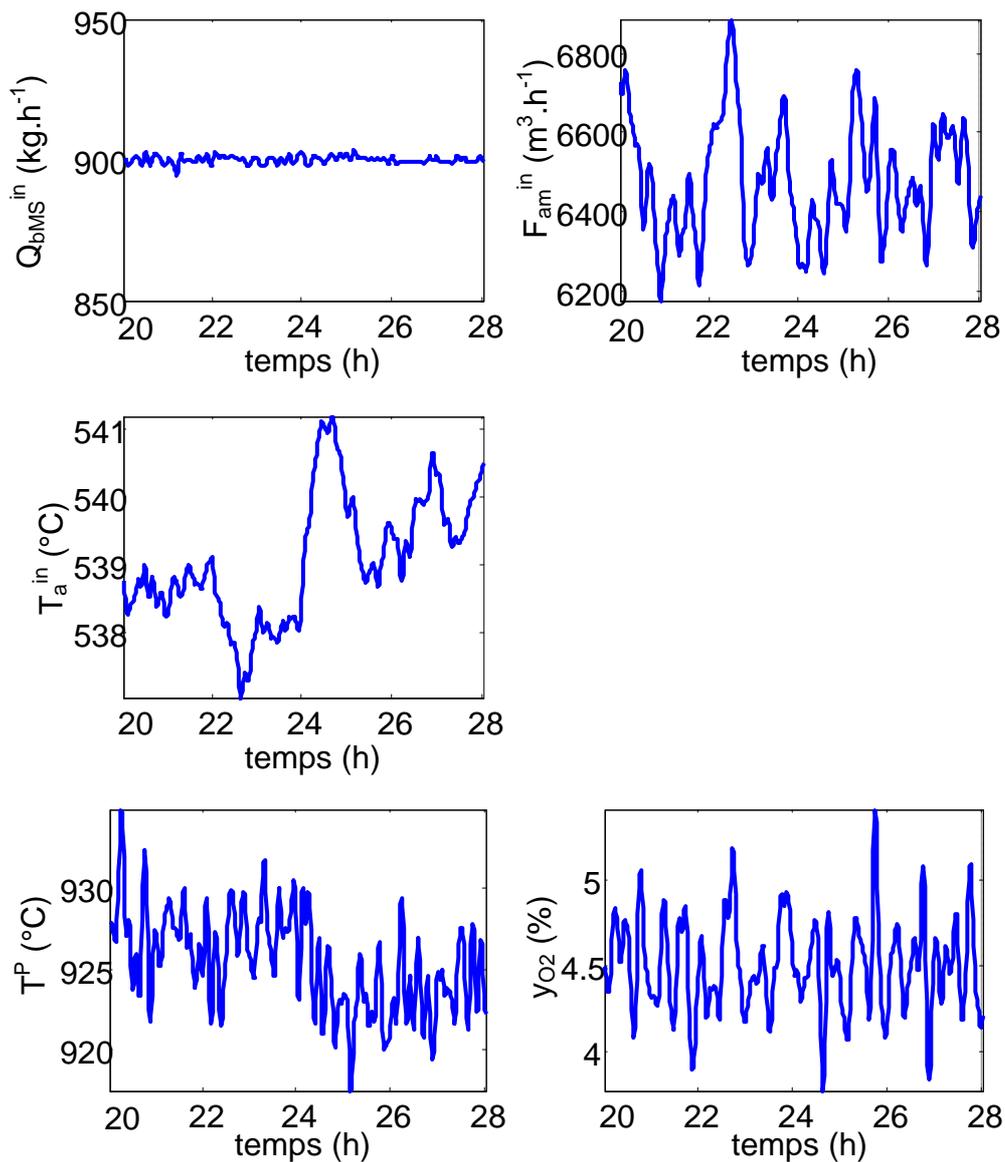


Figure 4.22. Les entrées mesurées du fichier 3.

Le débit de boues en MS est très stable à la valeur de $900 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$. Le débit de l'air a des fluctuations ponctuelles d'environ $300 \text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$ autour de la valeur moyenne de $6500 \text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$. La température de l'air est stable et varie globalement de $\pm 1^\circ\text{C}$, avec une variation maximale de $2,5^\circ\text{C}$. La température du lit post-combustion présente une faible pente et est très bruitée. Les deux températures sont beaucoup plus élevées que dans les fichiers 1 et 2. L'oxygène est régulé à 4,5%.

En utilisant les valeurs identifiées des paramètres, le modèle est simulé. La composition des boues est affectée aux valeurs utilisées pour l'identification des paramètres ($f_N=1\%$). Les résultats de simulation sont présentés sur la figure 4.23, et comparés avec les mesures.

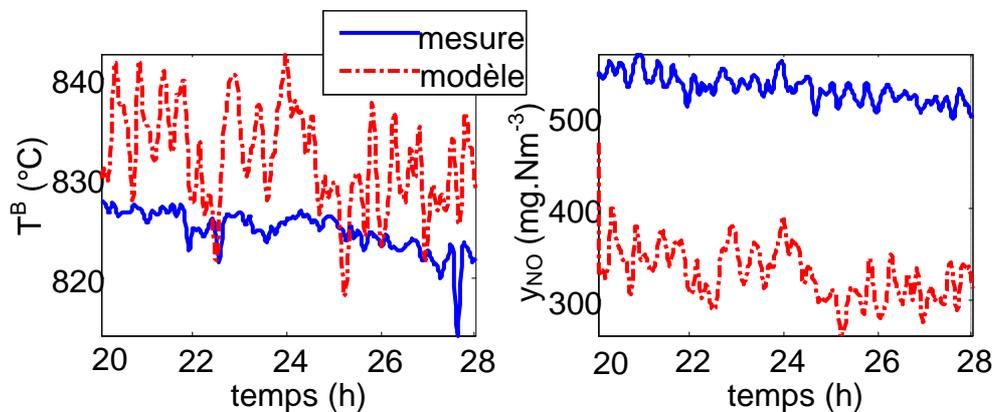


Figure 4.23. Validation du modèle à l'aide des mesures du fichier 3.

Sur la figure 4.23, on voit que la température du lit bouillonnant (T^B) du modèle est plus élevée que la température mesurée, et a aussi plus de fluctuations à cause du bruit introduit par la reconstruction de la fraction volatile et de l'humidité des boues. Au contraire la concentration en NOx (y_{NO}) est moins élevée. Le modèle n'est pas validé.

On cherche maintenant à comprendre si un nouveau calage de la composition permet d'atteindre les mesures, on trouve par essai-erreur :

- Pour T^B , on modifie la répartition des composé volatils : on laisse le monoxyde de carbone à $f_{CO}=43,43\%$, et on diminue la teneur en dihydrogène de $f_{H_2}=3,2\%$ à $f_{H_2}=2\%$.
- Pour les NOx, on augmente la fraction d'azote dans les boues de $f_N=1\%$ à $f_N=2,5\%$.

Le modèle est à nouveau simulé et comparé avec les mesures (figure 4.24) :

- La température du lit bouillonnant est cohérente avec les mesures. Les fluctuations sont plus importantes, elles reproduisent celles de la mesure de la température de post-combustion.
- La concentration en NOx (y_{NO}) est cohérente avec les mesures. De même, les fluctuations de la température de post-combustion se retrouvent dans cette courbe.

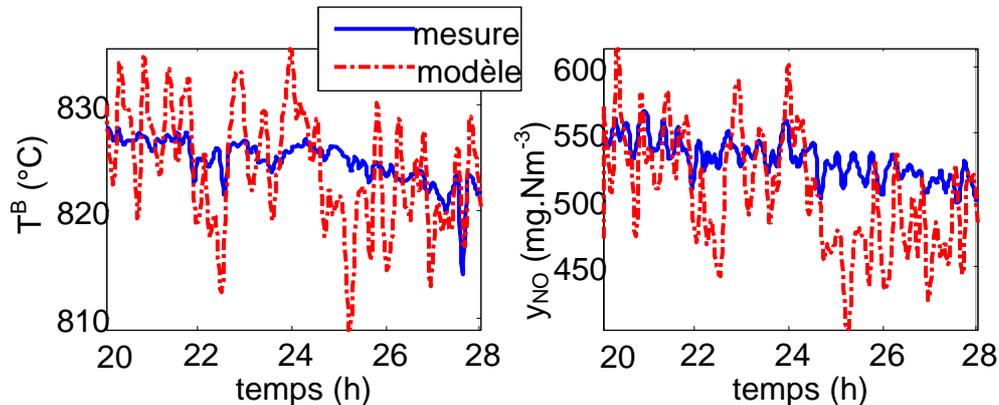


Figure 4.24. Validation du modèle à l'aide des mesures du fichier 3 après avoir ajusté la composition des boues.

Ces résultats ne peuvent pas être améliorés sans d'autres éléments. Si les mesures disponibles ne sont pas suffisantes pour caler le modèle de manière unique, on a cependant réussi à reproduire le comportement dynamique.

Examinons maintenant les états non mesurés du modèle (figure 4.25) :

L'humidité (f_{H_2O}) et la teneur en composés volatils (f_{vol}) sont tout d'abord représentés. Nous pouvons voir qu'ils se maintiennent aux alentours de $f_{H_2O} = 72\%$ et $f_{vol} = 75\%$ environ. Ces valeurs sont très faibles en comparaison des valeurs des fichiers 1 et 2 qui sont plutôt de l'ordre respectivement de 76% et 83%. Ils ne reproduisent pas la légère pente de la température de post-combustion, ce qui confirme l'hypothèse que c'est la répartition de la composition des boues en carbone, hydrogène et azote qui est en cause.

Les figures suivantes montrent les variables d'état du lit bouillonnant:

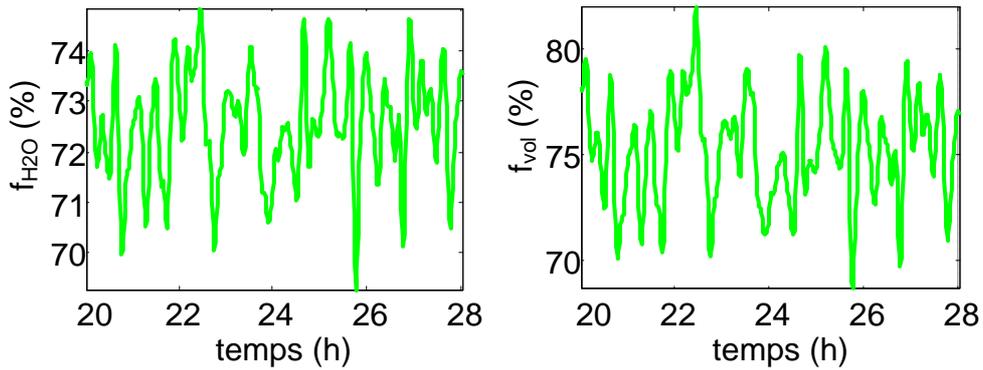
- La teneur en vapeur d'eau du lit bouillonnant est logiquement plus basse que dans les fichiers 1 et 2: aux alentours de 33% au lieu de 36% et 40%.
- La quantité de monoxyde de carbone est importante, et du même ordre de grandeur que dans le fichier 2. Ceci confirme le fait de n'avoir ajusté cette fraction après dévolatilisation.

- L'oxygène est stable, à une teneur assez élevée entre 5 et 5,5%.
- La teneur en NH_3 est intermédiaire entre la valeur du fichier 2 et du fichier 1. La quantité très importante de NO_x émise serait donc due plus à une faible humidité des boues qu'à une forte teneur en azote.
- Les NO_x sont par contre en quantité beaucoup plus importante que dans les fichiers précédents. Ils présentent une pente très légère correspondant à la diminution de la température de post-combustion.

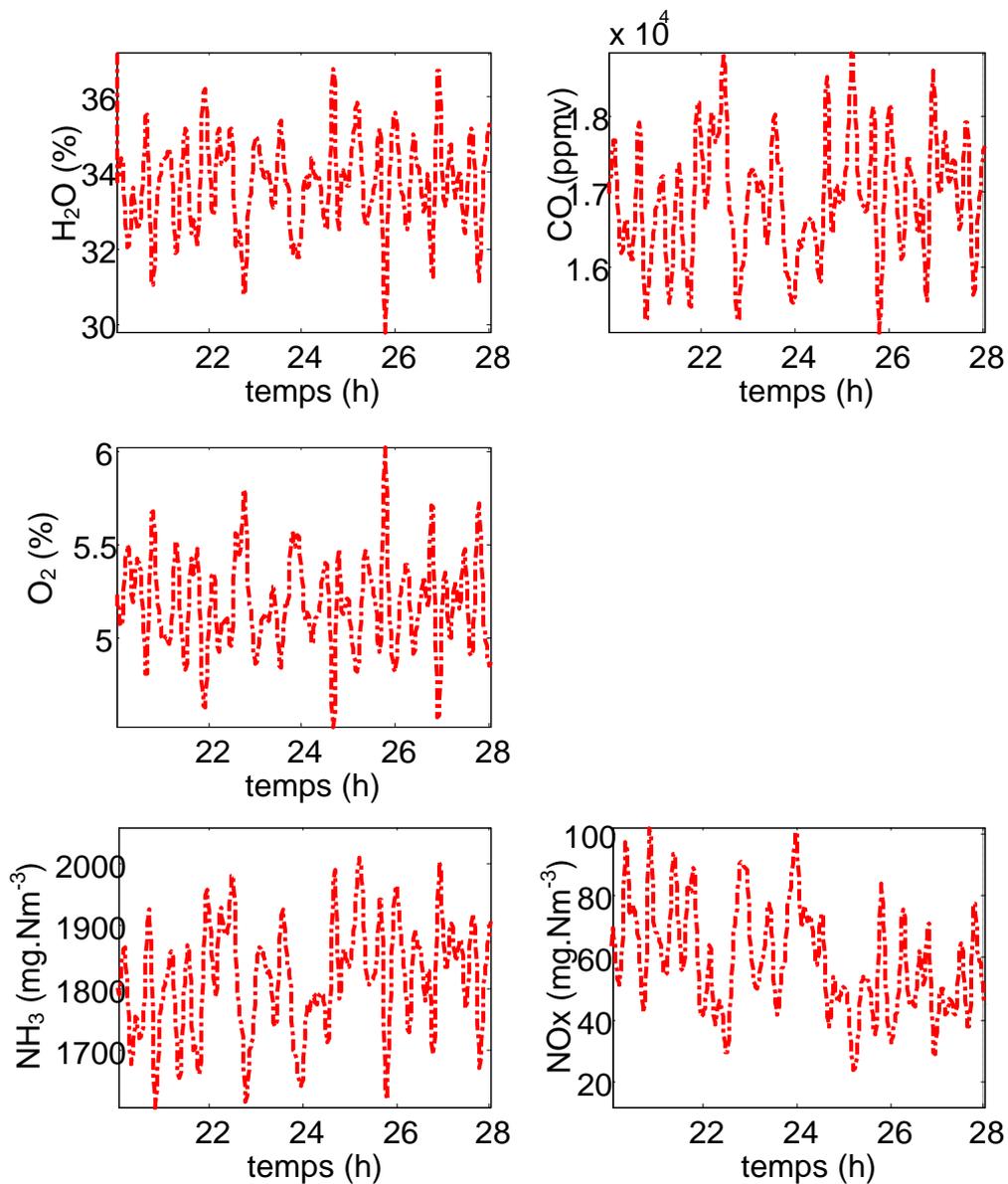
Dans le lit post-combustion, on a :

- La teneur en vapeur d'eau est identique à celle du lit bouillonnant
- La concentration en monoxyde de carbone est très faible, et est aux alentours de 7 ppmv.
- La quantité de NH_3 est encore assez importante, mais reste inférieure à celle des deux autres fichiers. La pente est inverse de celle des NO_x , montrant l'activité de la réaction R2 de formation des NO_x .

Etats non mesurés dans le fichier 3 (répartition de composés volatils et f_N sont déjà calés) :



En lit bouillonnant :



En lit post-combustion :

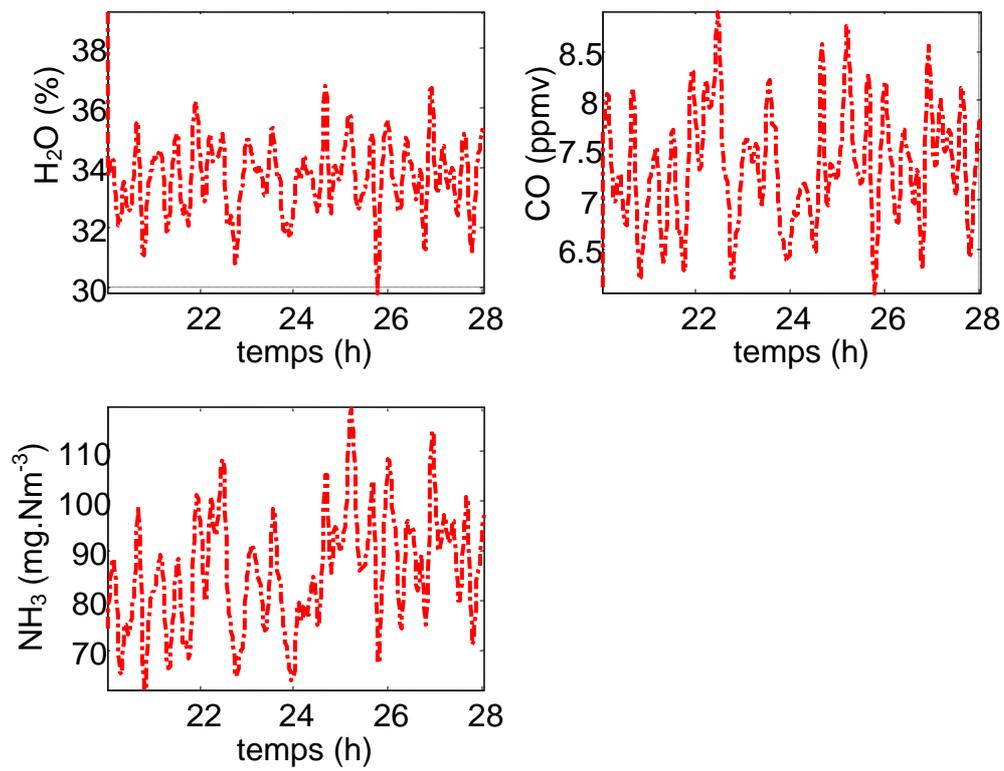


Figure 4.25. Etats non mesurés du modèle dans la validation du fichier 3 après avoir ajusté la composition des boues.

4.7. Conclusion du chapitre 4

L'objectif de ce chapitre était de valider le modèle établi au chapitre 3 avec des mesures industrielles. Si la validation n'est pas complète, le modèle est capable de reproduire la dynamique des mesures. La principale difficulté rencontrée a été le fait que l'on ne dispose pas d'informations sur les entrées du système.

Le premier paragraphe propose une première adaptation du modèle aux mesures industrielles. Le nombre de variables non mesurées étant largement supérieurs à celui des variables mesurées, une stratégie est mise en place afin de minimiser le nombre d'états :

- Les variables d'état C_{HCN} et C_{CH_4} sont négligées,
- Le modèle est séparé en deux sous-modèles: un sous-modèle de combustion, variables d'états : $C_{\text{H}_2\text{O}}^B, C_{\text{CO}}^B, C_{\text{O}_2}^B, T^B, C_{\text{H}_2\text{O}}^P, C_{\text{CO}}^P, T^P$; un sous-modèle des NOx, variables d'états : $C_{\text{NH}_3}^B, C_{\text{NO}}^B, C_{\text{NH}_3}^P, C_{\text{NO}}^P$.

De plus, on propose de reconstruire la fraction volatile des boues en utilisant une équation de bilan global sur l'oxygène, supposé en équilibre statique à tout instant. Le nombre de réactions chimiques est ramené à 3.

L'identification des paramètres est effectuée sur le fichier 1, qui comporte un évènement de forme impulsionnelle (pic d'injection de matières grasses). L'étude de sensibilité paramétrique permet de déduire que le paramètre le plus influent est l'humidité des boues. Après différents essais, celui-ci est finalement reconstruit avec un bilan statique sur la température de post-combustion. Enfin les paramètres cinétiques sont estimés, et les résultats sont tout à fait corrects. La même démarche est entreprise pour le sous-modèle des NOx, qui conduit aussi à d'excellents résultats.

Il est procédé ensuite à la validation du modèle pour deux autres fichiers de mesure n'ayant pas servis à l'identification des paramètres. Les résultats sont tout à fait satisfaisants, à condition d'ajuster à chaque fichier la composition des boues.

En conclusion, des améliorations du modèle ne sont possibles que dans la mesure où l'on disposerait de mesures supplémentaires. Etant donné que les mesures sur la composition des boues seraient impossibles à réaliser en ligne, et qu'on ne peut pas effectuer d'analyse de gaz juste après la dévolatilisation, les mesures supplémentaires pourraient porter sur les gaz en

sortie de four, voire en haut du lit bouillonnant. Une mesure supplémentaire importante serait de disposer de NH_3 . De même la reconstruction de l'humidité des boues est fortement couplée avec celle de la fraction volatile. Il semble qu'une mesure du débit des gaz sortant serait utile.

Si une validation réelle nécessiterait l'apport de mesures nouvelles (composition des boues, états non mesurés) et d'une meilleure connaissance de la dévolatilisation, les résultats ne remettent pas en cause des hypothèses de modélisation. Les résultats sont encourageants, au vu de la complexité des phénomènes mis en jeu. Le modèle peut dès maintenant être utilisé en simulation afin d'établir une stratégie de commande.

Chapitre 5. Proposition de stratégie de commande

Le chapitre précédent a permis de confronter le modèle établi avec des mesures industrielles. Ce modèle, maintenant validé, peut être utilisé en modèle de simulation. Ce chapitre propose d'établir une stratégie de commande afin de minimiser les oxydes d'azote (NOx).

5.1. Objectif et problématique de la stratégie de commande

5.1.1. Objectif de la stratégie de commande

L'objectif recherché est de minimiser la production de NOx (au minimum respecter la norme), tout en garantissant une combustion complète (au minimum respecter la norme de CO), malgré les fluctuations possibles de la composition des boues.

Dans le four industriel dont nous avons l'exemple, les émissions de CO semblent efficacement supprimées par le maintien d'un excès d'oxygène dans le four. Nous nous attacherons donc dans ce chapitre à montrer le mécanisme qui rend cette boucle efficace et comment elle peut être compatible ou non avec la minimisation des émissions de NOx.

L'azote contenu dans les boues se transforme d'abord en ammoniac (NH_3), puis en N_2 (réaction R1) ou en NOx (réaction R2). La réduction de NOx nécessite l'utilisation d'ammoniac (réaction R1), mais la formation de NOx utilise aussi d'ammoniac (réaction R2). Les stratégies proposées par [Basu et Fraser, 1991] et [Kortela et al., 1994] sont de limiter la formation des NOx en baissant la température du four et en maintenant un faible excès d'air au cours de la combustion du charbon. L'équipe de Werther [Werther et Ogada, 1999] explique au contraire que l'excès d'air n'est pas efficace sur la combustion des boues humides, et que la méthode la plus efficace est d'éviter une température élevée. Nous explorerons donc les effets de la température et de l'air sur la formation des NOx.

Enfin le problème de l'incinération des boues en particulier et des déchets en général est que la composition du combustible varie en permanence. Les paramètres représentant la composition des boues sont donc perçus par le modèle comme des perturbations non mesurées, ce qui rend le problème de commande plus difficile à maîtriser. Cependant étant donné qu'il

n'est pas possible d'imaginer avoir la composition des boues en ligne, cette difficulté caractérise le problème de commande.

5.1.2. Problématique de la stratégie de commande

L'un des premiers problèmes que l'on doit résoudre lorsque l'on veut établir une stratégie de commande est de définir : les variables à mesurer, les variables d'action, les perturbations mesurées ou non mesurées et les contraintes sur toutes ces variables. En ce qui concerne les mesures, le procédé industriel d'incinération des boues est bien instrumenté. On pourra donc prendre la mesure de la concentration en NO_x comme variable mesurée à réguler. Concernant le choix des actionneurs, il existe deux possibilités: le débit de boues ou le débit d'air. Une étude des caractéristiques statiques est proposée au paragraphe suivant afin de déterminer l'actionneur le plus judicieux.

En ce qui concerne les perturbations non mesurées, les fluctuations possibles sont : l'humidité des boues, la fraction en matières volatiles des boues, la fraction d'azote des boues et la répartition des composés volatils issus de la dévolatilisation. Les trois premières perturbations sont considérées comme les changements de compositions de boues, mais les trois dernières perturbations correspondent au résultat de la réaction de dévolatilisation qui dépend de nombreux paramètres comme la composition des boues, la température, et l'agitation dans le four, qui vont influencer le temps de dévolatilisation.

5.2. Choix des variables d'action

Pour faire une analyse des sensibilités des sorties mesurées par rapport aux actionneurs possibles, on utilise le modèle validé dans le chapitre précédent en simulation. Afin d'être plus près de la réalité industrielle, la température de l'air entrant dans le four (T_a^{in}) est calculée à partir d'une équation décrivant l'échangeur de chaleur. Le modèle est ensuite simulé en faisant varier les débits d'air et de boues. L'analyse des caractéristiques statiques du modèle permet de connaître les sensibilités des sorties mesurées aux variations des débits d'air et de boues, afin de choisir le meilleur actionneur.

5.2.1. Modèle de l'échangeur de chaleur

Un schéma de l'échangeur de chaleur est présenté figure 5.1. L'air entrant est chauffé par le gaz sortant du four.

Les entrées de l'échangeur : l'air extérieur entrant avec le débit $F_{am}^{in}(T_{am})$ et la température ambiante T_{am} ; le gaz venant du four, entrant avec le débit $F_g(T^P)$ et la température du lit post-combustion T^P .

Les sorties de l'échangeur : l'air sortant de l'échangeur vers le four avec le débit $F_a^{in}(T_a^{in})$ et la température de l'air T_a^{in} ; le gaz sortant avec le débit $F_g(T_{echan})$ et la température T_{echan} .

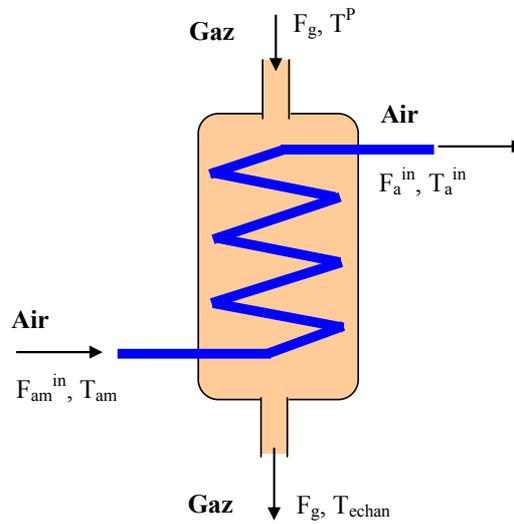


Figure 5.1. Schéma de principe de l'échangeur.

On fait les hypothèses suivantes :

- Pas d'accumulation de gaz et d'air dans l'échangeur ;
- On suppose pour simplifier que $T_a^{in} = T_{echan}$;

Le bilan statique thermique de l'échangeur est le suivant :

$$c_{pa} F_{am}^{in} \rho_{a(T_{am})} (T_a^{in} - T_{am}) = c_{pg} F_g^P \rho_{g(T^P)} (T^P - T_{echan}) \quad (5.1)$$

Avec $T_a^{in} = T_{echan}$, on en déduit l'expression de la température d'air entrant dans le four:

$$T_a^{in} = \frac{c_{pa} F_{am}^{in} \rho_{a(T_{am})} T_{am} + c_{pg} F_g^P \rho_{g(T^P)} T^P}{c_{pa} F_{am}^{in} \rho_{a(T_{am})} + c_{pg} F_g^P \rho_{g(T^P)}} \quad (5.2)$$

5.2.2. Modèle de simulation

Forme générale des équations :

$$\begin{cases} \dot{x} = f(x, u, w) \\ \text{où} \\ x = [C_{H_2O}^B, C_{CO}^B, C_{NH_3}^B, C_{NO}^B, C_{O_2}^B, T^B, C_{H_2O}^P, C_{CO}^P, C_{NH_3}^P, C_{NO}^P] \\ u = [Q_{b,MS}^{in}, F_{am}^{in}, T_a^{in}, y_{O_2}, T^P] \\ w = [f_{CO}, f_{H_2}, f_N] \\ y = [T^B, y_{NO}] \end{cases} \quad (5.3)$$

$$\begin{pmatrix} \frac{dC_{H_2O}^B}{dt} \\ \frac{dC_{CO}^B}{dt} \\ \frac{dC_{NH_3}^B}{dt} \\ \frac{dC_{NO}^B}{dt} \\ \frac{dC_{O_2}^B}{dt} \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} F_{H_2O}^{in} \\ F_{CO}^{in} \\ F_{NH_3}^{in} \\ 0 \\ F_{O_2}^{in} \end{bmatrix} / V_B - \begin{pmatrix} C_{H_2O}^B \\ C_{CO}^B \\ C_{NH_3}^B \\ C_{NO}^B \\ C_{O_2}^B \end{pmatrix} \times \frac{F_g^B}{V^B} + \begin{pmatrix} \phi_{H_2O}^B \\ \phi_{CO}^B \\ \phi_{NH_3}^B \\ \phi_{NO}^B \\ \phi_{O_2}^B \end{pmatrix} \quad (5.4)$$

$$\begin{aligned} c_{ps} m_s^B \frac{dT^B}{dt} = & \left(c_{pa} F_a^{in} \rho_{a(T_a^{in})} T_a^{in} + c_{pb} Q_b^{in} T_b^{in} - c_{pg} \rho_{g(T^B)} F_g^B T^B - c_{p.cendres} Q_b^{in} (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol}) T^B \right) \\ & - \left(F_{H_2O}^{in} L_{H_2O} \right) - \left(r_{22}^B \Delta H_{R22} V^B + F_{CH_4}^{in} \Delta H_{R23} + F_{H_2}^{in} \Delta H_{R24} \right) \end{aligned} \quad (5.5)$$

$$\begin{pmatrix} \frac{dC_{H_2O}^P}{dt} \\ \frac{dC_{CO}^P}{dt} \\ \frac{dC_{NH_3}^P}{dt} \\ \frac{dC_{NO}^P}{dt} \\ \frac{dC_{O_2}^P}{dt} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{H_2O}^B F_g^B - C_{H_2O}^P F_g^P \\ C_{CO}^B F_g^B - C_{CO}^P F_g^P \\ C_{NH_3}^B F_g^B - C_{NH_3}^P F_g^P \\ C_{NO}^B F_g^B - C_{NO}^P F_g^P \\ C_{O_2}^B F_g^B - C_{O_2}^P F_g^P \end{pmatrix} / V^P + \begin{pmatrix} \phi_{H_2O}^P \\ \phi_{CO}^P \\ \phi_{NH_3}^P \\ \phi_{NO}^P \\ \phi_{O_2}^P \end{pmatrix} \quad (5.6)$$

$$c_{pg} m_g^P \frac{dT^P}{dt} = \left(c_{pg} \rho_{g(T^B)} F_g^B T^B - c_{pg} \rho_{g(T^P)} F_g^P T^P \right) - \left(r_{22}^P \Delta H_{R22} V^P \right) \quad (5.7)$$

Avec

$$\begin{bmatrix} F_{H_2O}^{in} \\ F_{CO}^{in} \\ F_{CH_4}^{in} \\ F_{H_2}^{in} \\ F_{NH_3}^{in} \\ F_{O_2}^{in} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} Q_b^{in} f_{H_2O} / M_{H_2O} \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_{CO} / M_{CO} \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_{CH_4} / M_{CH_4} \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_{H_2} / M_{H_2} \\ Q_b^{in} (1 - f_{H_2O}) f_{vol} f_N / M_N \\ 0.232 F_a^{in} \rho_a(T_a^{in}) / M_{O_2} \end{bmatrix} \quad (5.8)$$

$$F_g^B = \frac{Q_b^{in} (1 - (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol})) + F_a^{in} \rho_a(T_a^{in})}{\rho_{g(T^B)}} \quad (5.9)$$

$$F_g^P = \frac{Q_b^{in} (1 - (1 - f_{H_2O})(1 - f_{vol})) + F_a^{in} \rho_a(T_a^{in})}{\rho_{g(T^P)}} \quad (5.10)$$

$$\begin{pmatrix} \varphi_{H_2O}^B \\ \varphi_{CO}^B \\ \varphi_{NH_3}^B \\ \varphi_{NO}^B \\ \varphi_{O_2}^B \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & -1 \\ 0 & -1 & 1 \\ -0.5 & 0 & 0 \end{bmatrix} \times \begin{pmatrix} r_{22}^B \\ r_1^B \\ r_2^B \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} F_{H_2}^{in} + 2F_{CH_4}^{in} \\ F_{CH_4}^{in} \\ -0.5F_{H_2}^{in} - 1.5F_{CH_4}^{in} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} / V_B \quad (5.11)$$

$$\begin{pmatrix} \varphi_{H_2O}^P \\ \varphi_{CO}^P \\ \varphi_{NH_3}^P \\ \varphi_{NO}^P \\ \varphi_{O_2}^P \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & -1 \\ 0 & -1 & 1 \\ -0.5 & 0 & 0 \end{bmatrix} \times \begin{pmatrix} r_{22}^P \\ r_1^P \\ r_2^P \end{pmatrix} \quad (5.12)$$

$$\begin{pmatrix} r_{22}^B \\ r_1^B \\ r_2^B \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} k_{22}(T^B) & (C_{CO}^B) & (C_{H_2O}^B)^{0.5} (C_{O_2}^B)^{0.5} \\ k_1 & (C_{NH_3}^B)^{0.5} (C_{NO}^B)^{0.5} (C_{O_2}^B)^{0.5} \\ k_2(T^B) & (C_{NH_3}^B) & (C_{O_2}^B) \end{pmatrix} \quad (5.13)$$

$$\begin{pmatrix} r_{22}^P \\ r_1^P \\ r_2^P \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} k_{22}(T^P) & (C_{CO}^P) & (C_{H_2O}^P)^{0.5} (C_{O_2}^P)^{0.5} \\ k_1 & (C_{NH_3}^P)^{0.5} (C_{NO}^P)^{0.5} (C_{O_2}^P)^{0.5} \\ k_2(T^P) & (C_{NH_3}^P) & (C_{O_2}^P) \end{pmatrix} \quad (5.14)$$

Paramètres cinétiques :

Notation	Signification	Valeur	Unité
k_1^B	Constante cinétique de la réaction R1 dans le lit bouillonnant	$1,07 \cdot 10^{12} \exp(-29400/T^B)$	$m^{1.5} \cdot mol^{-0.5} \cdot s^{-1}$
k_1^P	Constante cinétique de la réaction R1 dans le lit post-combustion	1	$m^{1.5} \cdot mol^{-0.5} \cdot s^{-1}$
k_2^B	Constante cinétique de la réaction R2 dans le lit bouillonnant	$2,73 \cdot 10^{14} \exp(-38160/T^B)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$
k_2^P	Constante cinétique de la réaction R2 dans le lit post-combustion	$2,73 \cdot 10^{14} \exp(-38160/T^P)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$
k_{22}^B	Constante cinétique de la réaction R22 dans le lit bouillonnant	$2211 \exp(-7743/T^B)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$
k_{23}^P	Constante cinétique de la réaction R23 dans le lit post-combustion	$3452 \exp(-3001/T^P)$	$m^3 \cdot mol^{-1} \cdot s^{-1}$

Tableau 5.1. Les paramètres « cinétiques » dans le modèle validé.

Point de fonctionnement :

Les entrées sont prises avec les valeurs moyennes du fichier 1 (tableau 4.1, chapitre 4). Après simulation du modèle, les valeurs des sorties sont présentées dans le tableau 5.2 :

Entrées	$Q_{b,MS}^{in} (kg \cdot h^{-1})$	$F_{am}^{in} (m^3 \cdot h^{-1})$	$f_{H_2O} (\%)$	$f_{vol} (\%MS)$	$f_N (\%MS \text{ et cendres libérées})$
	900	6900	75,43	79,44	1
Sorties du modèle	$T^B (^\circ C)$	$T^P (^\circ C)$	$y_{O_2} (\%)$	$y_{CO} (mg \cdot Nm^{-3})$	$y_{NO} (mg \cdot Nm^{-3})$
	744	870	4,5	9,7	65

Tableau 5.2. Point de fonctionnement du modèle ($[X_0, Y_0]$).

5.2.3. Caractéristiques statiques du modèle pour les deux actionneurs F_{am}^{in} et $Q_{b,MS}^{in}$

On trace les caractéristiques statiques du modèle pour les deux actionneurs F_{am}^{in} et $Q_{b,MS}^{in}$. Ces caractéristiques statiques permettent non seulement une analyse de sensibilité du modèle aux variations des actionneurs, mais aussi de vérifier la cohérence du modèle.

Plage de fonctionnement des actionneurs (sauf indication contraire, ces contraintes sont données par l'industriel) :

- Débit d'air : $5000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1} < F_{\text{am}}^{\text{in}} < 8500 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. La valeur de $5000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ est liée à la vitesse minimale de fluidisation. Elle est calculée par des équations empiriques développées dans l'Annexe B. La valeur de $8500 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ est la valeur maximale du site industriel, afin d'assurer un temps de combustion des volatils suffisant.
- Débit de boues (en MS) : on ne dispose pas des valeurs minimum et maximum industrielles. Par défaut, nous prenons $\pm 20\%$ autour du point de fonctionnement statique.

Plage de fonctionnement des températures du four :

- La température du lit bouillonnant : $700^\circ\text{C} < T^{\text{B}} < 840^\circ\text{C}$ (si $T^{\text{B}} < 700^\circ\text{C}$, injection de fioul ; si $T^{\text{B}} > 840^\circ\text{C}$, arrêt de l'alimentation des boues).
- La température du lit post-combustion : $T^{\text{P}} < 920^\circ\text{C}$ (si $> 920^\circ\text{C}$, injection d'eau pour refroidir).

Plage de la teneur en oxygène dans le lit post-combustion:

- Seuil d'oxygène : $1\% < \text{O}_2 < 14\%$ (seuil bas : 1%, arrêt temporisé du combustible ; seuil très bas : 0%, arrêt du four ; seuil haut : 14%, contrôle de $\text{O}_2/\text{Q}_{\text{b,MS}}^{\text{in}}$). Plage optimale entre 4% et 6%.

Sur la figure 5.2, les caractéristiques statiques des cinq variables d'état les plus importantes par rapport au débit d'air sont représentées. $[X_0, Y_0]$ est le point de fonctionnement. On analyse la sensibilité des variables d'état :

- Les températures du four T^{B} et T^{P} diminuent quand le débit d'air augmente. En effet, du fait de l'échangeur de chaleur, la température de l'air est toujours inférieure à celle du four, et a donc un effet de refroidissement. On voit que les températures sortent des limites autorisées ($T^{\text{B}} < 700^\circ\text{C}$, $T^{\text{B}} > 840^\circ\text{C}$ et $T^{\text{P}} < 920^\circ\text{C}$) pour la plage de fonctionnement. Ceci est dû probablement à la modélisation de l'échangeur de chaleur, qui modifie le domaine des températures. Ajuster un coefficient d'échange thermique permettrait d'améliorer ces valeurs. Mais ce coefficient variant avec la température et l'humidité est difficile à caler. Etant donné que le modèle reste cohérent, on ne se préoccupera pas des valeurs limites des températures.
- L'oxygène sortant du four augmente avec l'augmentation du débit d'air.

- Le monoxyde de carbone (CO) correspond bien à un point optimal pour le débit d'air : quand l'oxygène est limitant (<2%), alors la quantité de CO augmente. Quand l'oxygène est suffisant, la vitesse de combustion de CO dépend alors de la température. L'augmentation du débit d'air diminue la température du four qui diminue la vitesse de combustion de CO. Aussi la quantité de CO augmente.
- Les NOx diminuent suivant l'augmentation de débit d'air à cause de la diminution de la température. On peut voir que la formation des NOx est extrêmement importante en faible injection d'air, correspondant à une surchauffe du four.

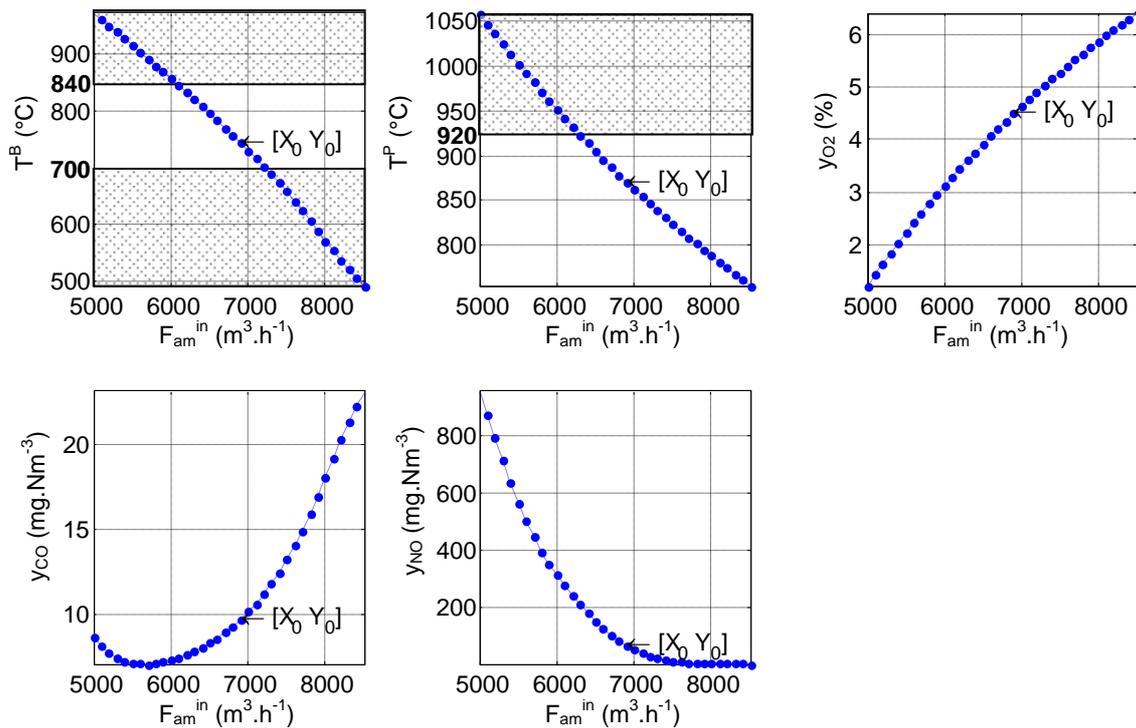


Figure 5.2. Caractéristiques statiques des sorties du modèle par rapport au débit d'air.

On constate donc, étant donné que la température de l'air permet de refroidir le four, qu'on peut donc diminuer la température du four en augmentant le débit d'air. Ainsi dans le même temps on minimise les NOx. Cependant cette baisse de température accroît l'émission de monoxyde de carbone (CO). Cette augmentation reste acceptable car le monoxyde de carbone reste toujours largement en dessous de la norme de rejet (50 mg.Nm⁻³).

On trace maintenant les caractéristiques statiques des sorties du modèle par rapport au débit des boues (figure 5.3). $[X_0, Y_0]$ est le point de fonctionnement. Théoriquement, une augmentation du débit des boues conduisant à une augmentation de la quantité incinérée, les

températures doivent augmenter et l'oxygène doit être consommé en plus grande quantité. Ceci doit aussi conduire à une formation plus importante de polluants. On voit sur la figure 5.3 :

- Les températures du four T^B et T^P augmentent avec le débit de boues.
- L'oxygène sortant du four diminue suivant l'augmentation du débit de boues.
- Le comportement de CO a deux tendances inverses : il augmente soit quand l'oxygène est limitant, soit quand la température du four est faible. Le point de fonctionnement correspond à un point optimal.
- La concentration en NOx augmente suivant le débit de boues à cause de l'augmentation de la température. On peut voir qu'au-delà du point de fonctionnement, la formation de NOx augmente de façon exponentielle.

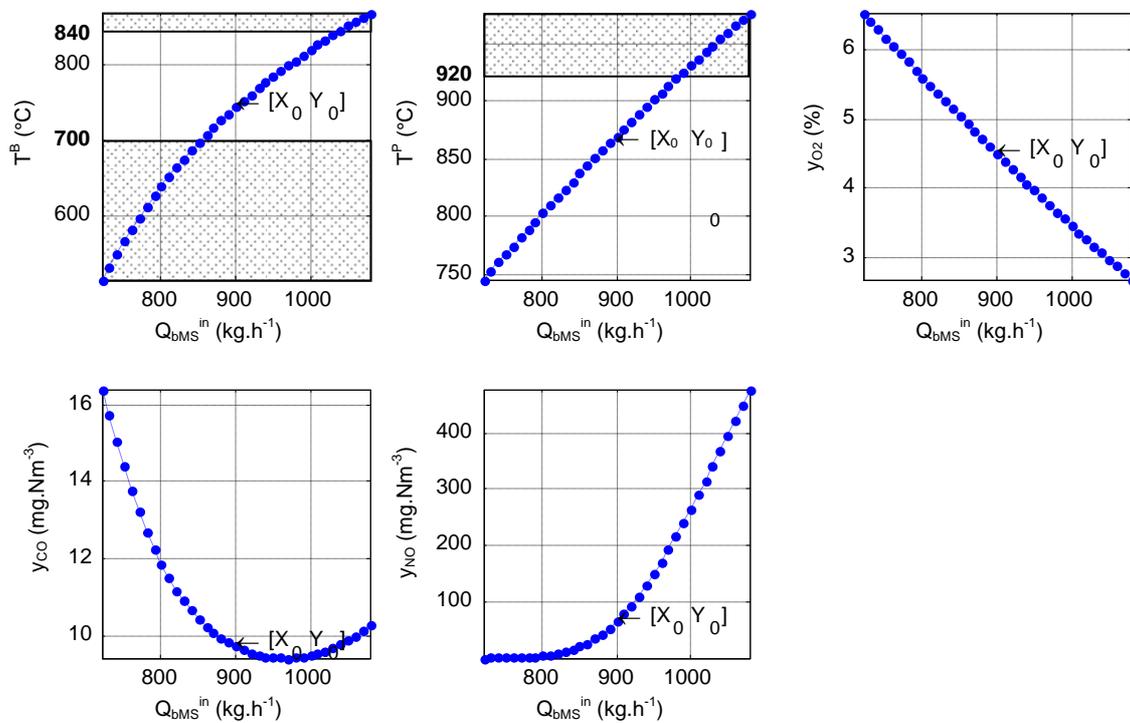


Figure 5.3. Caractéristiques statiques des sorties du modèle par rapport au débit de boues.

On constate donc que pour diminuer la température du four, et donc la production de NOx, il faut diminuer le débit des boues à traiter. Par rapport aux caractéristiques précédentes, les tendances sont inversées. Les deux actionneurs agissent en sens inverse, mais conduisent aux mêmes formes de caractéristiques statiques. Dans le cas du débit de boues, les deux polluants, CO et NOx, ont les mêmes conditions de formation pour les débits au dessus du point de fonctionnement. Le monoxyde de carbone peut par contre augmenter alors que le débit de boues diminue, bien qu'il reste largement en dessous des normes. Quelque soit le choix de

l'actionneur, le point de fonctionnement est proche du point optimal minimisant les émissions de ces deux polluants.

De plus, la boucle de régulation d'oxygène existante doit toujours être maintenue, afin de ne jamais se trouver en configuration d'oxygène limitant. Ceci conduit à proposer soit une commande multivariable avec un ou deux actionneurs et deux variables mesurées, soit à coupler deux boucles, afin de garantir la stabilité de l'ensemble.

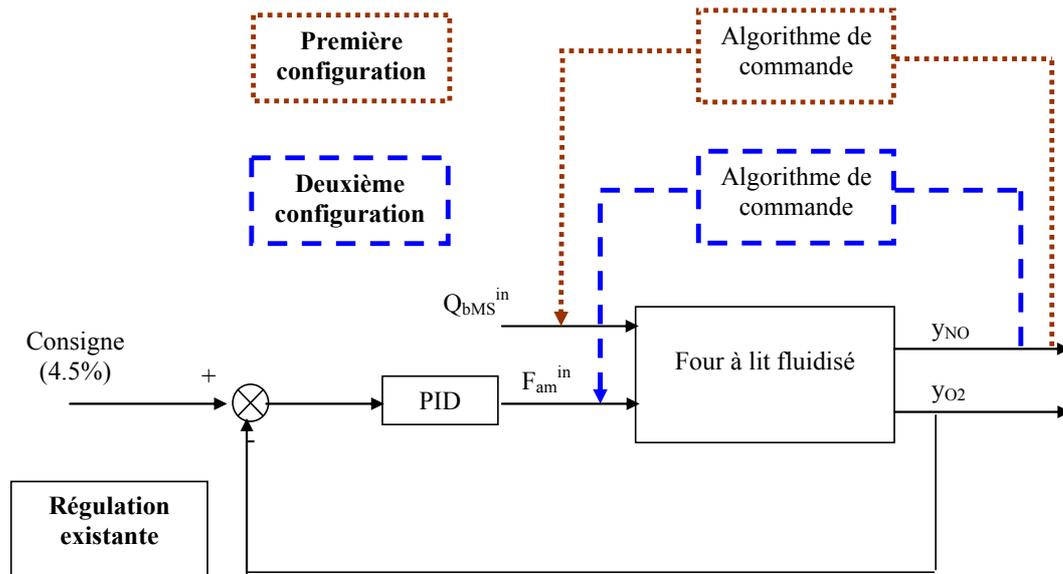


Figure 5.4. Deux configurations de stratégie de commande.

Sur la figure 5.4, la première configuration correspond à une régulation dite de type « amont », c'est-à-dire que l'on ralentit la marche du four pour garantir une minimisation des polluants en sortie. Cette régulation privilégie la qualité de l'air sortant mais a cependant l'inconvénient d'imposer le débit des boues entrant dans le four, ce qui peut poser des problèmes de stockage ou au contraire de marche trop rapide.

L'utilisation du débit d'air comme actionneur (deuxième configuration) correspond à une régulation dite « aval » : le four garde son régime de fonctionnement, et on adapte les paramètres opératoires. La qualité est en général moins bonne mais le coût est inférieur à la régulation dite « amont ». Pour ces raisons, nous choisissons cette stratégie de commande.

Choix de l'algorithme de commande : ce chapitre propose un PID, qui correspond au réglage le plus simple. Cependant d'autres algorithmes linéaires ou non linéaires [Martin, 2006], commande géométrique [Isidori, 1995], commande prédictive [Foulard *et al.*, 1987], [Garcia *et al.*, 1989] pourront être élaborés par la suite.

5.3. Proposition de stratégie de commande

5.3.1. Cahier des charges

La stratégie de commande peut donc maintenant être représentée sur la figure 5.5. On peut définir :

- La variable d'action : le débit d'air (F_{am}^{in}).
- Les variables à réguler : l'oxygène (y_{O_2}), les NOx (y_{NO}).
- Le débit de boues agit comme une perturbation mesurée. La composition des boues et la répartition des composés volatils agissent comme des perturbations non mesurées.

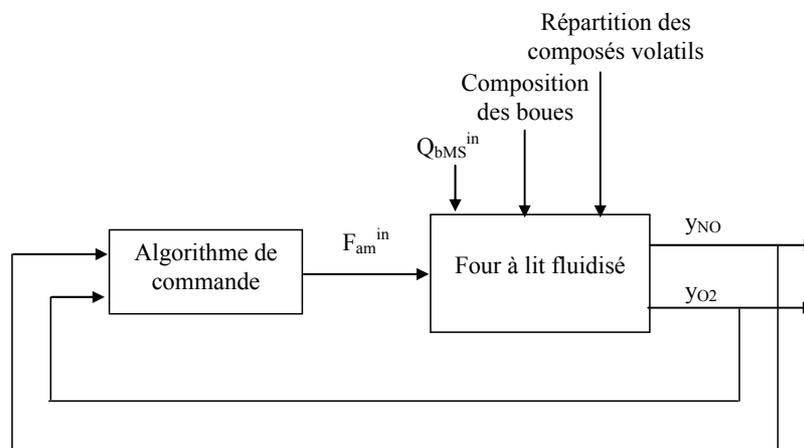


Figure 5.5. Représentation de la stratégie de commande.

Objectif : respecter les normes malgré les contraintes sur les variables du procédé et les actionneurs. Rejeter les perturbations.

La norme des polluants (norme européenne) : valeur maximale

- NOx : 200 mg.Nm^{-3} .
- CO : 50 mg.Nm^{-3} .

On rappelle les valeurs des contraintes:

Contrainte d'action :

- Débit d'air : $5000 \text{ m}^3.\text{h}^{-1} < F_{am}^{in} < 8500 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$ (valeur industrielle).

Contraintes sur les variables d'état:

- Température du four : $700^{\circ}\text{C} < T^{\text{B}} < 840^{\circ}\text{C}$; $T^{\text{P}} < 920^{\circ}\text{C}$.
- Oxygène : $1\% < \text{O}_2 < 14\%$, point optimal entre 4 et 6%.

5.3.2. Stratégie proposée

On cherche une stratégie simple à réaliser dans l'industrie. La figure 5.6 représente la stratégie de commande proposée. Deux valeurs de consigne et deux boucles sont mises en parallèle. La première boucle est celle existante sur site industriel. Quand l'interrupteur est connecté sur cette boucle, le four fonctionne comme sur le site industriel.

Au point de fonctionnement, on choisit les valeurs :

$$r_{\text{O}_2} = 4.5\% \text{ (consigne industrielle),}$$

$$Ku1_0 = r_{\text{O}_2} - y_{\text{O}_2} = 4.5 - 4.5 = 0 \%$$

$$Ku1_{\min} = r_{\text{O}_2} - y_{\text{O}_2\max} = 4.5 - 14 = -9.5 \%$$

$$Ku1_{\max} = r_{\text{O}_2} - y_{\text{O}_2\min} = 4.5 - 1 = 3.5 \%$$

Donc

$$Ku1_{\min} < Ku1 < Ku1_{\max}$$

La deuxième boucle est utilisée uniquement en cas de dépassement de NOx. En fonctionnement habituel, la quantité de NOx est très basse, donc e_2 est un nombre positif très grand, et $Ku2$ est négatif. Au point de fonctionnement:

$$r_{\text{NO}} = 100 \text{ mg.Nm}^{-3} \text{ (valeur arbitraire).}$$

$$Ku2_0 = -(r_{\text{NO}} - y_{\text{NO}}) = -(100 - 64) = -36 \text{ mg.Nm}^{-3}$$

$$Ku2_{\min} = -(r_{\text{NO}} - y_{\text{NO}\min}) = -(100 - 0) = -100 \text{ mg.Nm}^{-3}$$

$$Ku2_{\max} = -(r_{\text{NO}} - y_{\text{NO}\max}) = -(100 - 400) = 300 \text{ mg.Nm}^{-3}$$

Au point de fonctionnement, on a donc $Ku1_0 > Ku2_0$

Lorsque la quantité de NOx augmente, à un moment donné, $Ku2$ devient plus grand que $Ku1$ à cause des différences d'échelles. On bascule alors sur la deuxième boucle. Quand à nouveau la norme est respectée, le basculement se fait à nouveau sur la première boucle.

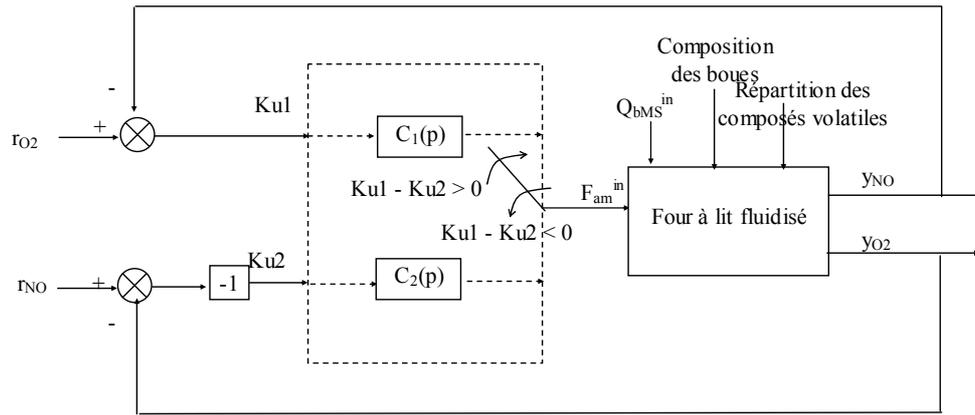


Figure 5.6. Stratégie de commande proposée.

Dans la boucle d'oxygène, on maintient le contrôleur utilisé dans le site industriel :

$$C_1(p) = 72 \left(1 + \frac{1}{60p} \right) \quad (5.15)$$

Pour la deuxième boucle, les paramètres du correcteur $C_2(p)$ sont déterminés à partir de l'identification d'une fonction de transfert [Stephanopoulos, 1984], [Borne, 1993], [De Larminat, 1993].

Détermination d'une fonction de transfert $G_2(p)$:

Pour trouver le correcteur dans la boucle des NOx, on détermine d'abord une fonction de transfert:

$$G_2(p) = \frac{y_{NO}(p)}{F_{am}^{in}(p)} \quad (5.16)$$

La caractéristique statique de y_{NO} en fonction du débit d'air est non linéaire (figure 5.2). Afin de déterminer le domaine de linéarité du système, on trace à nouveau la caractéristique statique sur une plage limitée autour du point de fonctionnement (figure 5.7). On voit sur la figure que la caractéristique est non linéaire, et que la zone réelle de linéarité est très restreinte ($6880 - 6920 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$) et correspond à la tangente au point de fonctionnement. Cependant, l'erreur n'étant pas très importante pour une zone plus grande, on peut considérer que la zone linéaire autour du point de fonctionnement est:

$$82 \text{ mg} \cdot \text{Nm}^{-3} < y_{NO} < 50 \text{ mg} \cdot \text{Nm}^{-3}$$

$$6800 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1} < F_{am}^{in} < 7000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$$

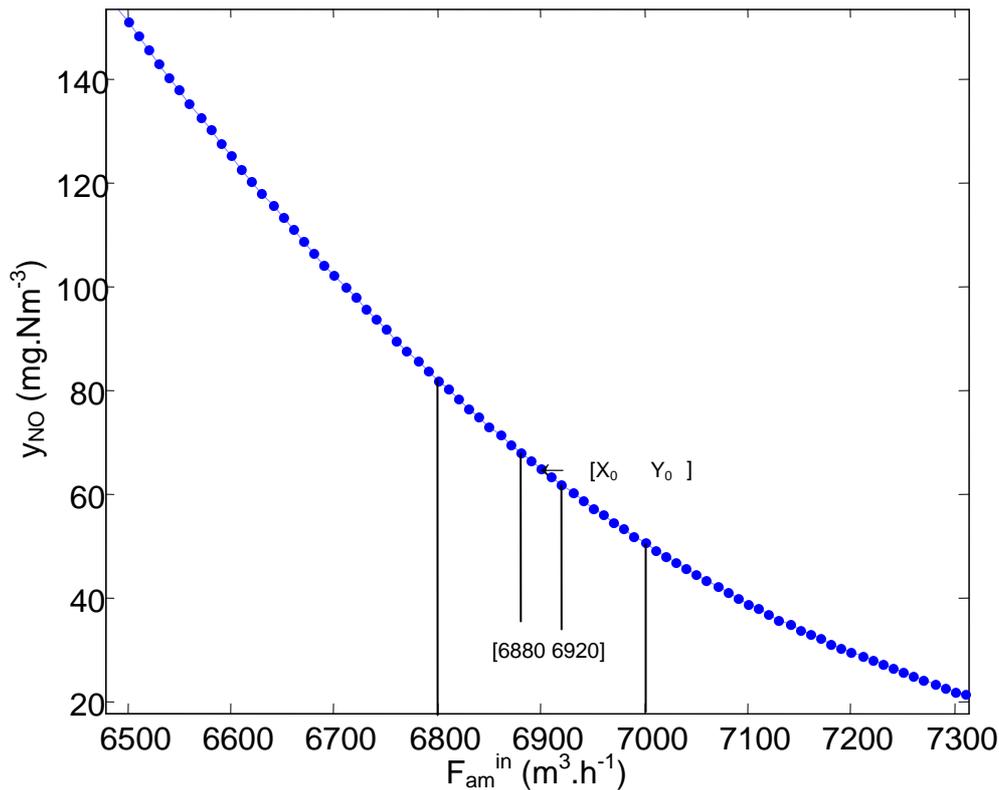


Figure 5.7. Caractéristique statique de y_{NO} en fonction du débit d'air.

On applique maintenant un échelon sur le débit d'air (F_{am}^{in} passe de $6900 \ m^3 \cdot h^{-1}$ à $6880 \ m^3 \cdot h^{-1}$) correspondant à la zone linéaire. On trace sur la figure 5.8 la réponse indicielle de la variation de y_{NO} par rapport au point de fonctionnement ($\text{var } y_{NO}$).

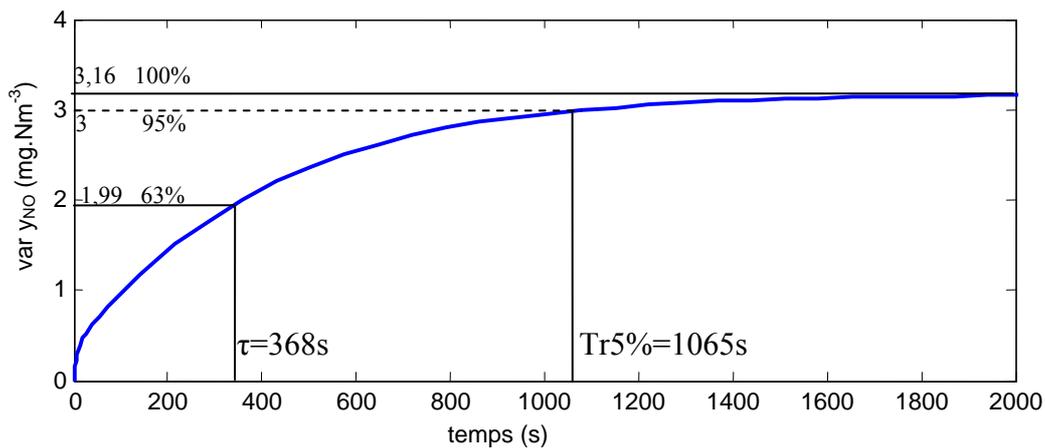


Figure 5.8. Réponse indicielle de y_{NO} par rapport de F_{am}^{in} dans le domaine linéaire.

Sur la figure 5.8, on constate qu'il n'y a pas de point d'inflexion, et que la tangente à l'origine est non nulle. Cette réponse est donc proche d'une réponse d'une fonction de transfert du premier ordre, de la forme:

$$G_2(p) = \frac{K}{(1 + \tau p)} \quad (5.17)$$

On peut déterminer simplement les paramètres de la fonction de transfert du premier ordre à partir de la figure 5.8.

Gain statique: $K = -0.16$

Constante de temps: $\tau = 368 \text{ s}$

Le temps de réponse à 5% théorique est $\text{Tr}_{5\%} = 3 * \tau = 1104 \text{ s} = 18,4 \text{ min}$

Si on mesure le temps de réponse, on trouve: $\text{Tr}_{5\%} = 1065 \text{ s} = 17,8 \text{ min}$

On obtient donc bien un système du premier ordre. La fonction de transfert est la suivante :

$$G_2(p) = -\frac{0.16}{(1 + 368p)} \quad (5.18)$$

Calcul du régulateur $C_2(p)$:

Afin de supprimer l'erreur statique, et surtout de rejeter au mieux les perturbations, on propose un correcteur PI. On utilise la méthode des pôles dominants et on souhaite diviser le temps de réponse de la fonction de transfert par 3.

On obtient le correcteur suivant :

$$C_2(p) = 19.4 \left(1 + \frac{1}{368p} \right) \quad (5.19)$$

5.4. Résultats de simulation pour la boucle de NOx seule (suivi de consigne r_{NO})

On teste d'abord les performances de la boucle de NOx seule (figure 5.9).

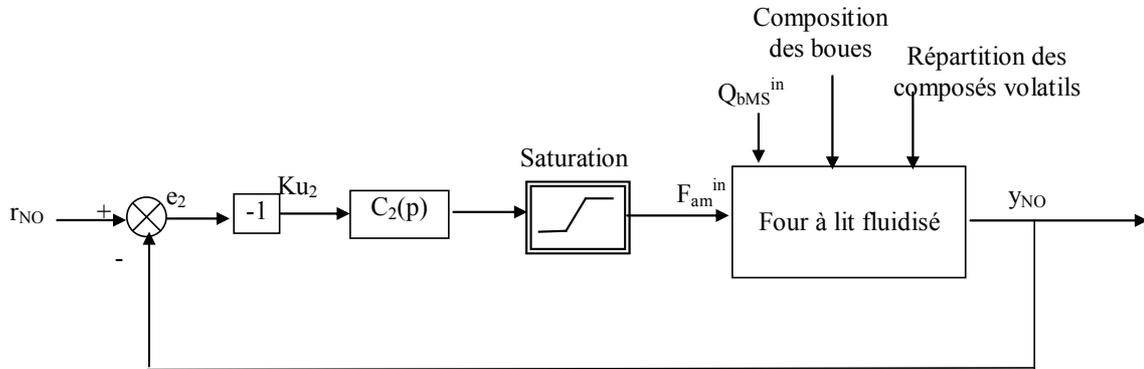


Figure 5.9. Boucle de NOx seule.

Le four à lit fluidisé est simulé à l'aide du modèle validé. A titre de comparaison, nous présentons aussi les résultats si le four est simulé avec la fonction de transfert $G_2(p)$. Pour que la simulation soit la plus réaliste possible, nous avons ajouté dans la boucle de commande une saturation de l'actionneur.

1^{er} test dans la zone linéaire.

Tout d'abord, on fait un premier test en restant dans la zone linéaire. Sur la figure 5.10, la consigne r_{NO} varie entre 80 mg.Nm^{-3} et 50 mg.Nm^{-3} . On voit que quelque soit le modèle utilisé (modèle non linéaire validé ou fonction de transfert), la sortie y_{NO} suit la consigne et les deux courbes sont confondues. La variable d'action F_{am}^{in} réagit par pic aux changements de consigne. Les pics liés au modèle non linéaire ont légèrement plus d'amplitude que ceux du modèle linéaire.

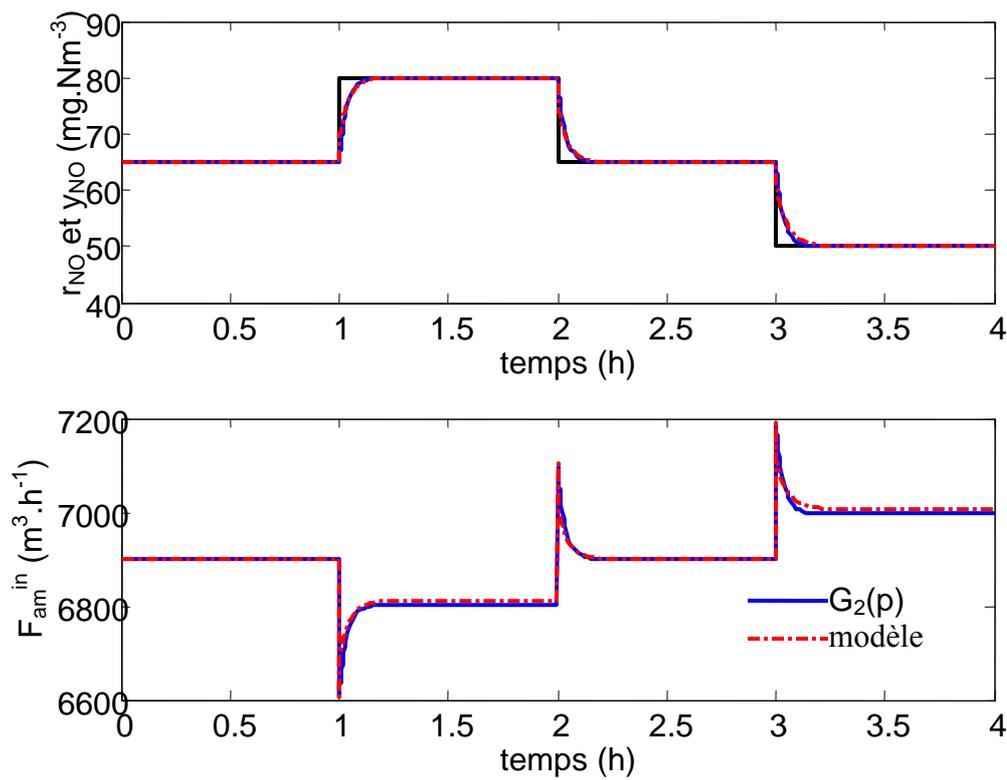


Figure 5.10. 1^{er} test de suivi de consigne (r_{NO}) dans la zone linéaire.

2^{ème} test: limite de saturation du débit d'air

En augmentant les amplitudes des échelons de consigne, on cherche la limite de la stratégie de commande. La première limite atteinte est la saturation de l'actionneur en régime transitoire. La figure 5.11 montre des résultats de simulation pour des valeurs transitoires de F_{am}^{in} proches des contraintes.

La consigne r_{NO} varie entre 150 mg.Nm^{-3} et 30 mg.Nm^{-3} . Les sorties y_{NO} du modèle et de la fonction de transfert restent identiques, grâce à l'action F_{am}^{in} qui agit plus sur la fonction de transfert que sur le modèle non linéaire.

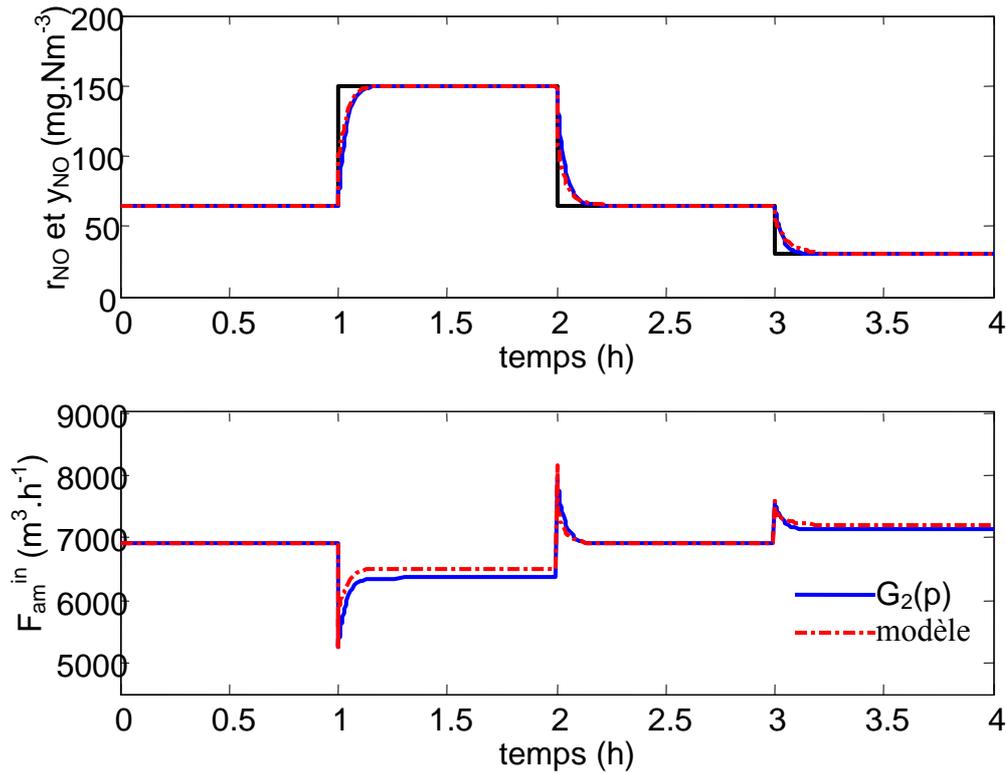


Figure 5.11. 2^{ème} test de suivi de consigne (r_{NO}) dans la zone non linéaire.

3^{ème} test: essai en saturation

Dans ce test, on fait varier la consigne r_{NO} de manière à mettre en évidence la différence entre le modèle non linéaire et la fonction de transfert en saturation des actionneurs. On rajoute dans la boucle de commande une saturation de l'action F_{am}^{in} entre $5000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ (MIN) et $8500 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ (MAX).

Sur la figure 5.12, la consigne varie entre $400 \text{ mg} \cdot \text{Nm}^{-3}$ et $10 \text{ mg} \cdot \text{Nm}^{-3}$. La sortie y_{NO} du modèle suit correctement la consigne. Par contre celle de la fonction de transfert ne suit pas bien pour le premier échelon. En effet, quand la consigne est égale à $400 \text{ mg} \cdot \text{Nm}^{-3}$, le débit d'air atteint sa limite inférieure et la sortie de la fonction de transfert ne peut pas suivre la consigne. En revanche, pour le modèle non linéaire, l'amplitude du pic transitoire du débit d'air est beaucoup moins importante et permet le suivi de consigne. Ceci est dû à la forte non linéarité du procédé, où y_{NO} est extrêmement sensible à la température (et donc au débit d'air) pour des fortes concentrations de NO_x . Nous pouvons donc conclure que la boucle reste efficace même en dehors de la zone linéaire.

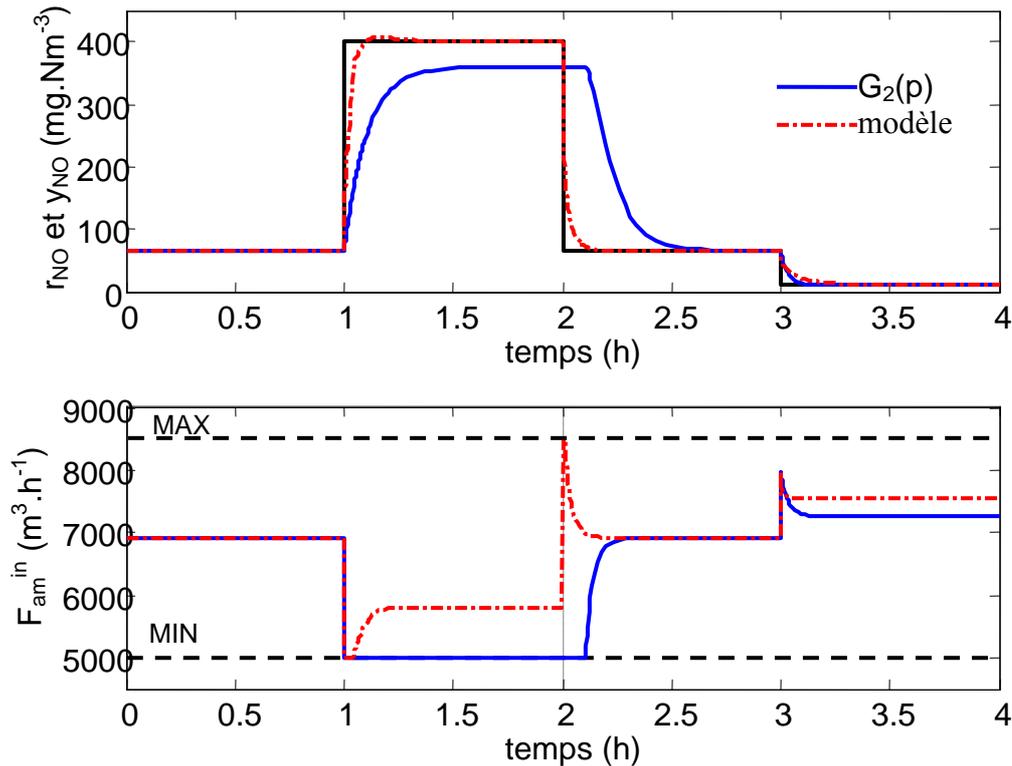


Figure 5.12. 3^{ème} test de suivi de consigne (r_{NO}) dans la zone limite autorisée.

5.5. Résultats de simulation pour la stratégie de commande

Ayant vérifié le fonctionnement de la boucle de NOx seule, nous pouvons maintenant simuler l'ensemble de la stratégie de commande. Après vérification du fonctionnement de la stratégie de commande, on teste la stratégie de commande pour les perturbations les plus courantes: variations du débit de boues et variations de la fraction volatile.

5.5.1. Vérification du basculement des commandes

On va vérifier que la stratégie de commande fonctionne, et que le basculement d'une boucle de commande à l'autre fonctionne correctement et n'induit pas de problème transitoire au moment du basculement.

Le principe consiste à faire varier la sortie y_{NO} du modèle, en provoquant un dépassement de consigne. Deux tests sont proposés : un premier test en échelon, puis un deuxième test en rampe. Afin de modifier la sortie y_{NO} du modèle sans ouvrir la boucle, on agit sur la fraction volatile des boues.

1^{er} test de basculement : échelon de f_{vol} :

Afin de réaliser le premier test, on trouve par essai-erreur un profil de la fraction volatile (f_{vol}) permettant de provoquer sur le modèle en boucle ouverte un échelon de la sortie y_{NO} du modèle ($y_{NO} \text{ max} = 214 \text{ mg.Nm}^{-3}$). On applique ensuite ce profil sur le procédé avec la stratégie de commande. Les résultats sont présentés sur la figure 5.13.

Dans ce profil d'échelon de la fraction volatile, f_{vol} passe du point de fonctionnement 79.44% à 82.44% (+3%) entre 1h et 2h. Ensuite, f_{vol} retrouve le point de fonctionnement entre 2h et 3h. La même séquence est répétée ensuite.

Concernant la variable de commande F_{am}^{in} , elle augmente du point de fonctionnement $6900 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$ jusqu'à la valeur max de $7353 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$.

On vérifie sur la dernière figure que le basculement des deux commandes s'effectue bien lors du dépassement de la valeur de référence de y_{NO} . Sur la courbe de y_{O_2} , on voit que la variable est régulée à 4,5% quand la régulation s'effectue sur la boucle d'oxygène, et que sa valeur est plus grande pour la boucle des NOx. De même, pour la courbe de y_{NO} , on voit que sa valeur est à la valeur de référence de 100 mg.Nm^{-3} quand la boucle des NOx est sélectionnée. Concernant le régime transitoire, y_{NO} a moins de dépassement et revient plus rapidement à la valeur de consigne que dans le cas de la boucle d'oxygène, qui est très lente.

Si l'on observe le comportement de Ku_1 et Ku_2 , on observe que leur différence d'échelle est très grande et de l'ordre de 10^2 ($Ku_1 : 10^{-1}$, $Ku_2 : 10^1$). Cette différence rend le basculement stable.

Conclusion : le régime transitoire se passe bien. Il n'y a pas d'instabilité ou de régime transitoire oscillant lors du passage d'une boucle de commande à l'autre. Les amplitudes des régimes transitoires ne sont pas trop importantes.

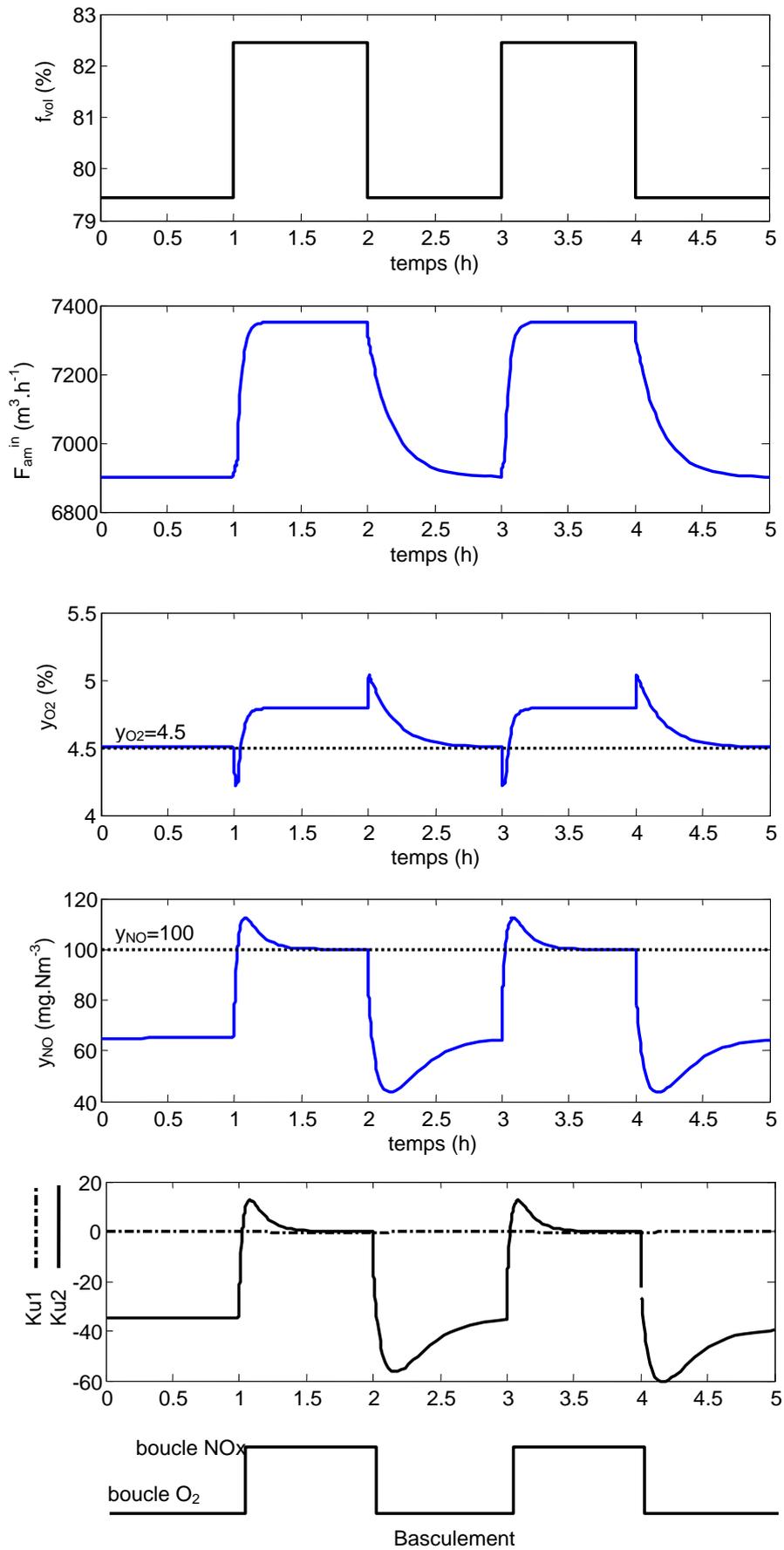


Figure 5.13. Test de basculement des commandes sur les échelons de f_{vol} .

2ème test de basculement : rampe de f_{vol}

Dans le deuxième test, on trouve par essai-erreur un profil de la fraction volatile (f_{vol}) permettant de provoquer sur le modèle en boucle ouverte une rampe de la sortie y_{NO} du modèle dépassant la consigne ($y_{NO} \max = 203 \text{ mg.Nm}^{-3}$). On applique ensuite ce profil sur le procédé avec la stratégie de commande. Les résultats sont présentés sur la figure 5.14.

Dans ce profil, f_{vol} augmente linéairement du point de fonctionnement 79.44% à la valeur de 82.44% (+3%) entre 1h et 2h, ensuite, f_{vol} diminue linéairement de 82.44% à 79.44% (-3%) entre 2h et 3h. Ce profil est refait à remplacer par ce profil est reproduit entre 4h et 6h.

Le débit d'air F_{am}^{in} suit les fluctuations de f_{vol} . Les non linéarités du modèle sont bien visibles.

La sortie y_{O_2} , après une très légère baisse augmente pour suivre l'augmentation du débit d'air. Quand la boucle de régulation d'oxygène est enclenchée, celle-ci baisse de manière plus lente, le réglage de la boucle étant plus lent.

La sortie y_{NO} suit l'augmentation de f_{vol} . A partir de la valeur de référence (100 mg.Nm^{-3}), elle se stabilise avec une erreur statique due à la perturbation non mesurée. Cette erreur est due au temps important dû au régime transitoire.

Au point de fonctionnement, la sortie y_{NO} est inférieure à la consigne (100 mg.Nm^{-3}), Ku_1 est plus grand que Ku_2 , la boucle de commande fonctionnant est donc la boucle d' O_2 . Quand f_{vol} atteint 81%, la sortie y_{NO} dépasse alors la consigne, Ku_2 devient plus grand que Ku_1 , il y a basculement vers la boucle de NOx. Quand f_{vol} diminue, la sortie y_{NO} est proche de la consigne, et il existe une zone transitoire entre 2.1h à 2.25h (9 minutes) avec des oscillations entre les deux boucles de commande.

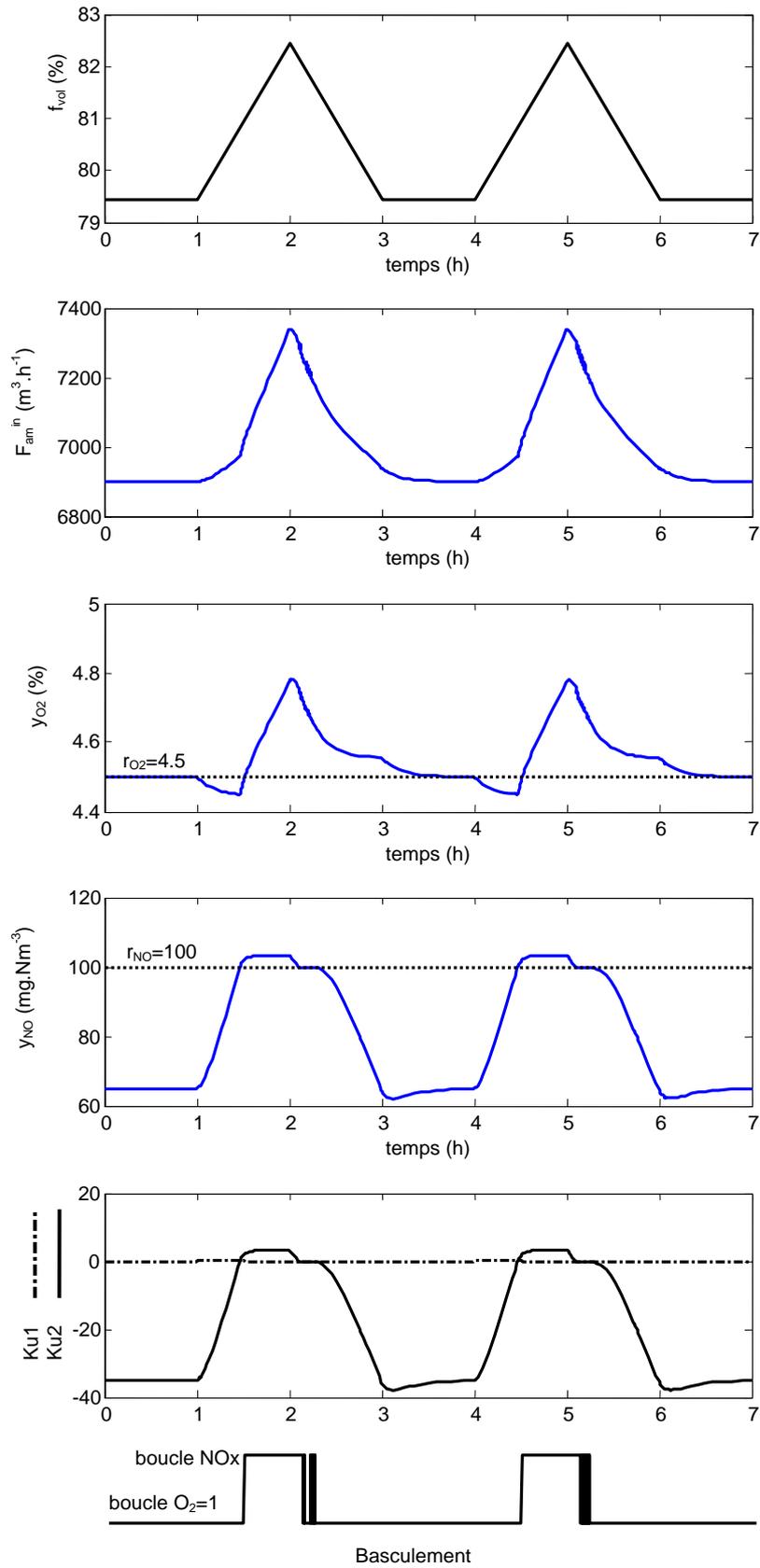


Figure 5.14. Test de basculement des commandes sur les rampes de f_{vol} .

Ce régime d'oscillations est agrandi sur la figure 5.15. Les oscillations sont mises en évidence sur les courbes de F_{am}^{in} et y_{NO} .

On voit que les valeurs de $Ku1$ et $Ku2$ sont très proches : $Ku1$ est négatif car l'oxygène est supérieur à sa valeur de consigne, $Ku2$ est aussi négatif, car y_{NO} passe légèrement en dessous de la valeur de référence. Ces oscillations durent peu de temps, et ce cas est relativement peu probable, car y_{NO} est généralement soumis à de grandes variations d'amplitude. Pour les simulations suivantes, nous utiliserons donc cette stratégie, sans modifications. Par contre, en cas d'implantation sur site réel, une solution devra être envisagée. Cela pourra être par exemple une hystérésis.

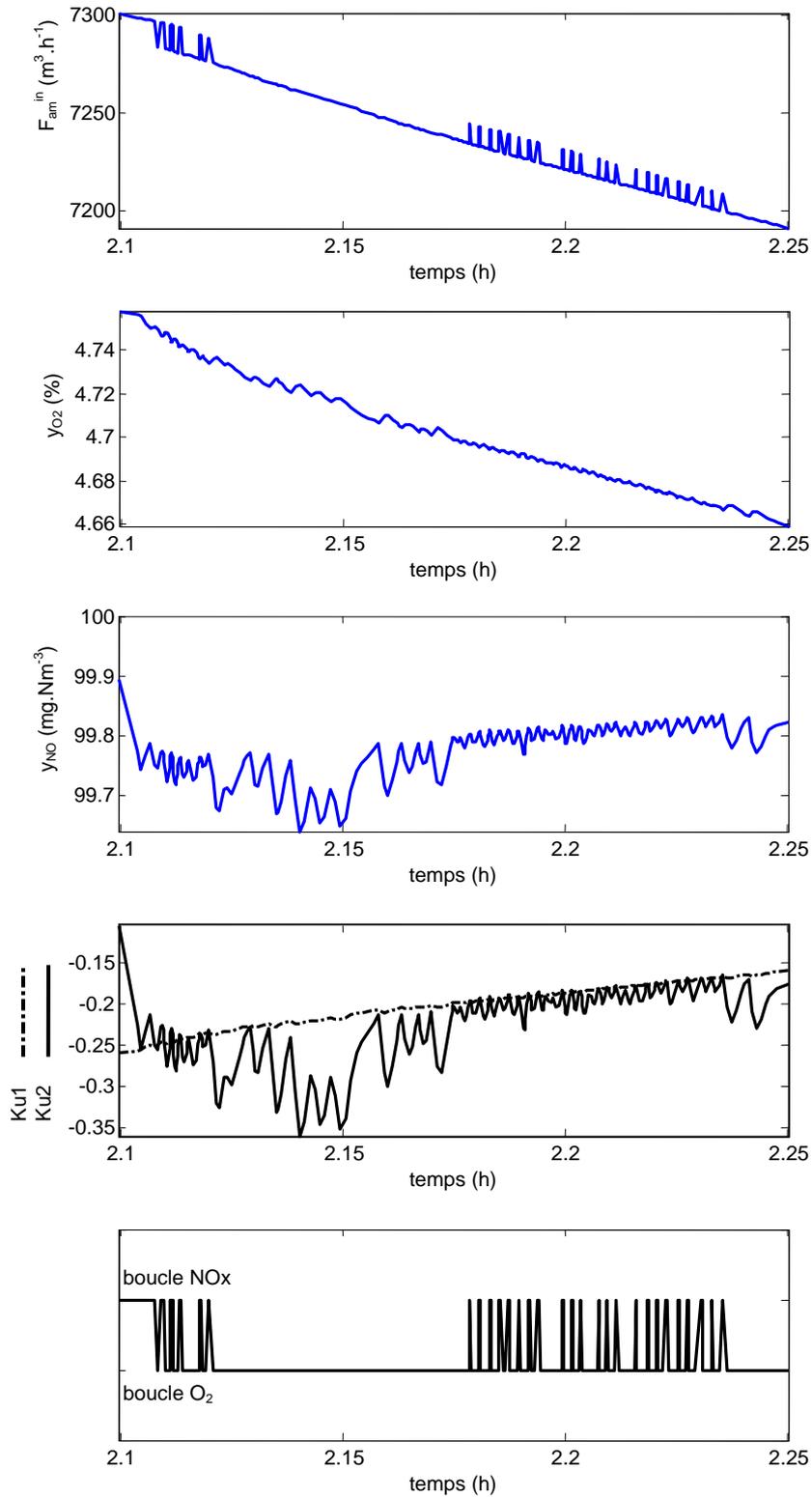


Figure 5.15. Régime transitoire de basculement dans le test des rampes sur f_{vol} .

5.5.2. Comparaison des stratégies en rejet de perturbation non mesurée: f_{vol}

On teste maintenant les différents cas qui peuvent être rencontrés par le four industriel. Dans ce test, on fait varier la fraction volatile qui est considérée la perturbation la plus fréquente dans le site. On applique à nouveau un échelon sur f_{vol} , et on compare les résultats avec la boucle sur l'oxygène seule (PID industriel). Les autres tests sur les autres perturbations non mesurées (l'humidité, la fraction d'azote, les composés volatils issus de la dévolatilisation) donnent des résultats similaires. Ils sont présentés dans l'Annexe E.

Sur la figure 5.16, les résultats de la stratégie proposée sont comparés avec ceux du PID industriel. La fraction volatile, f_{vol} monte du point de fonctionnement 79.44% à la valeur 82.44% (+3%) pendant 2h, avant de revenir à son point initial.

Pour la boucle de régulation industrielle, si la fraction volatile des boues augmente, cela induit une augmentation des réactions de combustion, et donc une consommation plus grande d'oxygène. La boucle de régulation d'oxygène agit donc sur une telle perturbation. Cependant celle-ci va ramener y_{O_2} à sa valeur de consigne de 4,5 %, ce qui n'est pas du tout suffisant pour les NOx, qui dépassent la valeur de la consigne de 100 mg.Nm⁻³. Nous voyons pourtant que les écarts sur le débit d'air entre les deux stratégies ne sont pas très importants, mais que cela induit une forte variation sur les NOx en sortie.

Les variables d'état du lit bouillonnant sont présentées sur la figure 5.17. Pendant l'augmentation de f_{vol} , on voit que l'humidité diminue, la quantité de monoxyde de carbone diminue également. Pour la quantité d'oxygène dans le lit bouillonnant, la boucle de régulation fait baisser la teneur en oxygène, tandis qu'elle est au contraire augmentée avec la stratégie proposée. Pour les teneurs en composés azotés (NH₃ et NOx), NH₃ diminue, tandis que NOx augmente. Enfin, la température du lit bouillonnant est nettement plus faible (de 20°C environ) avec la stratégie proposée.

Les variables d'état du lit post-combustion sont présentées sur la figure 5.18. L'humidité, le monoxyde de carbone, l'ammoniac et la température ont le même comportement que dans le lit bouillonnant. La température du lit post-combustion est également fortement diminuée d'environ 20°C. On vérifie que dans les deux cas le monoxyde de carbone CO reste en dessous des normes autorisées, et reste même inférieur à la valeur du point de fonctionnement.

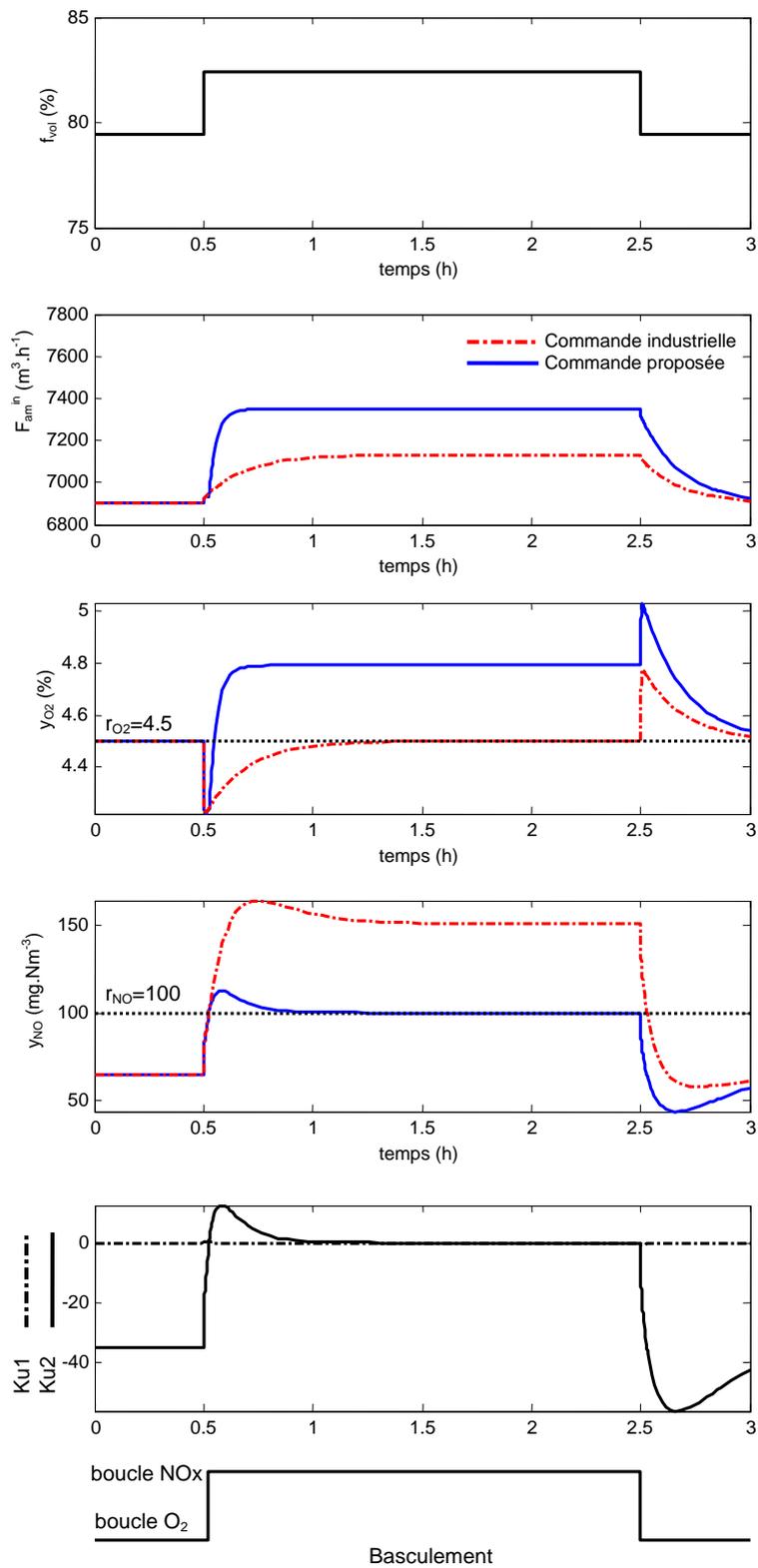


Figure 5.16. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur f_{vol} .

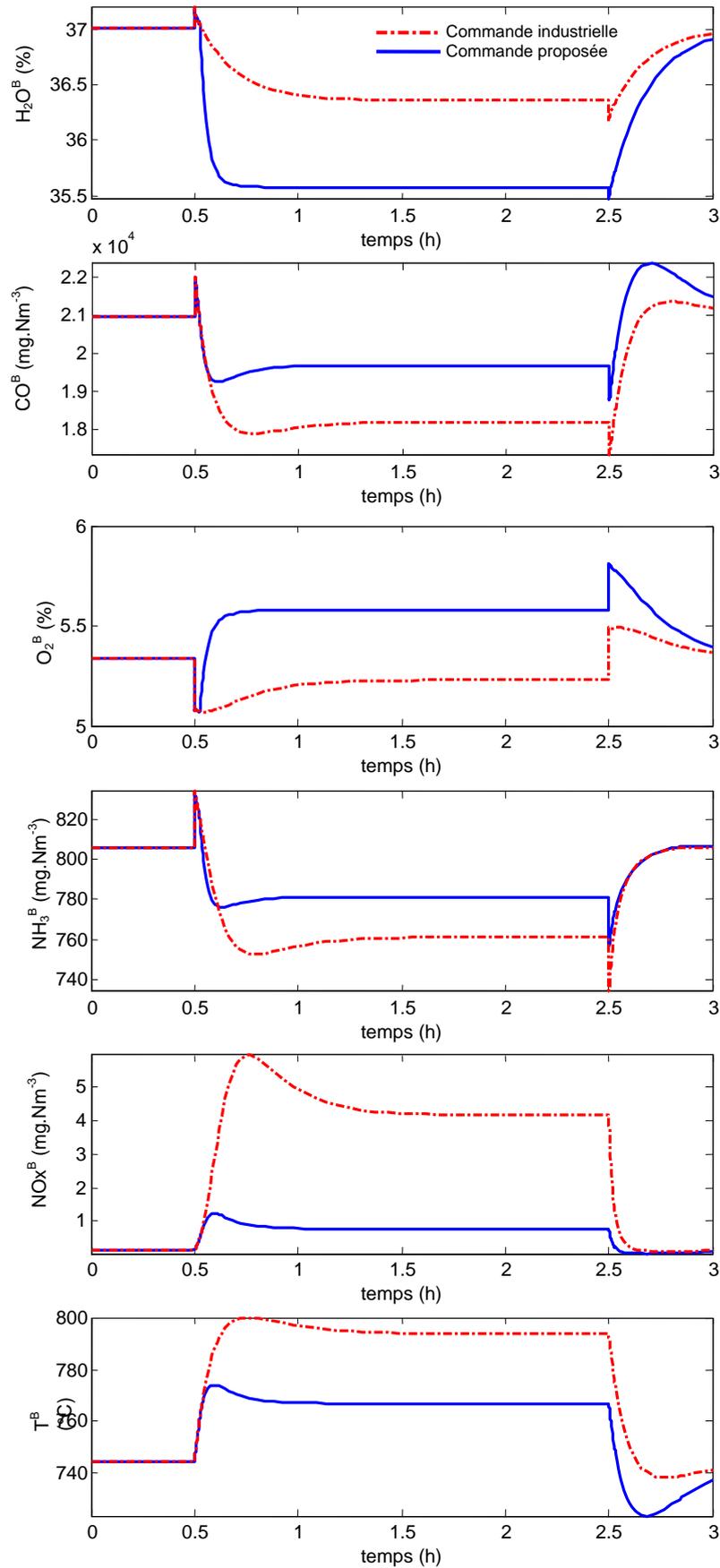


Figure 5.17. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (test sur f_{vol}).

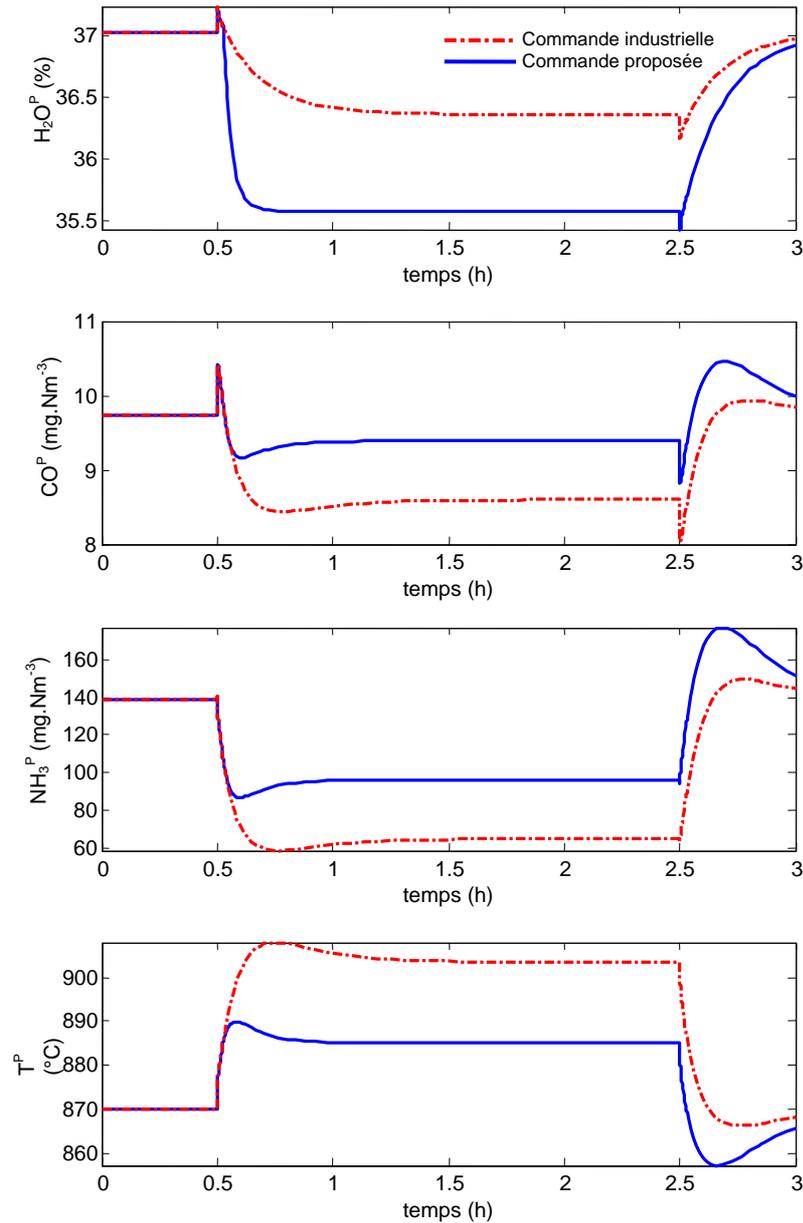


Figure 5.18. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (test sur f_{vol}).

En conclusion, la boucle de régulation d'oxygène seule réagit également à une variation de la fraction volatile des boues. Cependant, étant donné qu'elle régule l'oxygène, cette boucle ne permet pas de garantir que la combustion est optimale (maintien du CO et des NOx en dessous de la valeur maximale autorisée). La stratégie de commande est donc meilleure, et permet de garantir le respect des normes de rejet. De plus, elle n'induit pas beaucoup de différence de comportement du four, et le débit d'air nécessaire reste raisonnable.

5.5.3. Comparaison des stratégies en rejet de perturbation mesurée: le débit des boues

Des variations du débit des boues sont obligatoirement rencontrées dans le site industriel. L'augmentation du débit de boues introduit plus de combustible dans le four, augmentant la combustion : les températures augmentent, les NOx augmentent et l'oxygène diminue. Dans ce test, on fait varier le débit des boues qui est considéré par le modèle comme une perturbation mesurée. Sur la figure 5.19, les résultats de la stratégie proposée sont comparés avec ceux du PI industriel.

Un échelon est appliqué sur le débit de boues (de 900 kg.h^{-1} jusqu'à 1000 kg.h^{-1}). On voit que la différence entre les deux stratégies de régulation n'apparaît qu'au début de l'échelon, de 0.5h à 1h environ. Ensuite, les deux stratégies sont confondues. Lorsque l'échelon de boues intervient, l'oxygène diminue de manière prévisible. La boucle de régulation de l'oxygène (PI industriel) réagit donc en augmentant le débit d'air entrant, ce qui permet de remettre l'oxygène à sa valeur de consigne, et dans le même temps, diminuer les NOx. La stratégie proposée n'a pas tout à fait le même régime transitoire : le débit d'air entrant réagit de manière beaucoup plus rapide à l'échelon de boues, permettant un dépassement transitoire des NOx moins élevé. Puis, lorsque y_{NO} rejoint sa valeur de consigne, la commande bascule sur la boucle d'oxygène, ce qui explique les cassures dans les courbes au temps 1h environ.

Les variables d'état du lit bouillonnant sont présentées sur la figure 5.20. On voit que globalement la différence entre les deux stratégies est peu importante et principalement quantitative. Pendant l'augmentation du débit de boues, on voit que l'humidité connaît un pic puis revient à une valeur stable. La quantité de monoxyde de carbone augmente globalement. Pour la quantité d'oxygène dans le lit bouillonnant, la différence entre les deux stratégies est peu importante, ainsi que pour les amines (NH_3), elle par contre importante pour les NOx. Enfin, la température du lit bouillonnant est plus faible en régime transitoire (de 20°C environ) avec la stratégie proposée.

Les variables d'état du lit post-combustion sont présentées sur la figure 5.21. L'ensemble des variables d'état sont relativement peu différent dans les deux cas. Plus précisément, les pics de variation en régime transitoire sont moins importants dans le cas de la stratégie proposée, garantissant un meilleur fonctionnement du four.

En conclusion, la boucle de régulation d'oxygène seule réagit également à une variation de la fraction volatile des boues. Cependant, étant donné qu'elle régule l'oxygène, cette boucle induit de forts dépassements transitoires de NOx et des températures. La stratégie de commande est donc meilleure en régime dynamique.

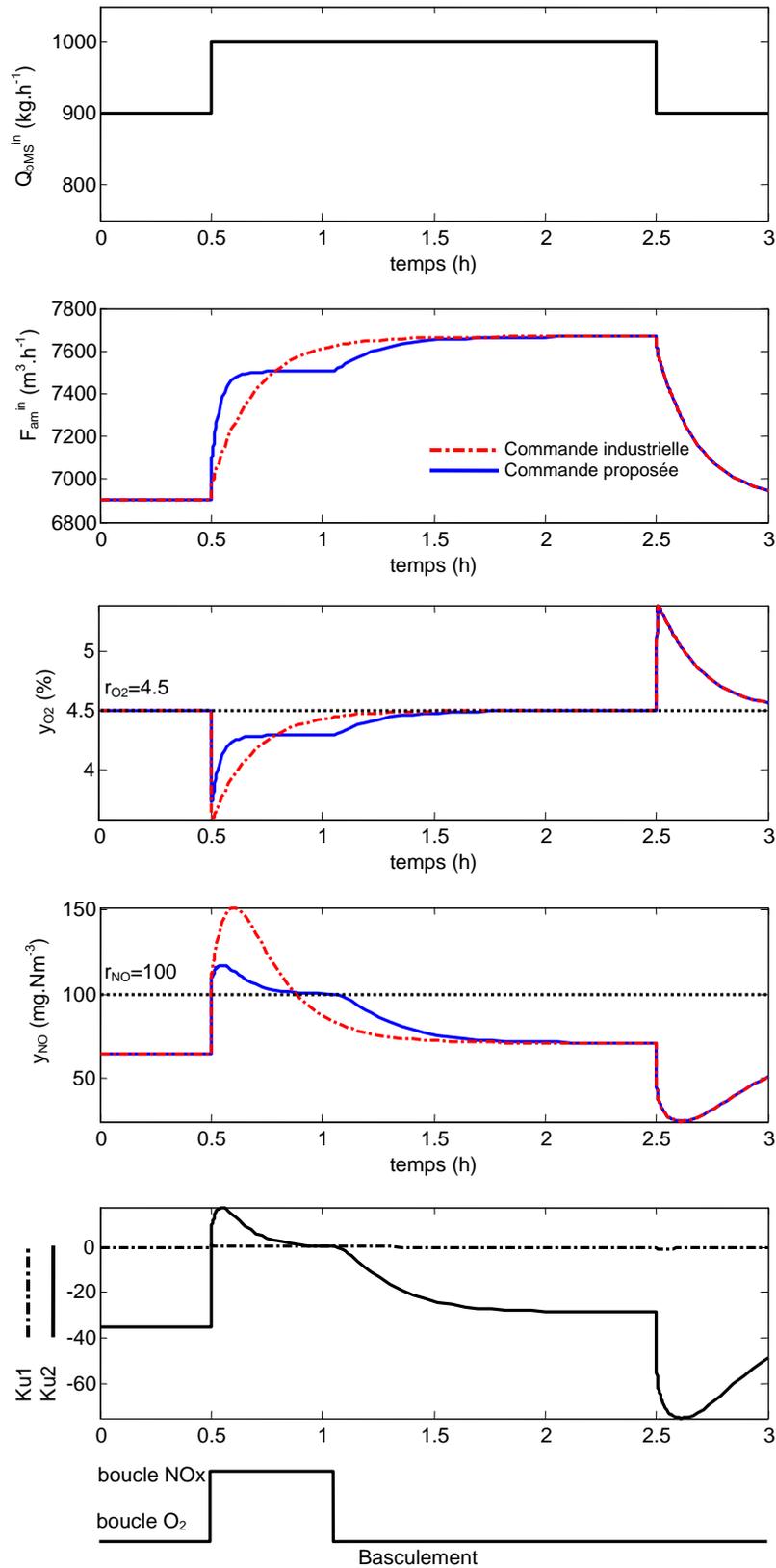


Figure 5.19. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur les boues.

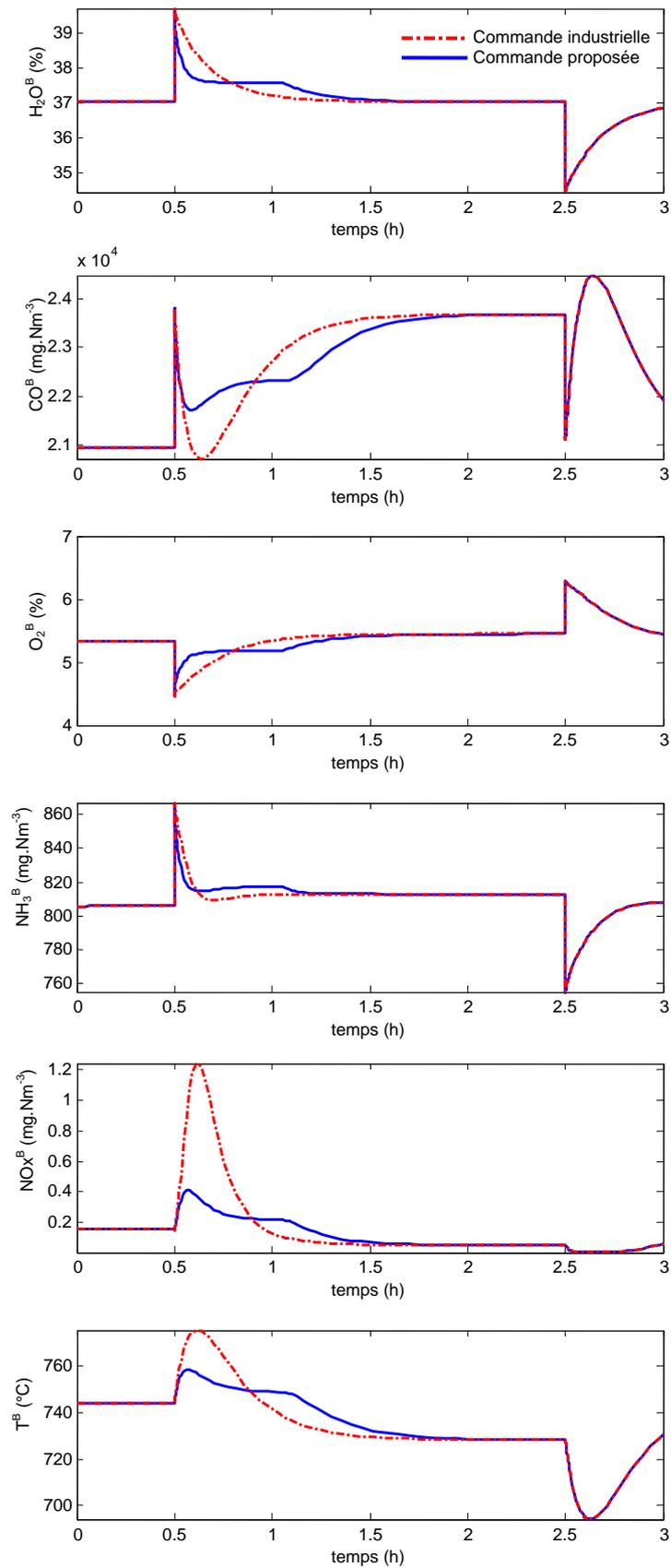


Figure 5.20. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (test sur les boues).

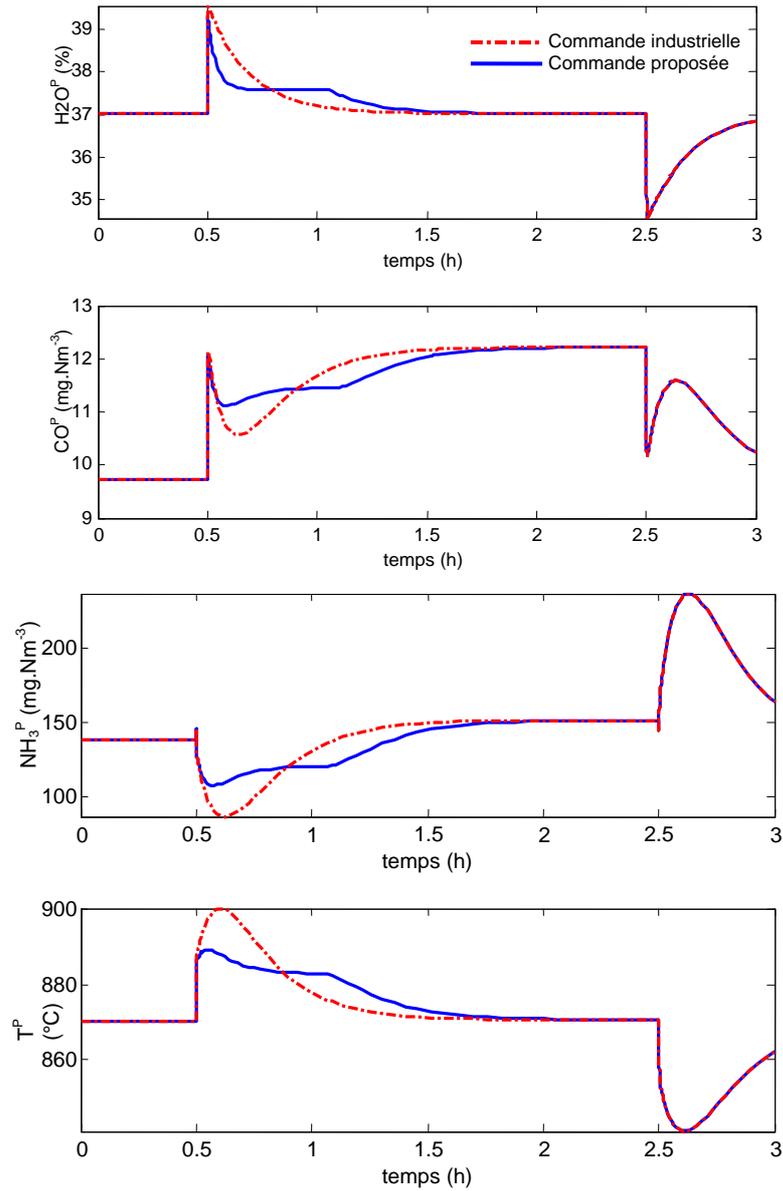


Figure 5.21. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (test sur les boues).

5.5.4. Comparaison des stratégies de commande sur les mesures industrielles

La stratégie de commande proposée est simulée maintenant à l'aide des mesures industrielles. Les sorties du modèle et le débit d'air sont comparés aux mesures. La consigne de y_{NO} est mise à 100 mg.Nm^{-3} . Les tests sont effectués sur deux fichiers de dépassement des NO_x : le fichier 2 (NO_x à 300 mg.Nm^{-3}) et le fichier 3 (NO_x à 500 mg.Nm^{-3}). Les résultats sont similaires. Le test de la commande sur les mesures du fichier 3 est présenté en Annexe F.

Test de la commande sur les mesures du fichier 2 :

Les résultats sont présentés sur la figure 5.22. La stratégie de commande est réalisée à partir du temps $t=42\text{h}$. Le débit d'air, après un grand pic à $8500 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$, est maintenu à $7000 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$, une valeur plus élevée que les mesures. L'oxygène (y_{O_2}) est à une valeur légèrement supérieure à 4,5% (environ 5,3%). Les NO_x (y_{NO}) dans le cas de la stratégie proposée sont maintenues à la valeur de consigne (100 mg.Nm^{-3}). La quantité de monoxyde de carbone y_{CO} est très faible. Les températures ont une différence de plus de 30°C d'écart entre les deux stratégies de commande, ce qui est très important. Enfin le basculement entre les deux boucles de commande est mis en évidence sur les deux dernières figures. Il semble que, contrairement à ce que l'on a supposé dans les tests précédents, la stratégie de commande ait tendance à osciller entre les deux boucles. Ces oscillations ne sont pas visibles sur les autres courbes, les transitions étant trop courtes. Ceci confirme cependant qu'il faudra améliorer la boucle pour éviter cet effet.

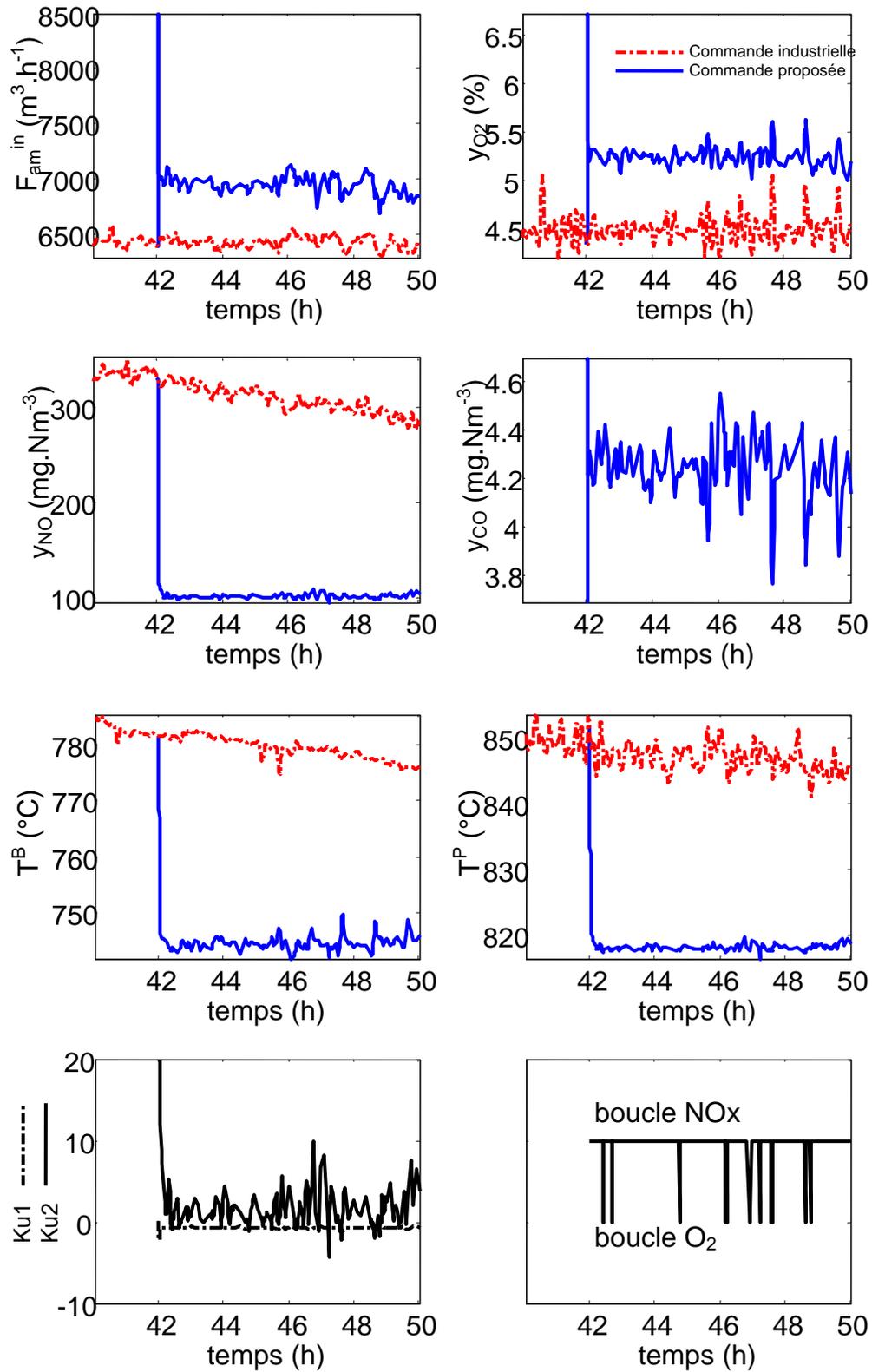


Figure 5.22. Comparaison des stratégies de commande sur les mesures industrielles du fichier 2.

5.6. Conclusion

Dans ce chapitre, on a tout d'abord établi le cahier des charges de la commande et procédé à une analyse du comportement du modèle pour établir une stratégie de commande pertinente. L'étude nous a amené à prendre comme variable d'action le débit d'air entrant dans le four. Contrairement à une action sur le débit de boues entrant dans le four, le débit d'air permet de maintenir le régime de fonctionnement du four. Cette variable permet d'agir indirectement sur la température du four par le fait que l'air est chauffé par un échangeur de chaleur avec les gaz sortants du four. Une augmentation du débit d'air induit donc toujours un refroidissement du four, ce qui limite la formation des NOx.

La stratégie de commande est donc établie, et nécessite un basculement entre deux boucles de régulation : la boucle de régulation de l'oxygène, qui fonctionne quand il n'y a pas de problèmes de dépassement de NOx, et la boucle de régulation des NOx, qui régule les NOx à une valeur inférieure à la limite autorisée. Les paramètres du correcteur de la boucle de régulation des NOx ont été calculés, et les performances de cette boucle ont été testées en simulation. La limitation principale de cette régulation est due aux contraintes sur le débit d'air.

Il a ensuite été procédé à des simulations permettant de comparer les performances des deux stratégies industrielles : des échelons de perturbations ont été effectués. Les résultats ont montré que la stratégie proposée permet d'améliorer le fonctionnement du four et de garantir les rejets de NOx, non seulement en régime établi, mais aussi en régime transitoire. Les simulations ont ensuite été effectuées sur les fichier industriels, qui ont confirmé l'intérêt d'une telle stratégie de commande.

Avant de pouvoir tester cette commande sur site industriel, il reste à améliorer le basculement entre les deux boucles, qui a tendance à osciller. De plus, cette commande donne des variations brutales sur le débit d'air, et les actions sont relativement longues. Les performances pourraient être améliorées en établissant des algorithmes de commande avancés utilisant le modèle non linéaire, et permettant donc de mieux anticiper l'effet des perturbations sur les NOx. Cependant, les résultats sont suffisants pour montrer qu'une stratégie de commande pertinente permet de maîtriser les émissions de NOx.

Conclusion générale et perspectives

L'objectif de ce travail était de modéliser un incinérateur de boues en lit fluidisé en vue de maîtriser les émissions d'oxyde d'azote (NOx). Nous pouvons dire que cet objectif est atteint.

La première difficulté a été le manque d'études sur le sujet. Il a fallu adapter une bibliographie tournée vers d'autres combustibles (charbon, biomasse, déchets) aux boues des station d'épuration. Par contre, des travaux importants de caractérisation du comportement des boues en combustion ont permis de formuler des hypothèses argumentées sur l'incinération des boues en lit fluidisé.

La deuxième difficulté a été liée à la complexité des phénomènes mis en jeu, conduisant à un modèle lourd à mettre en œuvre.

La troisième difficulté, pour la validation du modèle, est le fait de ne pas disposer de mesure dynamique de la composition des boues. Ce point est un obstacle important à l'amélioration du fonctionnement du four.

Ces difficultés ont cependant pu être surmontées, et nous avons validé le modèle avec des mesures industrielles et proposé une stratégie de commande.

Le chapitre 1 permet de poser le contexte général de l'incinération des boues en lit fluidisé. L'analyse de la composition des boues permet de mettre en évidence une forte teneur en humidité, fraction volatile et cendres. De plus, la teneur en azote est beaucoup plus importante que pour les autres combustibles. La partie carbonée particulaire (carbone fixe) est très faible. L'étude bibliographique des commandes en lit fluidisé a montré la nécessité d'établir un modèle non linéaire de connaissance explicitant la formation et la réduction des oxydes d'azote (NOx). La stratégie de commande doit stabiliser le procédé, malgré les fluctuations de la composition des boues, et maintenir un excès d'air suffisant pour assurer une combustion complète (boucle de régulation d'oxygène).

Le chapitre 2 détaille les phénomènes de combustion des boues. A partir de la littérature existante, les étapes suivantes sont détaillées :

- Séchage et dévolatilisation des boues. Cette étape est mal connue et dépend à la fois de la composition des boues et des conditions opératoires. On utilise donc une répartition des gaz empirique.

- Le principe de formation et de réduction des oxydes d'azote (NO_x), qui se forment à partir de l'azote des boues, par l'intermédiaire des composés NH₃ et HCN.

Enfin, le schéma réactionnel de référence est présenté.

Le chapitre 3 établit les équations du modèle. Les hypothèses principales sont :

- séparation du four en deux zones parfaitement agitées (lit bouillonnant et lit post-combustion).
- pas de solides réactifs dans le four.

Le modèle comporte 16 variables d'états. Sept réactions chimiques ont été sélectionnées dans le lit bouillonnant et six dans le lit post-combustion. Le modèle comporte trois entrées mesurées (débit de boues, débit d'air, température de l'air injecté dans le four) et trois entrées non mesurées (humidité, fraction volatile, teneur en azote). Les paramètres sont très nombreux. Ceux qui vont influencer sur la dynamique du modèle sont les paramètres cinétiques.

Le chapitre 4 est l'étape de validation du modèle avec les mesures industrielles. Afin de réduire le nombre de variables d'états, celui-ci a été adapté :

- Les variables d'états les moins importantes, et celles qui sont non mesurables sont négligées.
- Le modèle est séparé en deux sous modèles : un modèle de combustion et un modèle des NO_x.

De plus la composition des boues (humidité, fraction volatile) a été en partie reconstituée par des bilans statiques utilisant les mesures de température et d'oxygène. Les valeurs des paramètres du modèle sont très différentes de la littérature. Elles permettent une adaptation du modèle aux hypothèses de simplification. Cependant pour chaque fichier disponible, nous avons été obligés d'estimer un paramètre supplémentaire lié à la composition des boues ou à la répartition des composés volatils. Avec cette adaptation pour chaque fichier, les résultats de validation sont suffisants pour valider les hypothèses du modèle.

Le chapitre 5 a permis d'utiliser ce modèle validé en simulation pour établir une stratégie de commande pertinente. Le choix s'est porté sur une amélioration de la boucle de régulation d'oxygène : celle-ci fonctionne quand il n'y a pas de dépassement de NO_x, et bascule sur une boucle de régulation de NO_x en cas de dépassement de la norme autorisée. Cette stratégie fonctionne car la température de l'air est liée au débit d'air entrant et permet donc de refroidir le four. Cette régulation montre une amélioration certaine par rapport à la boucle existante.

Concernant le modèle, les améliorations suivantes pourraient être apportées :

- Avoir plus de connaissances sur la dévolatilisation et la répartition des composés volatils.
- Tenir compte du carbone fixe.
- Tenir compte des cendres.

Le modèle serait alors encore plus complexe, puisque on ne pourrait plus faire l'hypothèse hydrodynamique des réacteurs parfaitement agités à cause de la phase solide.

En ce qui concerne la validation du modèle, et son utilisation éventuelle en ligne, il faudrait pouvoir :

- Obtenir des mesures supplémentaires sur le débit de gaz sortant, les concentrations de l'ammoniac (NH_3), de la vapeur d'eau (H_2O), ...
- Mesurer la composition des boues en entrée. Ceci semble techniquement impossible. Toutefois, certaines corrélations pourraient être établies à partir de mesures en amont sur l'effluent liquide à traiter.

Ces améliorations permettraient d'aller plus loin dans la connaissance des phénomènes, et de pouvoir utiliser un modèle pertinent dans une stratégie de commande avancée. L'objectif de commande est de stabiliser le fonctionnement du four afin de maîtriser les NO_x , malgré les fluctuations de l'entrée du four (composition, quantité des boues). Pouvoir anticiper la composition des boues (humidité, fraction volatile, teneur d'azote) permet d'établir une stratégie de commande anticipant l'effet sur le comportement du four. Ainsi une commande prédictive respectant les contraintes de fonctionnement serait bien adaptée.

Le travail a permis de faire le point sur les connaissances actuelles sur les émissions de NO_x d'un incinérateur de boues en lit fluidisé. Il a été montré qu'un certain nombre de connaissances supplémentaires permettrait d'aller plus loin. Cependant, au vu de la complexité des phénomènes mis en jeu, les résultats sont excellents et contribuent à l'amélioration de la maîtrise des émissions de NO_x dans la combustion de boues en lit fluidisé.

Références

- [Aho *et al.*, 1993] Aho M.J., Hämäläinen J.P., Tummavuor J.L., Importance of solid-fuel properties to nitrogen-oxide formation through HCN and NH₃ in small-particle combustion. *Combustion Flame*, 1993, 95, 22-30.
- [Basu et Fraser, 1991] Basu P., Fraser S.A., *Circulating Fluidised bed boilers: design and operations*, Butterworth-Heinemann, USA, 1991.
- [Bicocchi, 1998] Bicocchi S., *Les polluants et les techniques d'épuration des fumées (cas des unités de destruction thermique des déchets) : Etat de l'art*, Paris : Tec & Doc, Lavoisier, 1998.
- [Bittanti *et al.*, 2000] Bittanti S., Bolzern P., Campi M.C., Marco A.D., Poncia G. and Prandoni W., A model of a bubbling fluidized bed combustor oriented to char mass estimation, *IEEE transactions on control systems technology*, 8 (2), 2000
- [Boeglin, 2000] Boeglin J.C., *Traitements et destinations finales des boues résiduelles*, Techniques de l'ingénieur, Dossier : G3944, 2000.
- [Borne, 1993] Borne P., *Analyse et régulation des processus industriels : Tome 1, régulation continue*, Paris : Ed. Technip, 1993.
- [Bourven et Roux, 1997] Bourven H. et Roux J.C., Quelles sont les nouvelles applications des lits fluidisés, *Euroforum: 3 days to analyse the best of Europe in Thermal technologies*, Paris, February 25-27, 1997.
- [Chen *et al.*, 2001] Chen Z., Ignowski J., Kelly B., Linjewile T.M., Agarwal P.K., Mathematical modeling of fluidized bed combustion. 4 : N₂O and NO_x emissions from the combustion of char, *Fuel*, 80, 1259-1272, 2001.
- [Corriou, 2001] Corriou J.P., *Automatique et procédés chimiques*, Paris : Hermès science, 2001.
- [Cui et Stubington, 2001] Cui Y. et Stubington J.F., A mathematical model of in-bed char combustion of Australian coals in PFBC, *Fuel*, 80, 2049-2056, 2001.
- [Delaplace, 1980] Delaplace L., *Equipements de combustion pour combustibles solides – Introduction, Domaines d'application*, Techniques de l'ingénieur, Dossier : B117_11_1980, 1980.
- [De Larminat, 2000] De Larminat, P., *Automatique – commande des systèmes linéaires*, Paris : Hermès, 1996 (2nd Edition).
- [Directive 2000/76/CE] DIRECTIVE 2000/76/CE DU PARLEMENT EUROPEEN ET DU CONSEIL du 7 décembre 2000 sur l'incinération des déchets.
- [Eyglunent, 1997] Eyglunent B., *Manuel de thermique : théorie et pratique, 2^e édition revue et augmentée*, Paris : Hermès, 1997.
- [Foulard *et al.*, 1987] Foulard C., Gentil S., Sandraz J.P., *Commande et régulation par ordinateur numérique – De la théorie aux applications*, Eyrolles, 1987 (2nd Edition).
- [Garcia *et al.*, 1989] Garcia C.E., Prett D.M., Morari M., Model predictive control: Theory and practice – a survey, *Automatica*, 23 (3), 335-348, 1989.

- [Gay, 2002] Gay J., *Lutte contre la pollution des eaux - Valorisation énergétique des boues*, Techniques de l'ingénieur, Dossier : G1455, 2002.
- [Glarborg *et al.*, 2003] Glarborg P., Jensen A.D., Johnsson J.E., Fuel nitrogen conversion in solid fuel fired systems, *Progress in Energy and Combustion Science*, 29, 89-113, 2003.
- [Gogebakan et Selçuk, 2004] Gogebakan Y., Selçuk N., Assessment of a model with char attrition for a bubbling atmospheric fluidized-bed combustor, *Combust. Sci. and Tech.*, 176, 799-818, 2004.
- [Gratias, 2002] Gratias A., *Contribution à l'étude de l'incinération des boues résiduaires humides en réacteur à lit fluidisé : influence des conditions opératoires sur les émissions des micros polluants gazeux et des métaux lourds*, Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, Toulouse, France, 2002.
- [Guibet, 1989] Guibet J.C., *Les carburants et la combustion*, Techniques de l'ingénieur, Dossier : B2520_11_1989, 1989.
- [Guibelin, 2000] Guibelin E., *Lutte contre la pollution des eaux – Elimination finale des boues d'épuration*, Techniques de l'ingénieur, Dossier : G1451, 2000.
- [Hall, 1999] Hall J., Ecological and economical balance for sludge management options, *Proceedings of the workshop on "Problems around sludge"*, session 3: Technology and innovative options related to sludge management, Stresa, Italy, Vol.3, 155-172, 1999.
- [Howard, 1989] Howard J.R., *Fluidized bed technology: principles and applications*, Adam Hilger, 1989.
- [Ikonen et Kortela, 1994] Ikonen E., Kortela U., Dynamic model for a bubbling fluidized bed coal combustor, *Control Eng. Practice*, 2 (6), 1001-1006, 1994.
- [Isidori, 1995] Isidori A., *Nonlinear control systems*, Springer Verlag, 1995.
- [Jensen *et al.*, 1995] Jensen A., Johnsson J.E., Andries J., Laughlin K., Read G., Mayer M., Baumann H., Bonn B., Formation and reduction of NO_x in pressurized fluidized bed combustion of coal, *Fuel*, 74 (11), 1555-1569, 1995.
- [Jensen et Johnsson, 1997] Jensen A., Johnsson J.E., Modelling of NO_x emissions from pressurized fluidized bed combustion – a parameter study, *Chemical Engineering Science*, 52 (11), 1715-1731, 1997.
- [Jia *et al.*, 2003] Jia Y., Kokame H., Lunze J., Simultaneous adaptive decoupling and model matching control of a fluidized bed combustor for sewage sludge, *IEEE transactions on control systems technology*, 11 (4), 2003.
- [Johnsson, 1993] Johnsson J.E., Formation and reduction of nitrogen oxides in fluidized-bed combustion, *Fuel*, 73(9), 1398-1415, 1993.
- [Khiari, 2006] Khiari B., *Modélisation et simulation de l'incinération en lit fluidisé de boues résiduaires*, Thèse de Doctorat, Université de Pau et des pays de l'Adour (France) et l'Ecole Nationale d'Ingénieurs de Monastir (Tunisie), 2006.
- [Kortela *et al.*, 1994] Kortela U., Ikonen E., Kotajärvi H. and Heikkinen P., Modelling, simulation and control of fluidized bed combustion process, *International Journal of Power and Energy Systems*, 14 (3), 1994.

- [Lassagne, 1999] Lassagne L., *Conception et réalisation d'un pilote de combustion en lit fluidisé circulant Caractérisation et dosage des HAP gazeux a l'émission: Développement d'une méthodologie analytique par micro extraction en phase solide*, Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, Saint-Martin d'Hères, France, 1999.
- [Le Page, 1981] Le Page C., *Modélisation du comportement statique et dynamique d'une unité de craquage catalytique à lits fluidisés – Application à la simulation pédagogique*, Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, Grenoble, France, 1981.
- [Li et al., 2004] Li K., Thompson S., Pent J., Modelling and prediction of NO_x emission in a coal-fired power generation plant, *Control Engineering Practice*, 12, 707-723, 2004.
- [Liu et Gibbs, 2002] Liu H., Gibbs B.M., Modelling of NO and N₂O emissions from biomass-fired circulating fluidized bed combustors, *Fuel*, 81, 271-280, 2002.
- [Marias, 1999] Marias F., *Procédé d'incinération d'un déchet modèle : de l'approche physique aux simulations en lit fluidisé*, Thèse de Doctorat, Université de PAU, Pau, France, 1999.
- [Martin, 2006] Marias H., *Etude de la commande d'un incinérateur de charbon en lit fluidisé*, Projet de fin d'études de Master Recherche, GIPSA-lab, INP de Grenoble, Grenoble, France, 2006.
- [McKendry, 2002] McKendry P., Review paper: Energy production from biomass: part 1 - overview of biomass, part 2 - conversion technologies, *Bioresource Technology*, 83, 37-54, 2002.
- [Mukadi, 1998] Mukadi L.S., *Modélisation et simulation d'un réacteur à lit fluidisé circulant interne pour le traitement thermique de déchets solides industriels*, Thèse de Doctorat, Université de Montréal, Montréal, Canada, 1998.
- [NF EN 14346] Caractérisation des déchets - Calcul de la teneur en matière sèche par détermination du résidu sec et de la teneur en eau, mars 2007, NF EN14346.
- [Pilling, 1997] Pilling M.J., *Low-temperature combustion and autoignition*, Volume 35 in the series of "Chemical kinetics", Elsevier Science B.V., 1997.
- [Rapport annuel d'assainissement 2006] *Rapport annuel sur le prix et la qualité du service public d'assainissement intercommunal de l'agglomération grenobloise, 2006.* http://www.la-metro.org/fr/environnement/pdf/Rapport_annuel_assainissement_2006.pdf.
- [Reddy et Mohapatra, 1994] Reddy G.V., Mohapatra S.K., A mathematical model for exit gas composition in a 10 MW fluidized bed coal combustion power plant, *Energy Convers. Mgmt*, 35 (12), 1049-1060, 1994.
- [Ron, 1995] Ron Z., Courses & lectures at Helsinki Univ. of Technol., N°17 : Fluidised bed combustion, 2005, <http://users.tkk.fi/~rzevenho/lectures>.
- [Shakourzadeh, 1992] Shakourzadeh K., *Calcul des réacteurs à lits fluidisés*, Techniques de l'ingénieur, Dossier : J4100, 1992.
- [Shimizu et al., 2007] Shimizu T., Toyono M., Ohsawa H., Emissions of NO_x and N₂O during co-combustion of dried sewage sludge with coal in a bubbling fluidized

- bed combustor, *Fuel*, 86 (7-8), 957-964, 2007.
- [Stephanopoulos, 1984] Stephanopoulos G., *Chemical process control – an introduction to theory and practice*, Prentice-Hall INC, Englewood Cliffs, 1984.
- [Stubenberger *et al.*, 2008] Stubenberger G., Scharler R., Zahirovic S., Obernberger I., Experimental investigation of nitrogen species release from different solid biomass fuels as a basis for release models, *Fuel*, 87, 793-806, 2008.
- [Toupance *et al.*, 2004] Toupance G., Person A., Le Moullec Y., Masclet P., Perros P.E., *Pollution atmosphérique gazeuse – Mesure des gaz*, Techniques de l'ingénieur, Dossier : P4031, 2004.
- [Tran *et al.*, 2007] Tran K.Q., Kilpinen P., Kumar N., In-situ catalytic abatement of NO_x during fluidized bed combustion – a literature study, *Applied Catalysis B: Environmental*, 2007.
- [Tua, 1997] Tua T., *Centrales à lit fluidisé sous pression*, Techniques de l'ingénieur, Dossier : B8925, 1997.
- [Werther et Ogada, 1999] Werther J., Ogada T., Sewage sludge combustion, *Progress in Energy and Combustion Science*, 25, 55-116, 1999.
- [Wu *et al.*, 2007] Wu C., Tree D., Baxter L., Reactivity of NH₃ and HCN during low-grade fuel combustion in a swirling flow burner, *Proceedings of the Combustion Institute*, 31, 2787-2794, 2007.
- [Zhou *et al.*, 2004] Zhou H., Flamant G., Gauthier D., DEM-LES of coal combustion in a bubbling fluidized bed, Part I and Part II, *Chemical Engineering Science*, 59, 4193-4215, 2004.

Annexes

Annexe A. Calcul des masses volumiques des gaz

Propriété des gaz parfaits :

Le comportement des gaz parfaits est décrit par l'équation (A.1) :

$$pV = nRT \quad (\text{A.1})$$

Cette équation donne la relation entre la pression, le volume et la température pour une quantité de gaz constante. R est la constante des gaz parfaits et n la quantité de matière. Pour calculer la masse volumique du gaz en fonction de la température, on introduit la masse m_i du composant i (kg) en remplaçant n par m_i/M_i , M_i est la masse molaire de composant i ($\text{kg}\cdot\text{mol}^{-1}$). La masse volumique du gaz parfait s'écrit alors :

$$\rho_{i(T)} = \frac{pM_i}{RT} \quad (\text{A.2})$$

Calcul de la masse volumique de l'air $\rho_{a(T)}$:

A la pression atmosphérique et en assimilant l'air à un gaz parfait, l'équation A.2 s'écrit :

$$\rho_{a(T)} = \frac{P_0 M_{air}}{RT} \quad (\text{A.3})$$

Où :

- P_0 désigne la pression atmosphérique, 101300 Pa.
- R est la constante universelle des gaz parfaits, $8,314 \text{ J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$.
- M_{air} est la masse molaire de l'air :

$$M_{air} = 0,21 \times M_{O_2} + 0,79 \times M_{N_2} = 0,029 \text{ kg}\cdot\text{mol}^{-1} \quad (\text{A.4})$$

Calcul de la masse volumique du gaz sortant du four $\rho_{g(T)}$:

Dans le four à lit fluidisé, la partie gazeuse est constituée de l'air entrant et du mélange gazeux produit par la combustion des boues. En toute rigueur, la masse volumique du gaz change avec la composition des gaz et leur température. On suppose que le mélange gazeux se comporte comme un mélange idéal de gaz parfaits, la pression étant la pression atmosphérique. L'équation A.2 s'écrit :

$$\rho_{g(T)} = \frac{P_0 M_{mel}}{RT} \quad (\text{A.5})$$

Où M_{mel} est la masse molaire du mélange gazeux, il est égal à :

$$M_{mel} = \sum \alpha_i M_i \quad (\text{A.6})$$

α_i est la fraction molaire de gaz i dans le lit, M_i est la masse molaire de gaz i .

On suppose que la combustion est complète dans le four. Ainsi les composés gazeux principaux sont : O_2 , N_2 , CO_2 , H_2O . Par exemple, dans un incinérateur à lit fluidisé alimenté en boues humides (siccité < 30%), la composition des fumées est la suivante :

$$O\% / CO_2\% / N_2\% / H_2O\% = 4\% / 7\% / 47\% / 42\% \text{ (%volumique)} \text{ [Guibelin, 2000]}$$

Avec cette composition, on a :

$$M_{mel} = 0,04 \times M_{O_2} + 0,07 \times M_{CO_2} + 0,47 \times M_{N_2} + 0,42 \times M_{H_2O} = 0,025 \text{ kg.mol}^{-1} \quad (\text{A.7})$$

M_{mel} est plus petit que la masse molaire de l'air ($0,029 \text{ kg.mol}^{-1}$), c'est-à-dire que le gaz sortant du four est plus léger que l'air en raison de sa forte teneur en vapeur d'eau dans le gaz (autour de 40%).

Annexe B. Calcul de la hauteur du lit bouillonnant

Dimensions et paramètres opératoires du four

Signification	Valeur	Unité
Hauteur	6	m
Diamètre	4,17	m
Masse de sable	14000	kg
Débit d'air de fluidisation	Typiques : 6500 Min : 5000 Max : 8500	m ³ .h ⁻¹
Température du lit bouillonnant	Typiques : 760 Min : 700 Max : 840	°C

Tableau B.1. Dimensions et paramètres opératoires du four (données industrielles).

Calcul de la hauteur du lit bouillonnant par corrélations empiriques

Les corrélations empiriques sont issues des références [Howard, 1981] et [Shakourzadeh, 1992]. Les valeurs des paramètres opératoires prises en compte sont les valeurs typiques.

- Vitesse minimale de fluidisation U_{mf}

$$U_{mf} = \frac{\mu}{\rho_g d_s} \text{Re}_{mf} \quad (\text{B.1})$$

$$\text{Avec } \text{Re}_{mf} = [33,7^2 + 0,0408 \text{Ar}]^{0,5} - 33,7 \quad (\text{B.2})$$

$$\text{Ar} = d_s^3 \frac{g}{\mu^2} \rho_g (\rho_s - \rho_g) \quad (\text{B.3})$$

Où :

- Re_{mf} est le nombre de Reynolds en minimum de fluidisation ;
- Ar est le nombre d'Archimède ;
- d_s, ρ_s sont la taille et la masse volumique du sable, $d_s=1\text{mm}$, $\rho_s=2500 \text{ kg.m}^{-3}$;
- ρ_g est la masse volumique du gaz, ici, le gaz est l'air dans la température du lit bouillonnant en 760°C , $\rho_{g(760^\circ\text{C})}=0,34 \text{ kg.m}^{-3}$;
- μ est la viscosité du gaz, supposée constante, $\mu=4,49 \cdot 10^{-5} \text{ Pa.s}$ [Basu et Fraser, 1991] ;
- g est l'accélération de la pesanteur, $g=9,81 \text{ m.s}^{-2}$.

Avec ces valeurs, on a

$$Ar=4136, Re_{mf}=2,4, U_{mf}=0,32 \text{ m.s}^{-1} \quad (\text{B.4})$$

- Porosité au minimum de fluidisation ε_{mf}

On peut lier le nombre d'Archimède Ar à la porosité au minimum de fluidisation ε_{mf} par l'équation empirique :

$$Ar = 150 \frac{1 - \varepsilon_{mf}}{\varepsilon_{mf}^3} Re_{mf} + \frac{1,57}{\varepsilon_{mf}^3} Re_{mf}^2 \quad (\text{B.5})$$

En inversant la relation, on a :

$$\varepsilon_{mf}=0,38 \quad (\text{B.6})$$

- Porosité du lit fluidisé ε

$$(\varepsilon - \varepsilon_{mf})(1 - \varepsilon_{mf}) = 0,14 Re^{0,4} Ar^{-0,13} \quad (\text{B.7})$$

$$\text{avec } Re = \frac{\rho_g d_s U}{\mu} \quad (\text{B.8})$$

$$U = \frac{F_{am}^{in}}{A} \times \frac{T^B}{T_{am}} \quad (\text{B.9})$$

Où :

- U est la vitesse de fluidisation, m.s^{-1} , il est défini par le débit d'air de fluidisation et la température du lit bouillonnant.
- A est la surface du lit, m^2 .

Avec $F_{am}^{in}=6500 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ et $T^B=760^\circ\text{C}$ du lit bouillonnant,

$$U=0,44 \text{ m.s}^{-1}, \varepsilon=0,51 \quad (\text{B.10})$$

- Hauteur du lit bouillonnant H^B

$$H^B(1 - \varepsilon) = m_s / \rho_s \quad (\text{B.11})$$

Enfin, on a :

$$H^B=0,795 \text{ m} \quad (\text{B.12})$$

Validation de la hauteur du lit bouillonnant

D'après les corrélations empiriques, la hauteur du lit bouillonnant peut varier en fonction de la vitesse de fluidisation et de la température du gaz, la masse de sable étant considérée constante.

Dans la figure B.1, les variations de la hauteur du lit bouillonnant par rapport au débit d'air et à la température du lit bouillonnant sont présentées. Les variations maximales de hauteur autour du point de fonctionnement sont d'environ 2,5 cm pour des variations du débit d'air et de 1,25 cm pour des variations de température. Pour une hauteur totale de 79,5 cm, ces variations représentent moins de 3% d'erreur. On suppose donc que la hauteur du lit bouillonnant est constante.

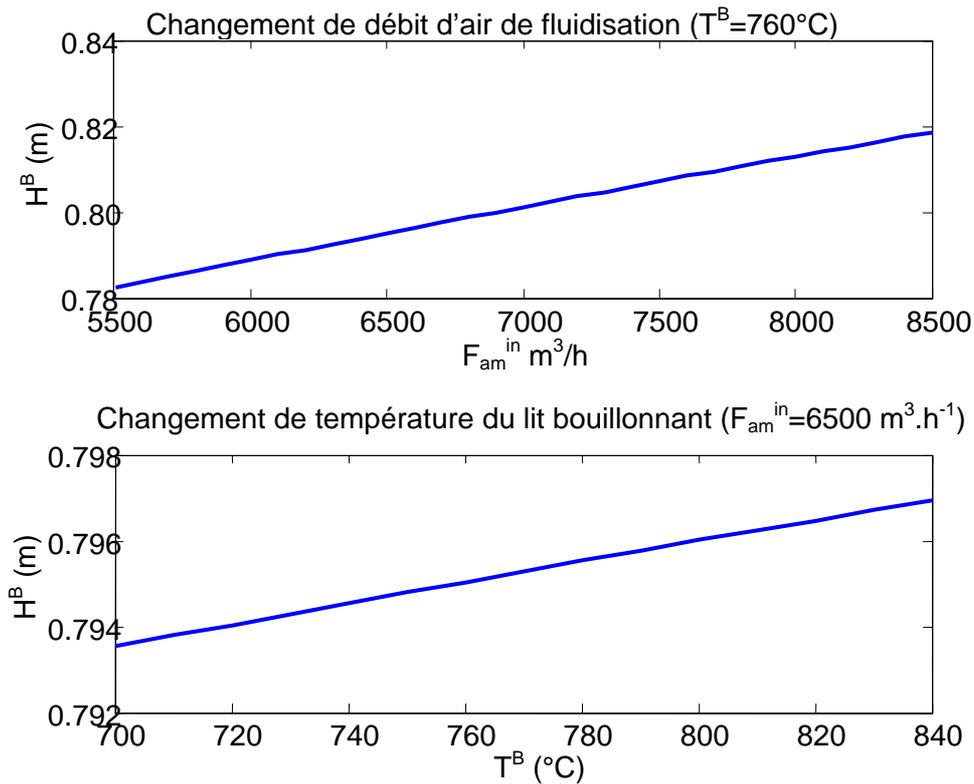


Figure B.1. Variation de la hauteur du lit bouillonnant par rapport au débit d'air de fluidisation et à la température du lit bouillonnant.

Les grandeurs mesurées

Entrées du four	
F_{am}^{in} (m ³ .h ⁻¹)	Débit d'air de fluidisation à température ambiante (entrée de l'échangeur de chaleur)
T_a^{in} (°C)	Température de l'air de la boîte à vent entrant dans le four
$Q_{b,MS}^{in}$ (kg.h ⁻¹)	Débit des boues (en MS) entrant dans le four
F_{fioul}^{in} (l.h ⁻¹)	Débit de fioul injecté dans le four
Etats internes du four	
T^B (°C)	Température du lit bouillonnant (valeur moyenne de trois mesures prises dans le lit)
T^P (°C)	Température du lit post-combustion
Gaz sortant du four	
O ₂ (%)	Oxygène sortant du four, en gaz humide
CO (ppmv)	Monoxyde de carbone sortant du four, en gaz humide
Fumées sortant de la cheminée	
F_{f0} (Nm ³ .h ⁻¹)	Débit d'extraction des fumées dans la cheminée dans les conditions de 0°C et 101.3kPa
T_f (°C)	La température des fumées
O ₂ (%)	Oxygène, %volumique
Poussière (mg/Nm ³)	Poussière
CO (mg.Nm ⁻³)	Monoxyde de carbone
HCl (mg.Nm ⁻³)	Chlorure d'hydrogène
SO ₂ (mg.Nm ⁻³)	Dioxyde de soufre
COT (mg.Nm ⁻³)	Composés organiques volatils
NOx (mg.Nm ⁻³)	Oxydes d'azotes

Tableau C.1. Les principales grandeurs mesurées de la station d'incinération des boues.

Les séquences remarquables

Les mesures sont effectuées toutes les minutes, centralisées sur un superviseur puis archivées en séquences d'une journée. Nous disposons trois fichiers de deux jours (8h-56h) qui sont présentés par les figures C.2-C.4 : fichier 1-figure C.2 ; fichier 2-figure C.3 ; fichier 3-figure C.4. Dans chaque fichier, les mesures importantes sont présentées :

- Entrées dans le four : débit d'air de fluidisation (F_{am}^{in}), débit de boues en matière sèche ($Q_{b,MS}^{in}$), débit de fioul (F_{fioul}^{in}), température de l'air de la boîte à vent entrant dans le four (T_a^{in}) ;
- Mesures au sein du four : température du lit bouillonnant (T^B), température du lit post-combustion (T^P).
- Mesures sortant du four et sortant de la cheminée : oxygène sortant du four (y_{O_2}), monoxyde de carbone sortant du four (y_{CO}), NOx sortant de la cheminée (y_{NO}). La norme de rejet de 400 mg.Nm^{-3} est marquée en ligne pointillée.

Figure C.2. Le fichier 1.

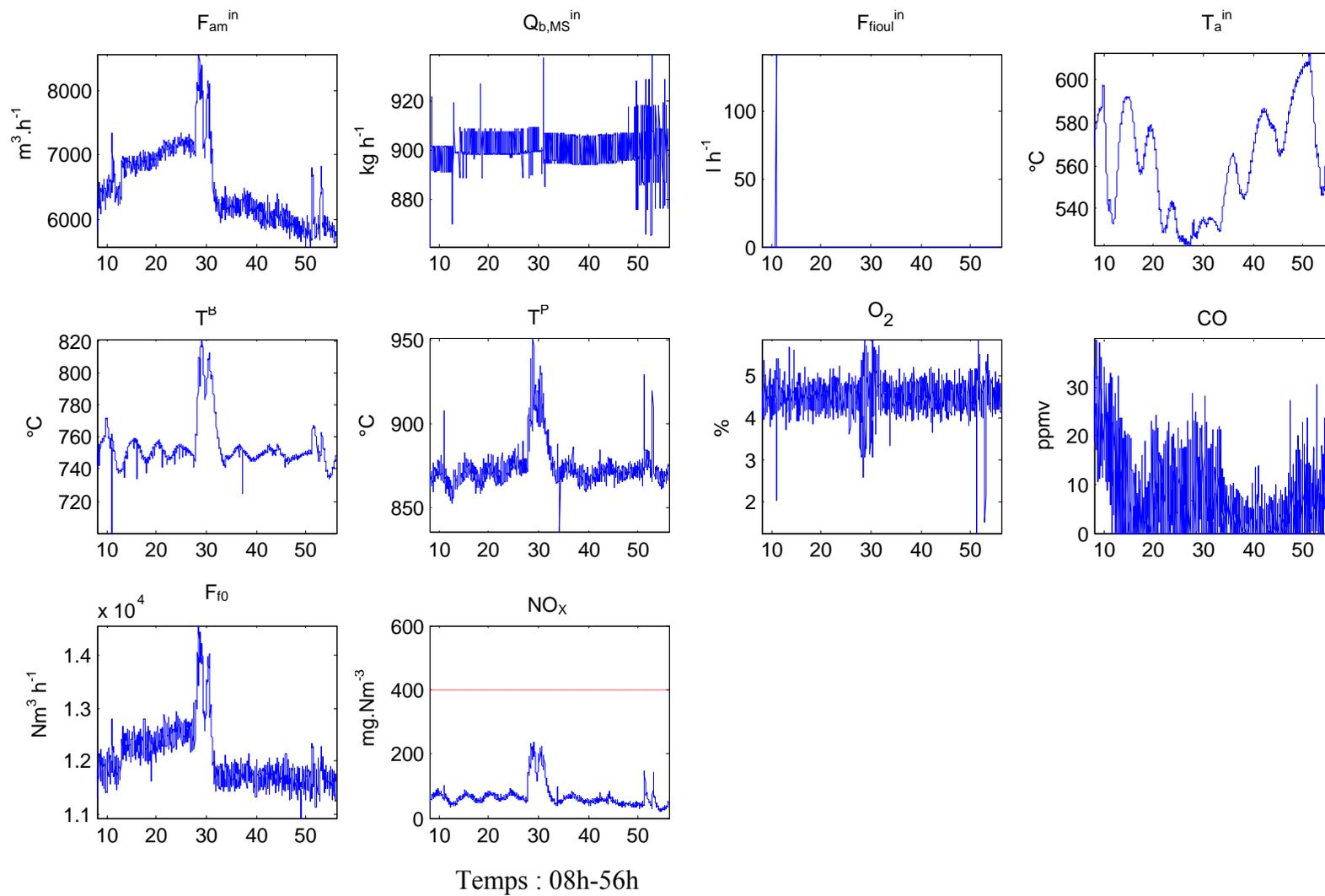


Figure C.3. Le fichier 2.

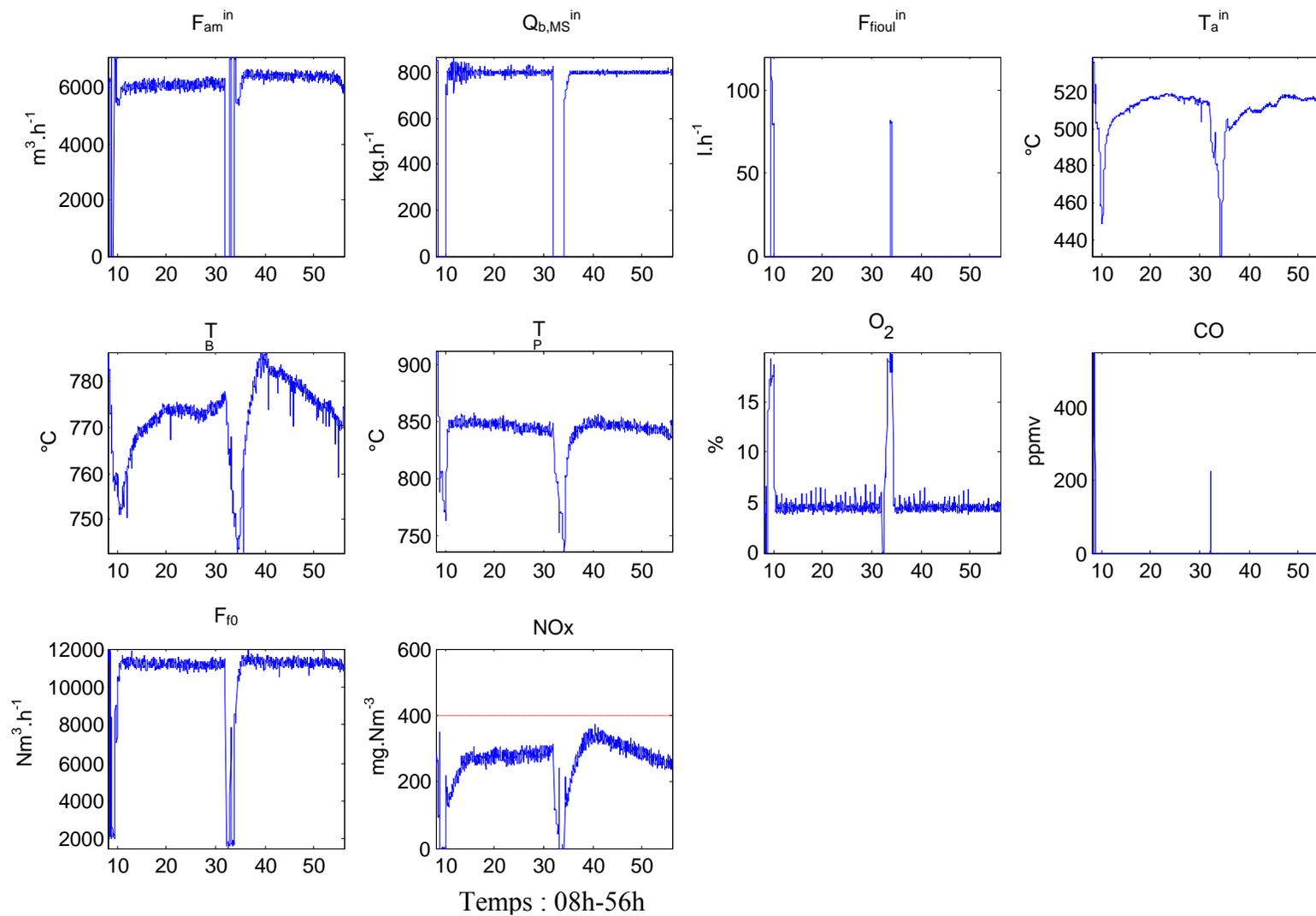
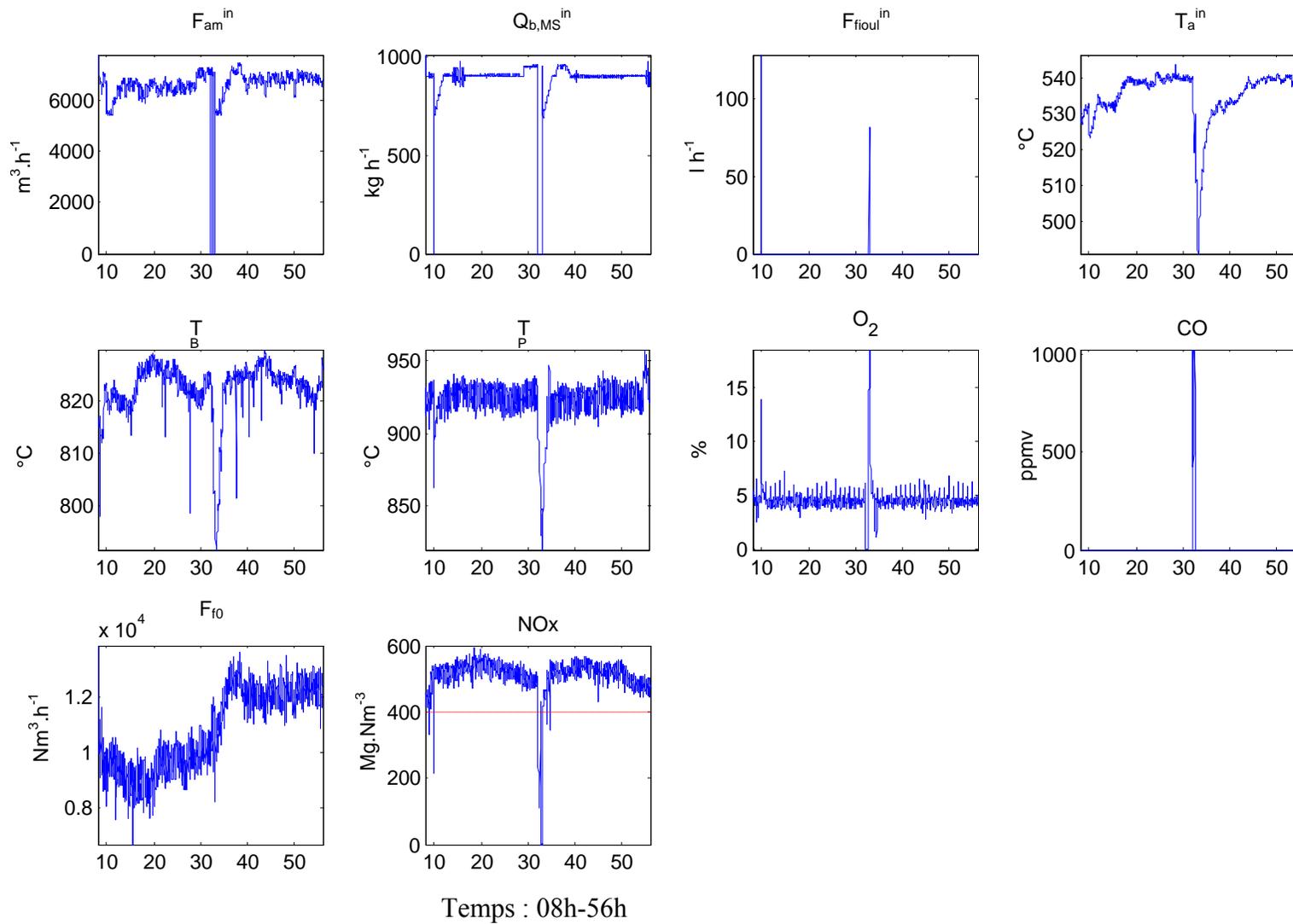


Figure C.4. Le fichier 3.



Annexe D. Détermination des points de fonctionnement

Les figures D.1 et D.2 représentent les plages statiques choisies dans les fichiers 2 et 3. Les points de fonctionnement sont obtenus en faisant les valeurs moyennes. Celles-ci sont présentées dans le tableau 4.1 du chapitre 4.

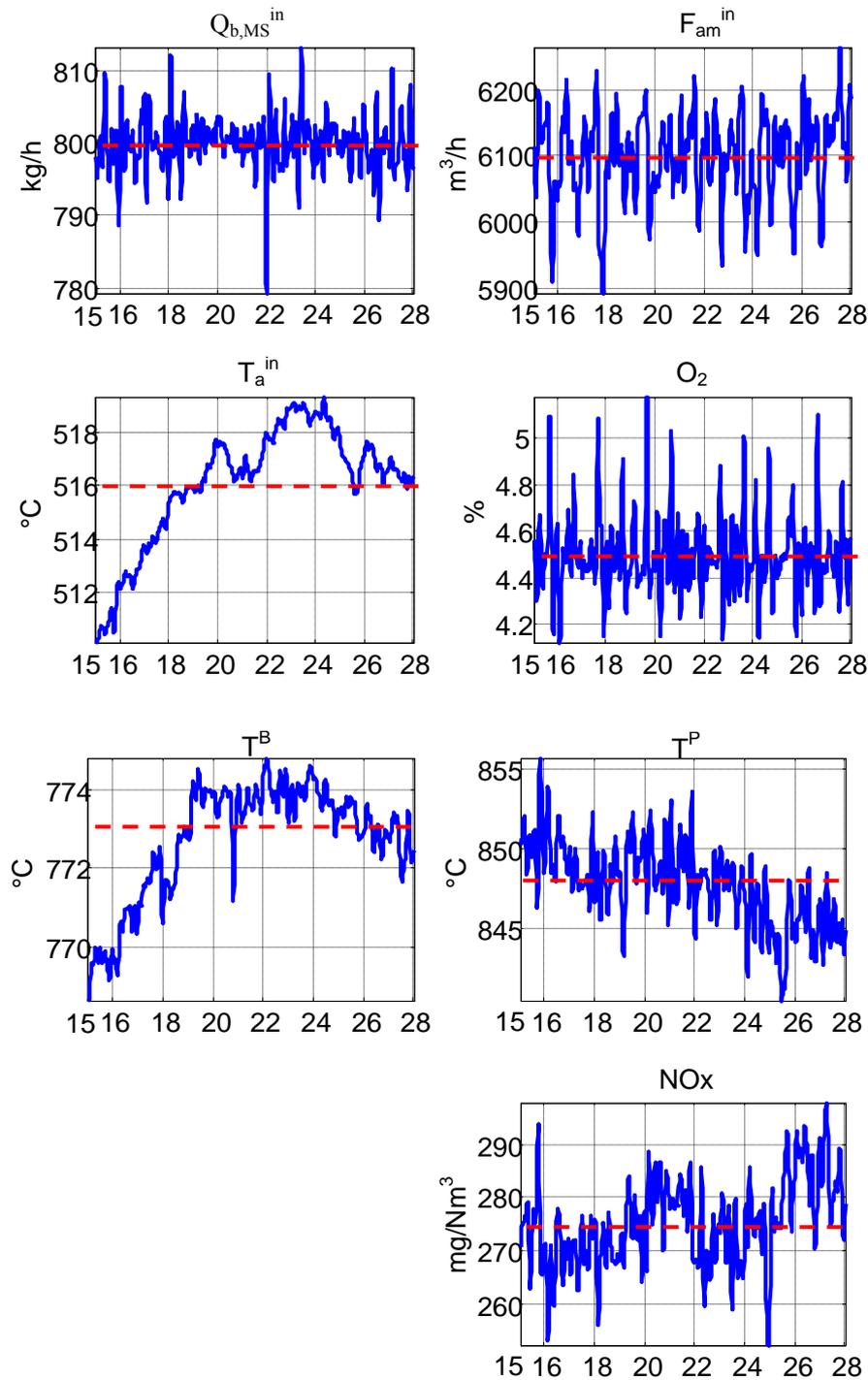


Figure D.1. Les mesures utilisées pour le point de fonctionnement du fichier 2 (15h-28h).

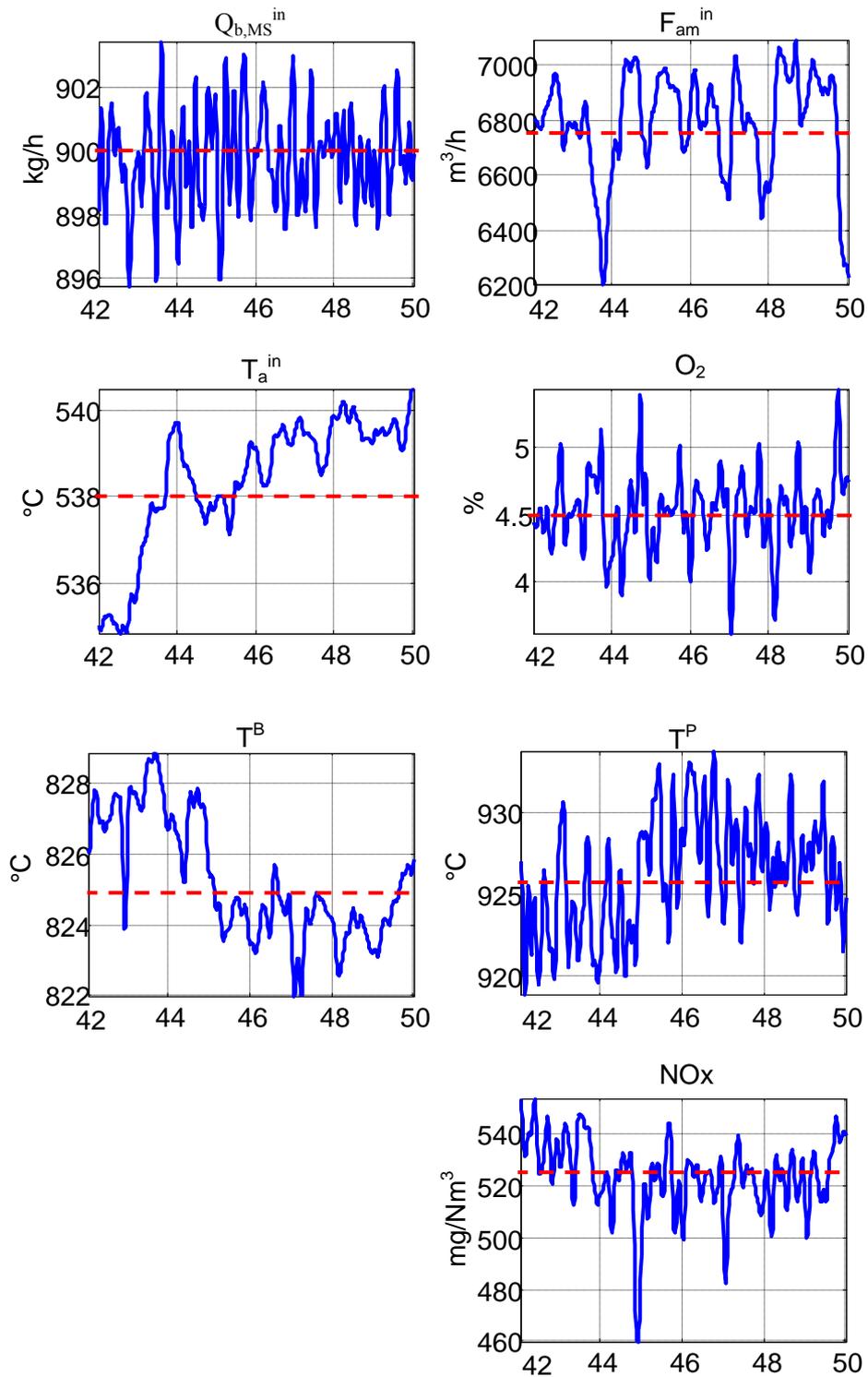


Figure D.2. Les mesures utilisées pour le point de fonctionnement du fichier 3 (42h-50h).

Annexe E. Test de la stratégie de commande sur des perturbations non mesurées

Un test de perturbation (f_{vol}) est présenté dans le chapitre 5. Dans ce paragraphe, les tests sur les autres perturbations non mesurées sont présentés. Les perturbations sont : l'humidité ($f_{\text{H}_2\text{O}}$), la fraction d'azote (f_{N}) et la répartition des composés volatils issus de la dévolatilisation.

Test de la perturbation sur la fraction massique en eau (f_{H_2O}) :

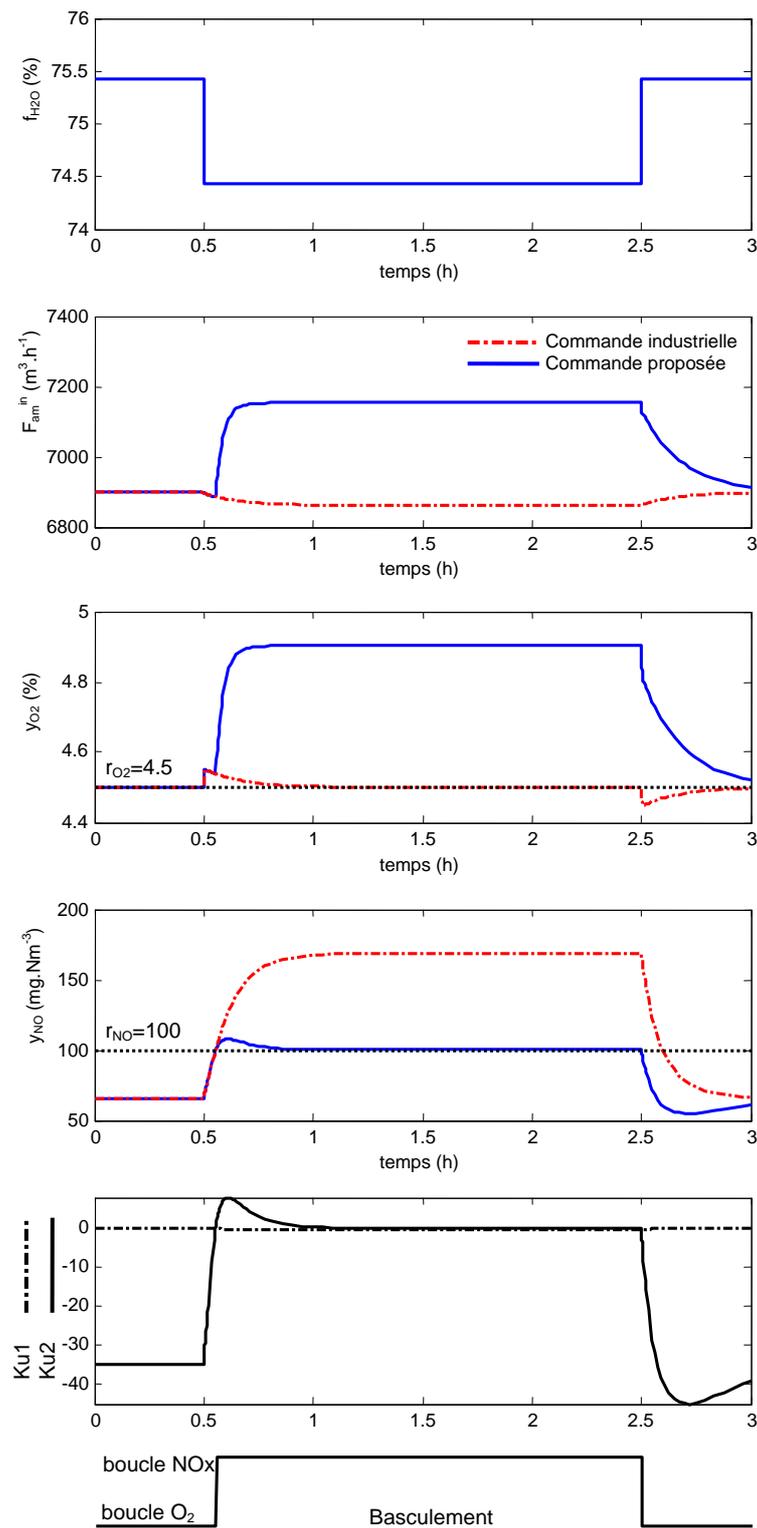


Figure E.1. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur f_{H_2O}

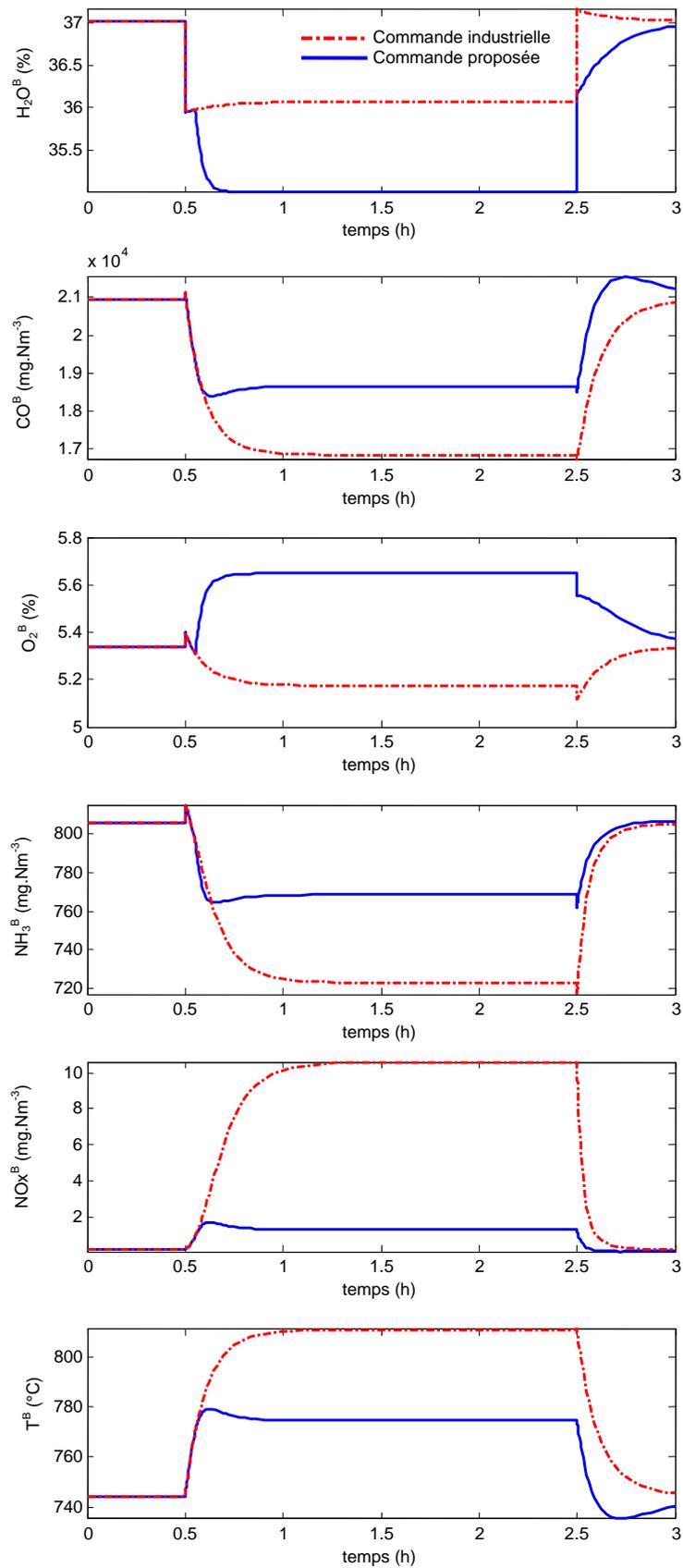


Figure E.2. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{H_2O})

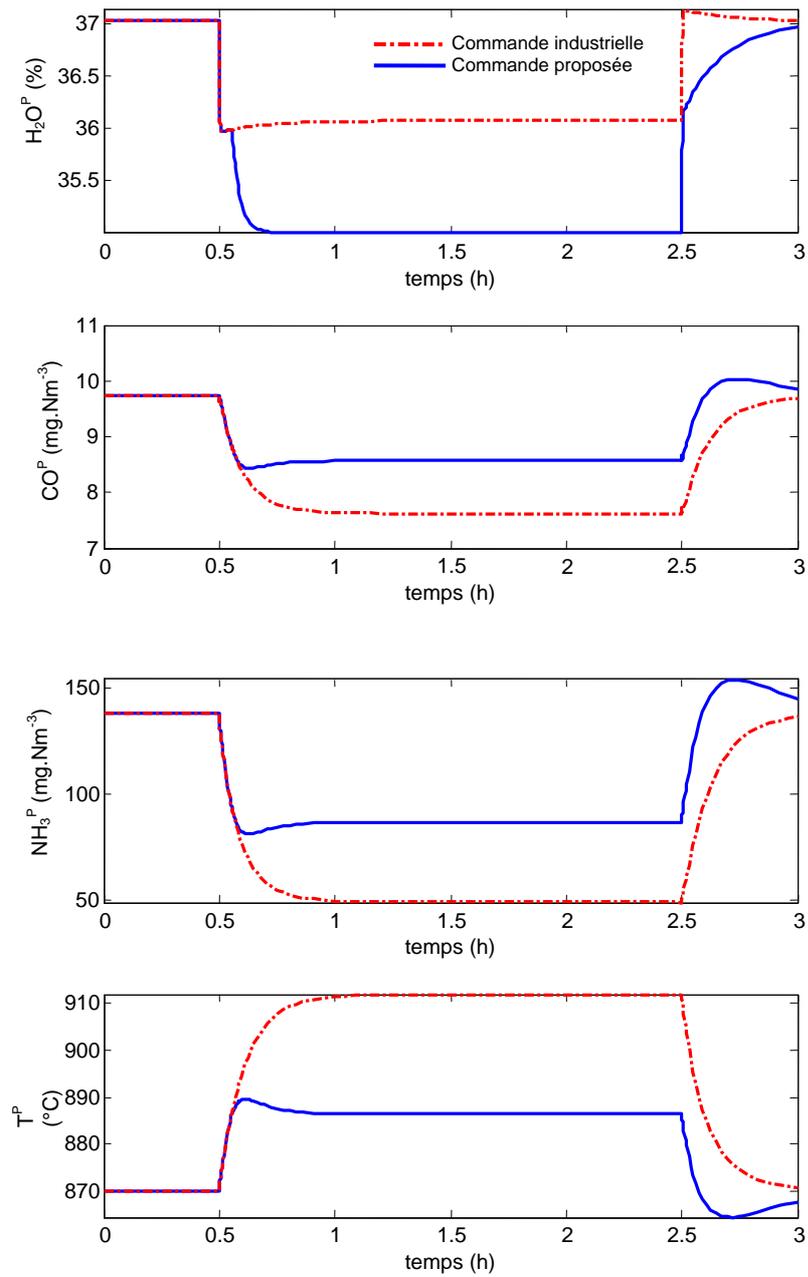


Figure E.3. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{H_2O})

Test de la perturbation sur la fraction massique d'azote (f_N) :

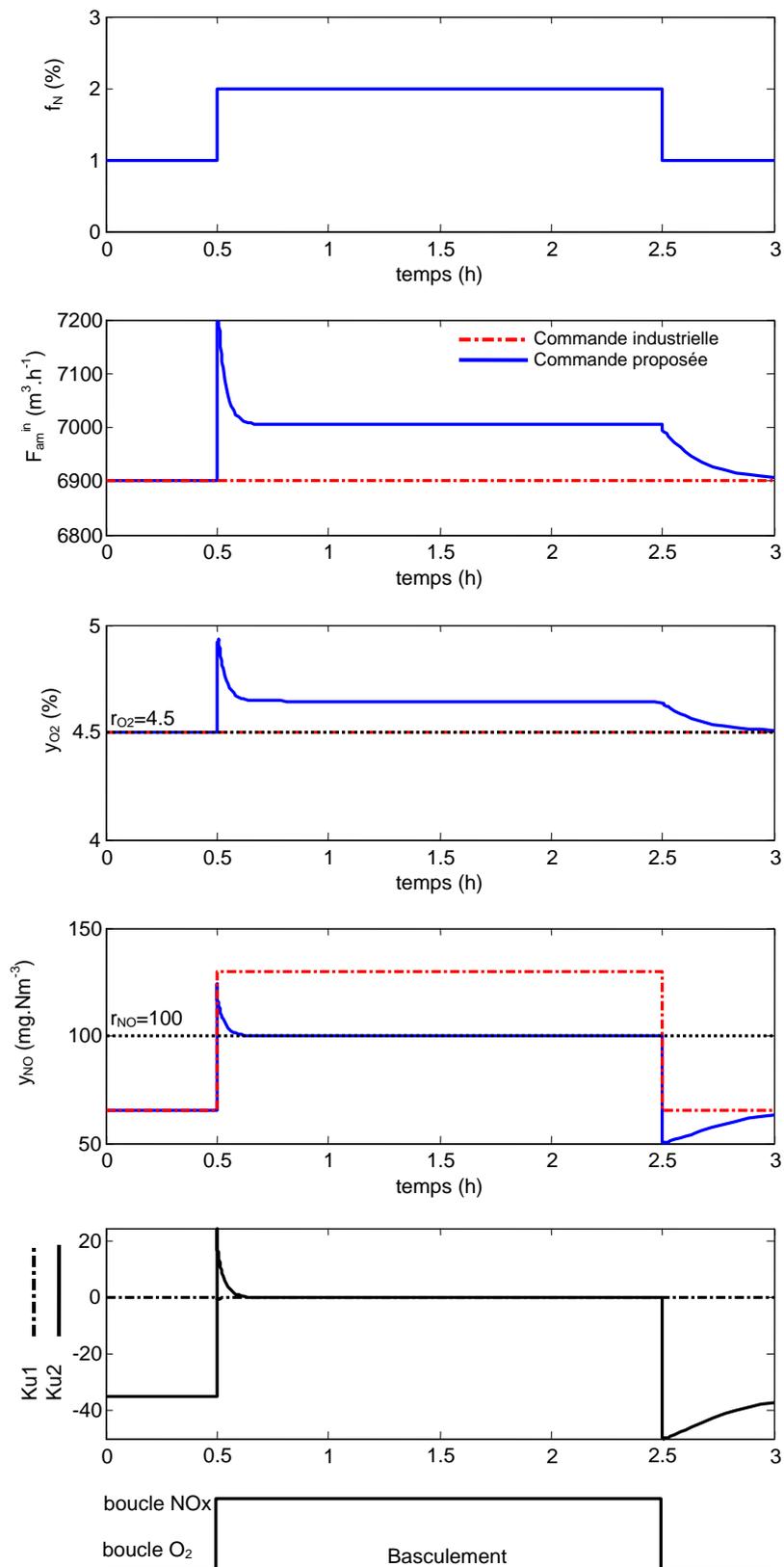


Figure E.4. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur f_N

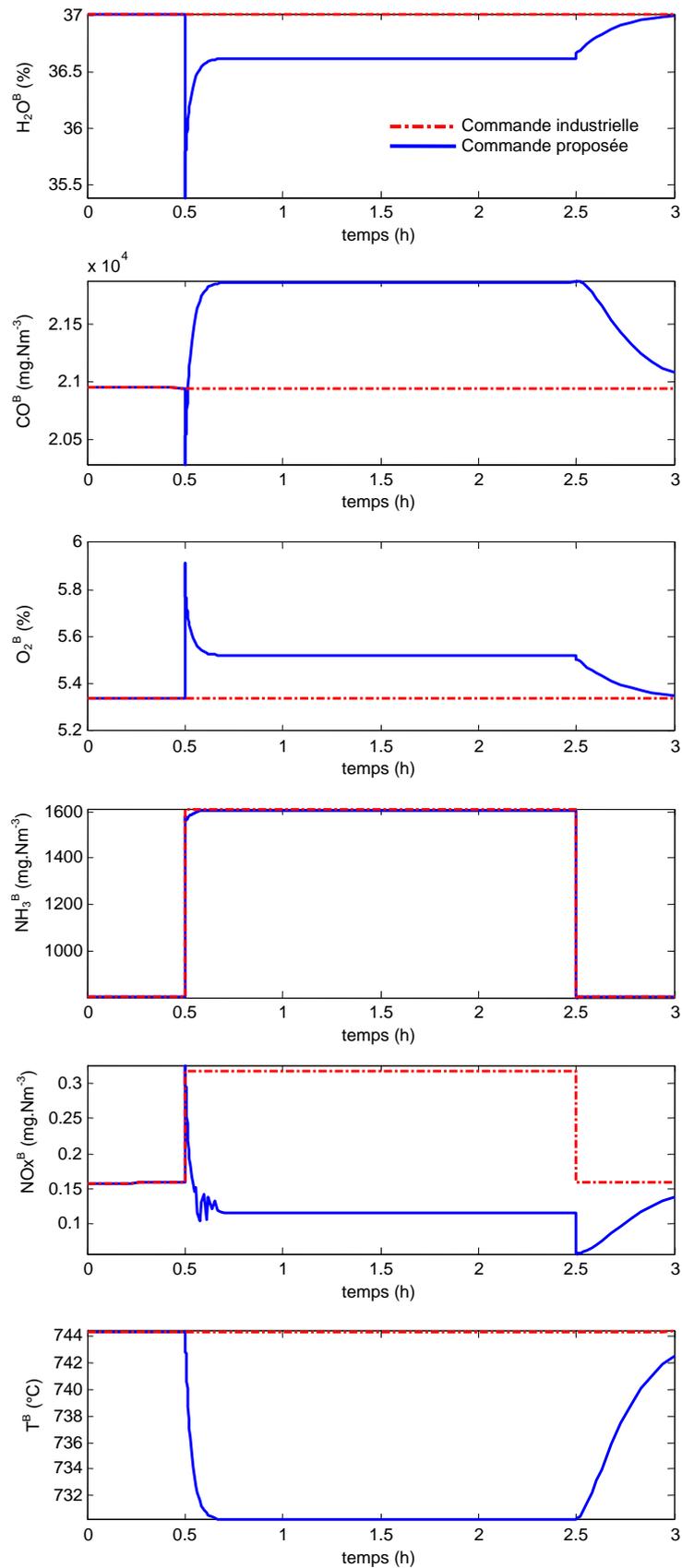


Figure E.5. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_N)

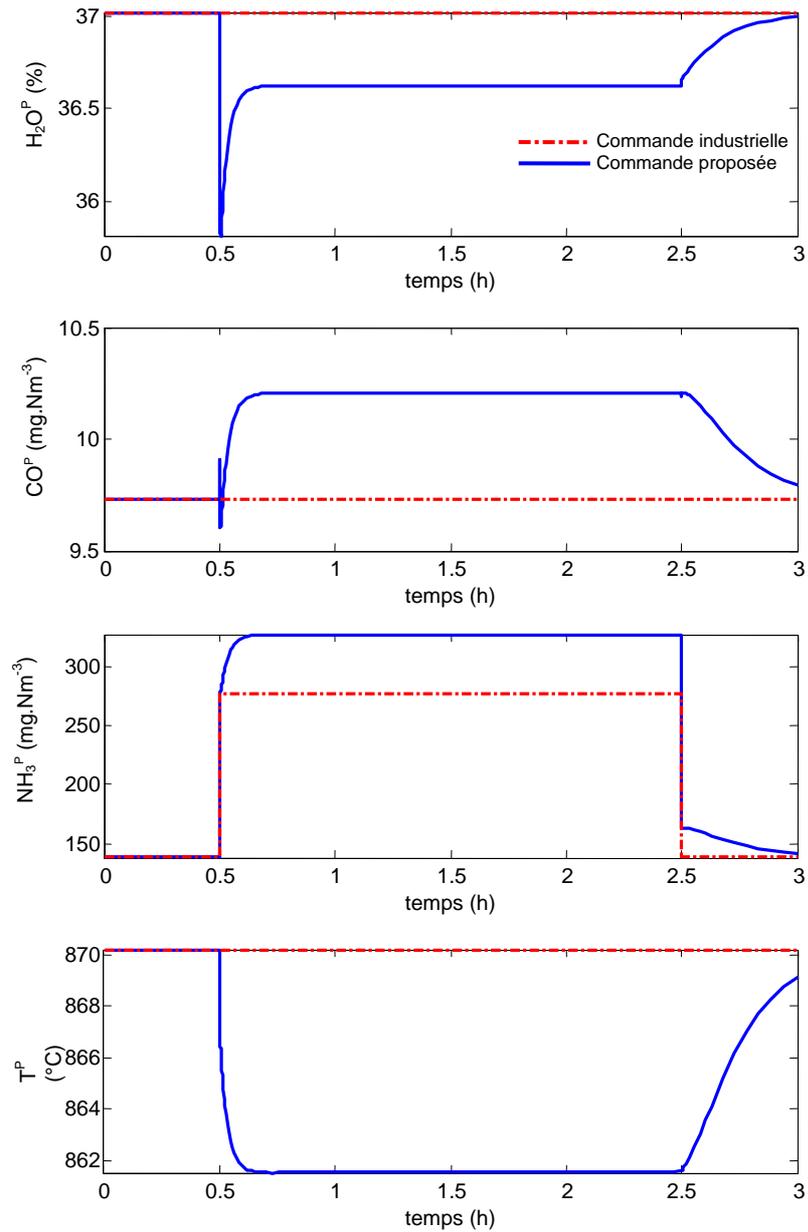


Figure E.6. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_N)

Test de la perturbation sur la fraction massique du monoxyde de carbone issu de la dévolutilisation (f_{CO}) :

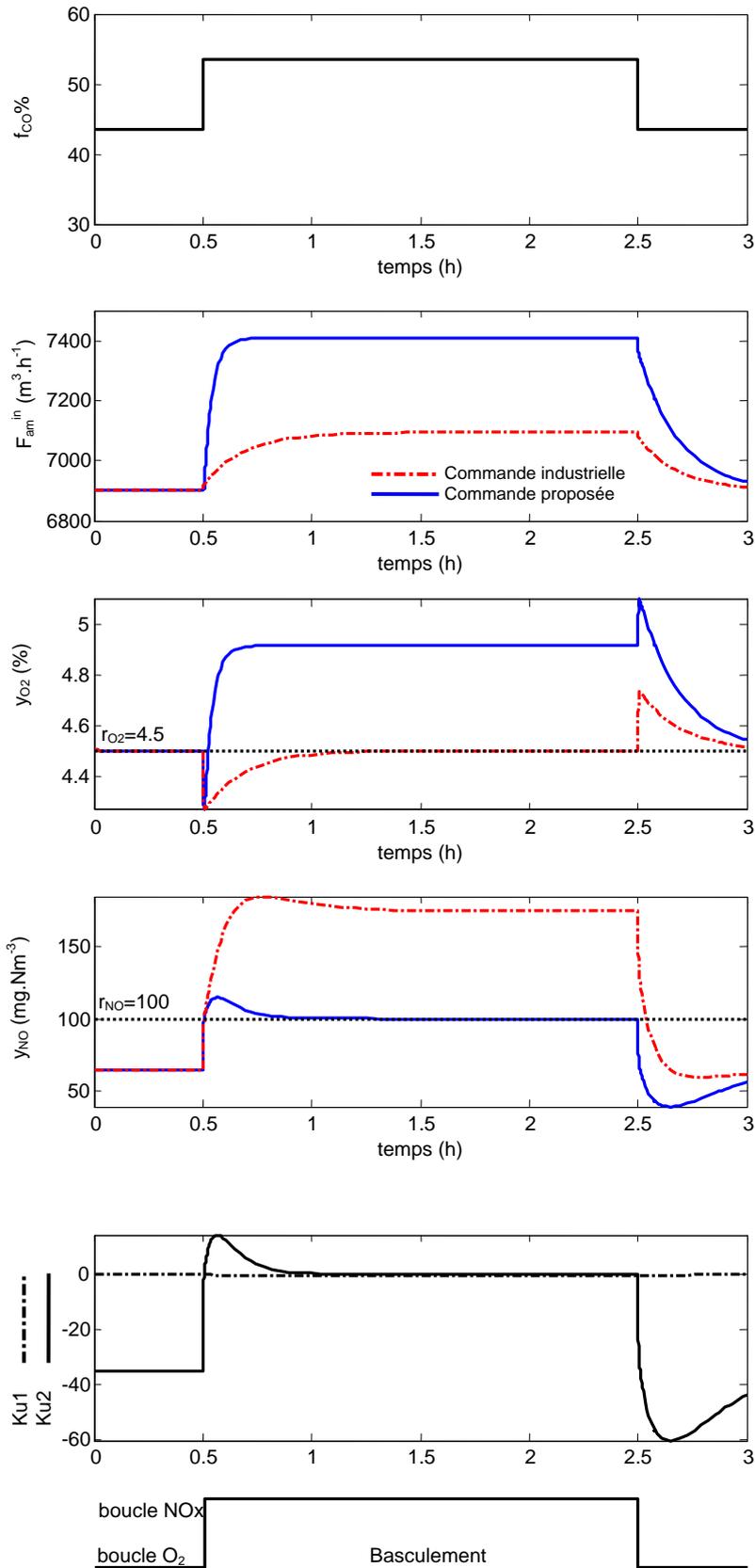


Figure E.7. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur f_{CO}

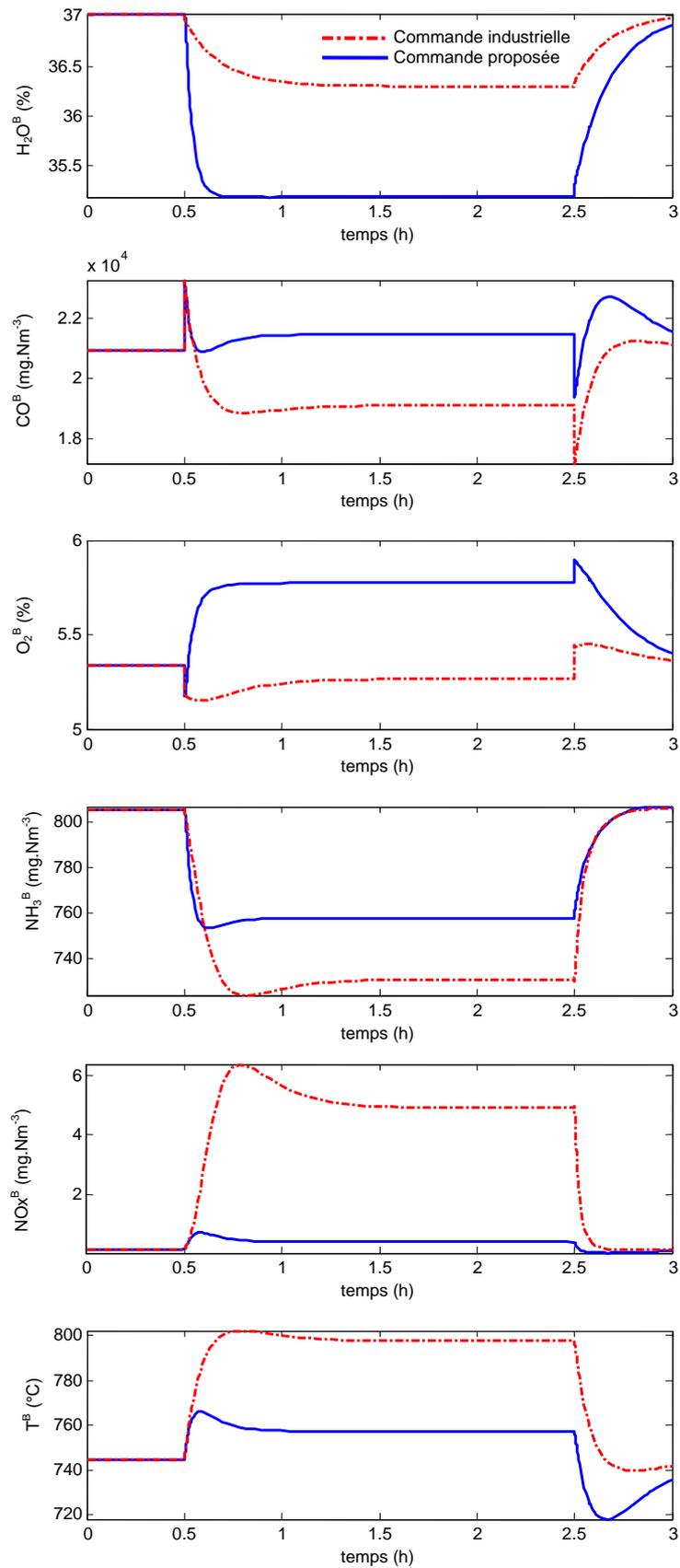


Figure E.8. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{CO})

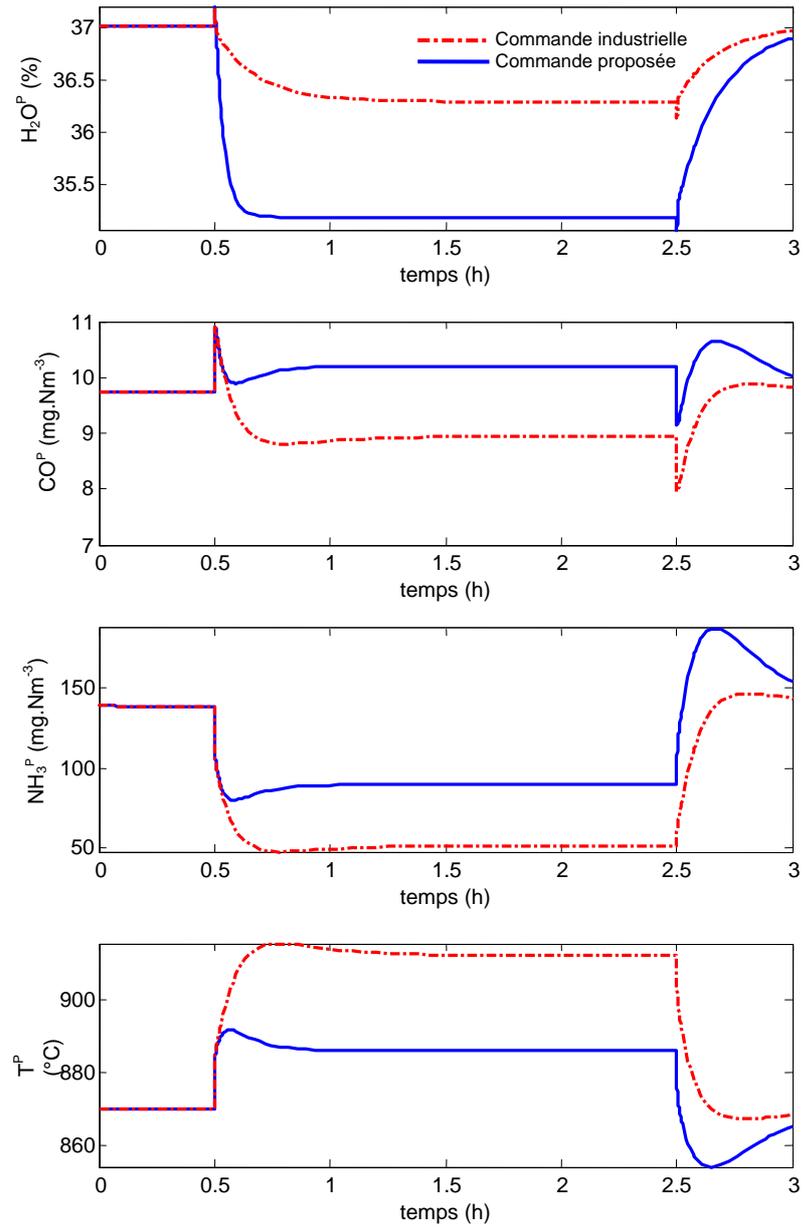


Figure E.9. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{CO})

Test de la perturbation sur la fraction massique du dihydrogène issu de la dévolatilisation (f_{H_2}) :

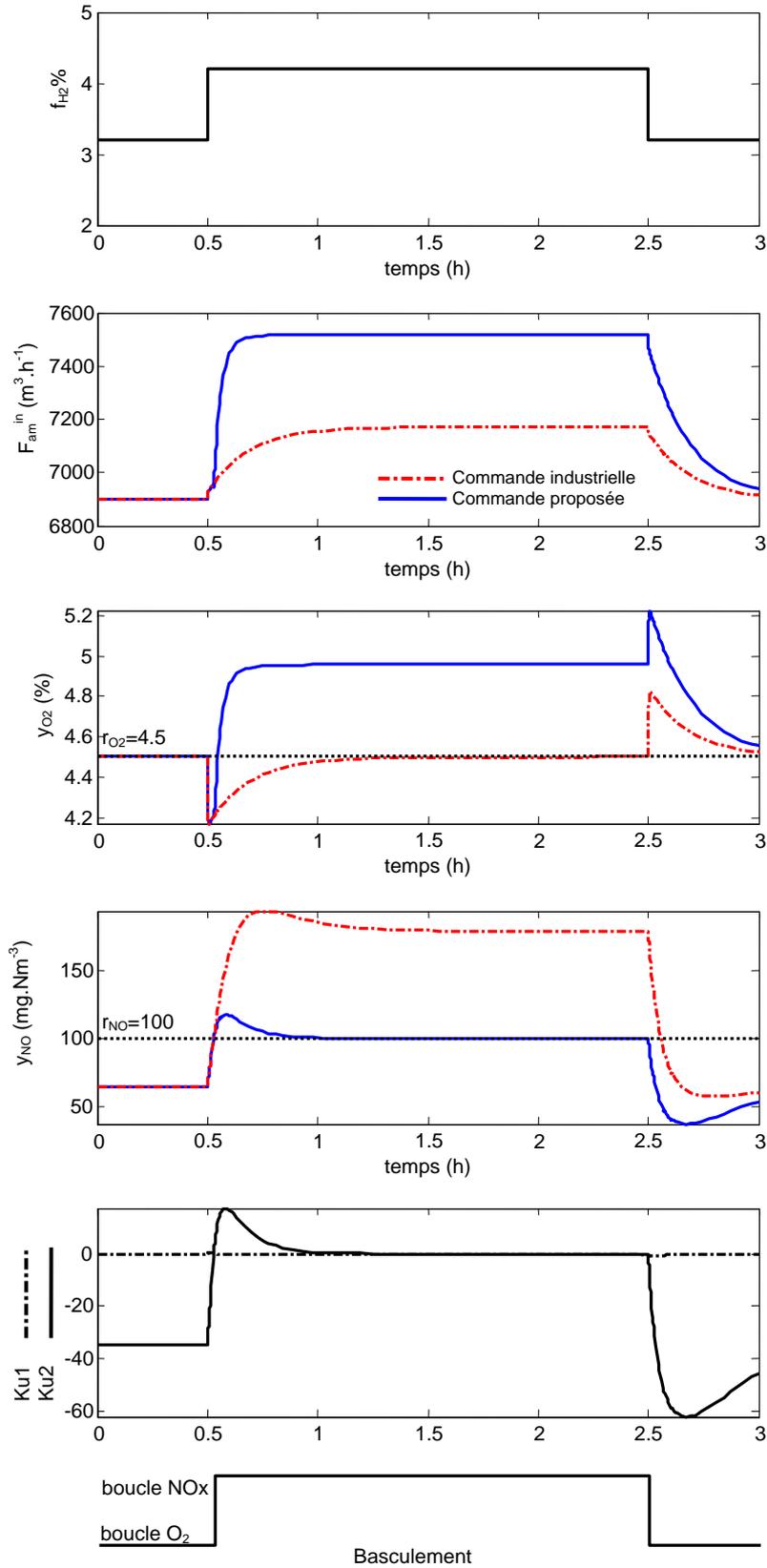


Figure E.10. Comparaison des stratégies de commande pour un échelon sur f_{H_2}

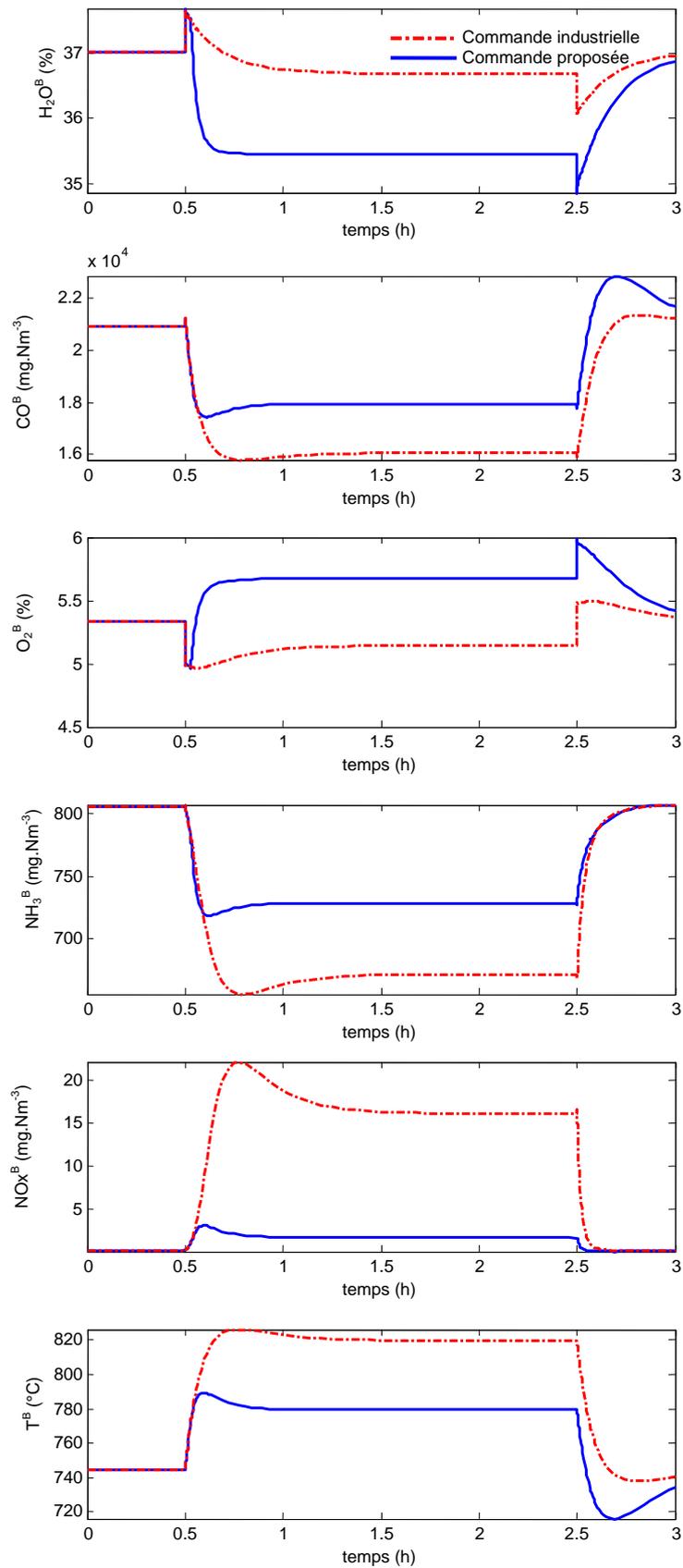


Figure E.11. Comparaison des variables d'état du lit bouillonnant pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{H_2})

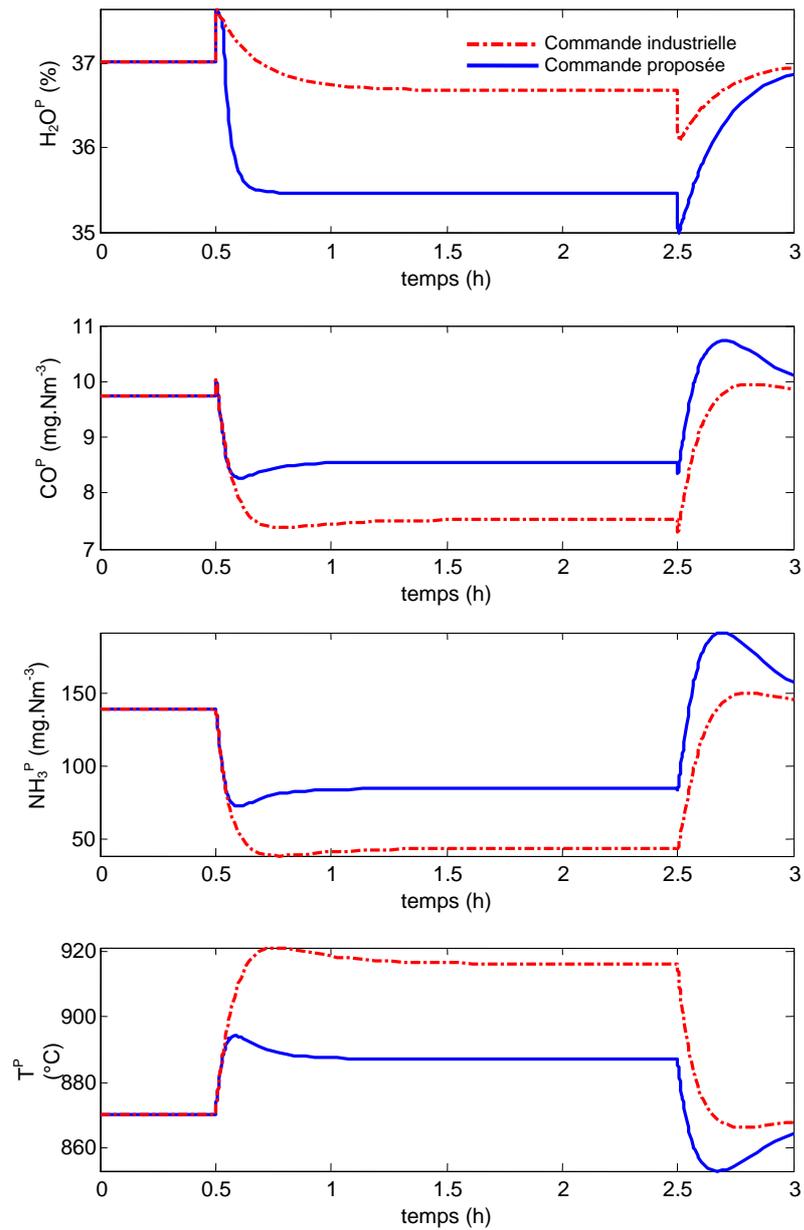


Figure E.12. Comparaison des variables d'état du lit post-combustion pour les deux stratégies de commande (échelon sur f_{H_2})

Annexe F. Comparaison des stratégies de commande sur les mesures industrielles du fichier 3

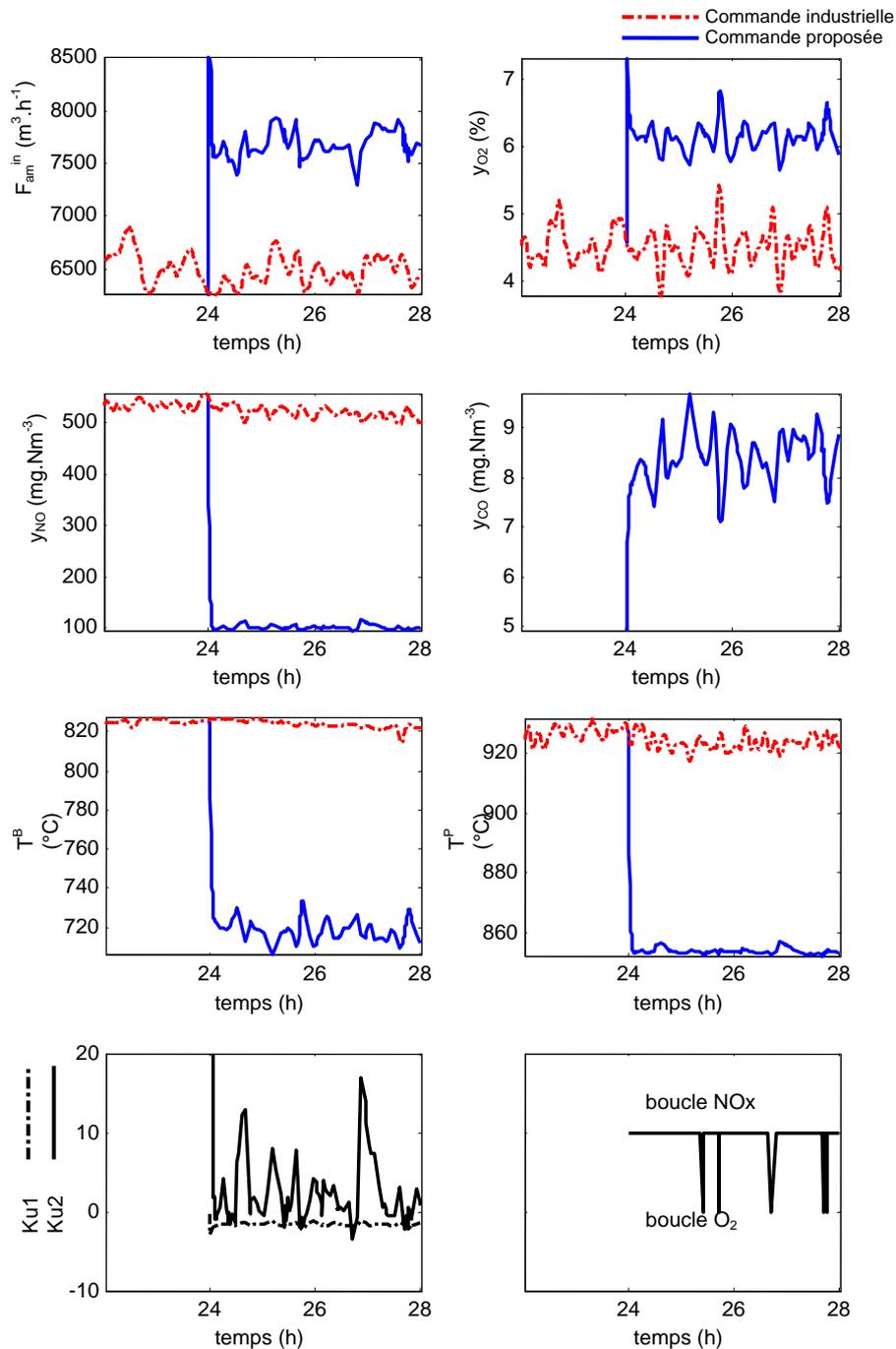


Figure F.1. Comparaison des stratégies de commande sur les mesures industrielles du fichier

3.

Annexe G. Articles publiés

Les deux articles ci-dessous présentent le modèle décrit dans le manuscrit :

- Li S., Cadet C., Thivel P.X., Delpech F., *Model and control strategy design of sludge combustion in an industrial bed combustor*, 18th International Congress of Chemical and Process Engineering (CHISA), 24-28 August 2008, PRAGUE, CZECH REPUBLIC.
- Li S., Cadet C., Thivel P.X., Delpech F., *Modélisation de la combustion en lit fluidisé de boues de station d'épuration*, STIC&ENVIRONNEMENT'07, 13 – 15 Novembre 2007, Lyon, France.

Les articles suivants présentent d'autres modèles : le premier est similaire aux modèles du charbon, le second est général et s'adapte à tous les combustibles :

- Li S., Cadet C., Thivel P.X., Delpech F., *Dynamic modelling for sludge combustion control*, Environmental Engineering and Management Journal (EEMJ), 5(4), 705-716, 2006.

Dans cet article, un modèle de l'incinérateur des boues en lit fluidisé circulant est proposé. Les boues entrantes sont totalement sèches. Les particules (carbone fixe) sont prises en compte. Onze réactions chimiques sont sélectionnées : 6 réactions hétérogènes et catalytiques et 5 réactions homogènes. Le four est assimilé à un réacteur parfaitement agité. Le modèle comporte onze variables d'états : carbone fixe, CO, CH₄, C₂H₆, CO₂, O₂, HCN, NH₃, NO, N₂O et la température.

- Li S., Cadet C., Thivel P.X., Delpech F., *Développement d'un modèle pour la commande de la combustion des boues en lit fluidisé circulant*, Système d'Information, Modélisation, Optimisation et Commande en Génie des Procédés (SIMO), 11-12 Octobre 2006 - Toulouse, France.

Dans cet article, un modèle de l'incinération des boues en lit fluidisé circulant est proposé en vue de la commande. Trois réactions sont sélectionnées. Le modèle peut ainsi être adapté à tous les combustibles. Le four est assimilé à un réacteur parfaitement agité. Le modèle comporte huit variables d'états : carbone fixe, CO, CO₂, O₂, H₂O, NO, SO₂ et la température.

L'article ci-après a été rédigé à partir du travail de Master Recherche : « Mise en place d'une méthodologie de validation de modèle et de synthèse d'observateur appliquée à un pilote de traitement biologique d'effluents industriels », 2004.

- Bassompierre C., Li S., Cadet C., *Activated sludge processes state estimation: a nonlinear moving horizon observer approach*, *American Control Conference (ACC'06)*, June 14-16, 2006, Minneapolis, USA

Activated Sludge Processes State Estimation: A Nonlinear Moving Horizon Observer Approach

C. Bassompierre^{1,2}, S. Li¹, and C. Cadet¹

Abstract—This paper deals with activated sludge processes state estimation using moving horizon approach. In order to decrease the high computing cost of searching the global minimum of the error criterion, a descent-like approach is used. An associated model is designed so as to respect a trade-off between model complexity and accuracy. The results point out the interest of this approach for this process and are sufficiently advanced to think to implement it further on a semi-industrial pilot plant.

I. INTRODUCTION

The constant enlargement of human population and economic activities lead to reject always more wastewater to be treated while at the same time, standards of water quality become more and more restrictive. Activated Sludge Process is a biological treatment commonly used for treatment of urban and industrial wastewater. In order to guarantee effluent quality, accurate monitoring and control are very important to be developed in spite of the great biological complexity of the process. More especially for process monitoring, information on the dynamics of the main constituents needs to be available whereas the key biological state variables usually requires sophisticated measure devices.

On one hand some recent sensors give on-line measurements and allow the design and validation of relatively complex dynamical models but, on the other hand, the drawbacks are numerous: expensive buying and maintenance costs, discrete-time samples, relatively long analysis time (delay). A solution of these problems is to select a few sensors and to estimate the unmeasured state variables with a model-based nonlinear observer.

The purpose of this work is to propose an observation approach altogether sufficiently accurate to use the state estimation for operators' assistance in process monitoring, and, at the same time, easy to implement on a real process. The observer and its associated model are tested on a simulator proposed by the European group COST Action 624 [1]. The final aim in a further work will be to test the proposed observer on a semi-industrial pilot plant, which is at present under construction.

For activated sludge processes, the biological standard reference is the Activated Sludge Model (ASM) N^o1

developed by the task group of the International Association on Water Quality (IAWQ) [2] which includes thirteen state variables and more than fifteen parameters. Based on this complex model, the reference model of the process, proposed by the European group COST Action 624, is difficult to handle for estimation purpose, however a simplified model is more exploitable, always respecting a trade-off between complexity and precision.

In a previous work [3], a very accurate reduced model based on singular value reduction has been proposed. But the resulting model is still too complicated to be validated on a real plant. A practical model based on biological simplifications and proposed by U. Jeppsson [4] has been adapted to a real industrial treatment station [5]. The results have shown that the model accuracy needs to be improved, and more especially the description of nitrogen removal. Thanks to these previous experiences, the design of a convenient model, for which simplifications are mainly based on biological considerations, is presented in this paper.

A comparative study of the two observers that are most commonly used on real activated sludge processes, asymptotic observer [6] and Extended Kalman Filter, has been presented in a previous work [7]:

-- Asymptotic observer is relevant to handle uncertainties on kinetics parameters. One of the main drawbacks is that the rate of convergence is completely determined by the experimental conditions (namely the dilution rate). In the studied case, the model accuracy need to include numerous kinetics and therefore this method is not the most appropriate.

-- The Extended Kalman Filter showed more convenient results. But the main limitation is that the model linearization on the current estimated state may compromise the convergence on a real process.

Another estimation method, the Moving Horizon Observer approach, has been successfully applied for different biological processes [8, 9] and seems to be a suitable approach for wastewater treatment state estimation. This approach is based on the minimization of the prediction error of the outputs along a receding past horizon. One of the main interests is the independence from any particular model structure. Other advantages are altogether the robustness with respect to modeling errors, the measurement noises, and the possibility to include measurements with delay. In the linear case, a relevant approach is proposed by Rao and al. [10]. For the non linear case, the Moving Horizon Observer approach improves state estimation with respects to Extended

¹Authors are with the Laboratoire d'Automatique de Grenoble, CNRS-INPG-UJF, BP 46, 38402 Saint Martin d'Hères Cedex (France) (e-mail: name@lag.ensieg.inpg.fr)

² C. Bassompierre is also with the Laboratoire du Génie des Procédés Papetiers, CNRS-INPG-EFPG-CTP, EFPG-Domaine universitaire, BP 65, 461 rue de la papeterie, 38402 Saint Martin d'Hères Cedex (France) (corresponding author : cindy.bassompierre@lag.ensieg.inpg.fr)

Kalman Filter, though a greater computational cost [11]. This drawback restrains the application to processes that have only a few state variables [12], and is not well suited to handle activated sludge processes.

The approach proposed here, developed by Alamir [13], is based on a descent-like approach without the use of an optimisation algorithm neither the use of the Hessian matrix. A nice feature is that the observer takes a classical form in the sense that it is defined by a set of ordinary equations. The convergence of this observer is mathematically proved under some reasonable assumptions.

In the sequel, the Moving Horizon State Observer principle is introduced. Then the activated sludge process and its associated reduced model are presented. At last, the implementation and simulation results are discussed.

II. MOVING HORIZON STATE OBSERVER

Only the main results are presented here, more details may be found in [10].

A. Moving horizon state observer (MHSO) principle

Considering the nonlinear model:

$$\begin{cases} \dot{x}(t) = f(x(t)) \\ y(t) = h(x(t)) \end{cases} \quad (1)$$

where $x \in \mathbb{R}^n$ is the state vector, and $y \in \mathbb{R}^p$ is the measured output. The functions f and h are supposed to be continuously differentiable.

The method transforms the state estimation of a dynamical system in a static optimisation problem updated with respect to real time. The new problem is to estimate

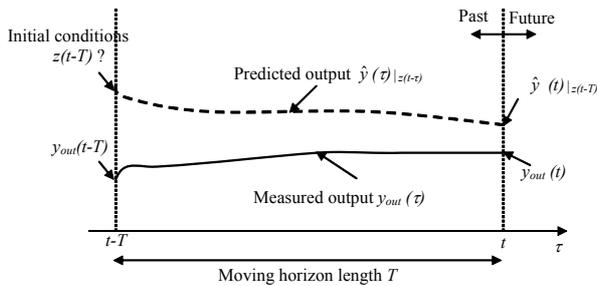


Fig. 1. Moving horizon state observer principle

the initial conditions $z(t-T)$ which have lead the process to its present state $x(t)$ since the beginning of the moving horizon $(t-T)$ while producing the measured output (figure 1).

The criterion to be minimized is the integration of the squared difference between the outputs given by the model from the initial conditions at $(t-T)$ and the corresponding measured outputs and is written:

$$J(t) = \int_{t-T}^t (y_{out}(\tau) - \hat{y}(\tau)|_{z(t-T)})^2 d\tau. \quad (2)$$

where y_{out} is the process output value, \hat{y} is the predicted value, with the initial conditions $z(t-T)$ to be estimated. t is the present time and T is the receding

horizon length.

The state vector $z(t-T)$ is adjusted by resolving the model equations (1) modified by adding a correction term. This term decreases with the criterion $J(t)$. Thus an asymptotic observer with a fixed gain γ can be established:

$$\begin{cases} \dot{z}(t-T) = f(z(t-T)) - \gamma G(t)^T [G(t)G(t)^T]^{-1} \sqrt{J(t)} \\ \dot{\hat{x}}(t) = f(\hat{x}(t))|_{z(t-T)} \end{cases} \quad (3)$$

where $G(t) = \frac{\partial J(t)}{\partial z}$

The conditions under which this observer leads to asymptotic stability of the estimated error are given in [10].

B. Implementation issue: post-stabilisation approach

In order to alleviate the computations while keeping a good final precision, the estimation is updated with a period $(t_{n+1} - t_n)$. The following developments are proposed (see [10] for detail):

--Step 1:

$$\dot{\tilde{z}}(\tau) = f(\tilde{z}(\tau)) - \gamma G(t_n)^T [G(t_n)G(t_n)^T]^{-1} \sqrt{J(t_n)} \quad (4)$$

with $t_n - T \leq \tau < t_{n+1} - T$

where t_{n+1} is the present time for the state to be estimated. The criterion $J(t_n)$ and the gradient $G(t_n)$ are kept constant between t_n and t_{n+1} .

--Step 2:

The estimation error induced by the hypothesis on G and J is reduced by the post-stabilisation term, which is the projection of the criterion on $J=0$:

$$z(t_{n+1} - T) = \tilde{z}(t_{n+1} - T) - \tilde{G}(t_{n+1})^T [\tilde{G}(t_{n+1})\tilde{G}(t_{n+1})^T]^{-1} \sqrt{\tilde{J}(t_{n+1})} \quad (5)$$

where \tilde{G} and \tilde{J} are calculated from the solution $\tilde{z}(t_{n+1})$.

--Step 3:

Finally, the estimated states are solutions of the model:

$$\begin{cases} \dot{\hat{x}}(t) = f(\hat{x}(t)), \text{ with } x(0) = z(t_{n+1}-T). \\ \hat{y}(t) = h(\hat{x}(t)) \end{cases} \quad (6)$$

III. REFERENCE PLANT DESCRIPTION

A. The activated sludge process

The urban wastewater pollution is mainly composed of nitrogen pollution (biodegradable organic nitrogen and ammonia nitrogen) and carbonaceous pollution. They are considered as organic substrates, and their elimination is realized through bacterial growth (biomass) in a favorable environment. In this process, the main difficulty is nitrogen removal which treatment cycle needs an anoxic phase.

The European action COST 624 [1] proposes a simulator of a classical station of an activated sludge process with its secondary settler to treat urban wastewater. The plant (figure 2) consists of a bioreactor, virtually separated in 5 fully mixed compartments and a secondary settler. The first two compartments are not aerated (anoxic phase) whereas the last three are aerated (aerobic phase).

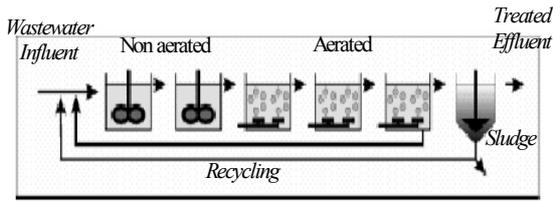


Fig. 2. Plant layout

The secondary settler is described as a series of 10 layers, one-dimensional model based on Takács model [11].

The reactor model is based on mass balance equations:
Input – Output + Reaction = Accumulation

Input and Output are transport terms and depend on input and output flows. The Reaction term represents the biological influence, positive for creation and negative for removal, and is based on the ASM1 model [2] described in part B.

B. ASM1 biological model

The ASM1 model incorporates carbon oxidation, nitrification and denitrification. The nitrogen treatment cycle is illustrated on figure 3 (excluding carbon oxidation) which explains the reactions and the state variables

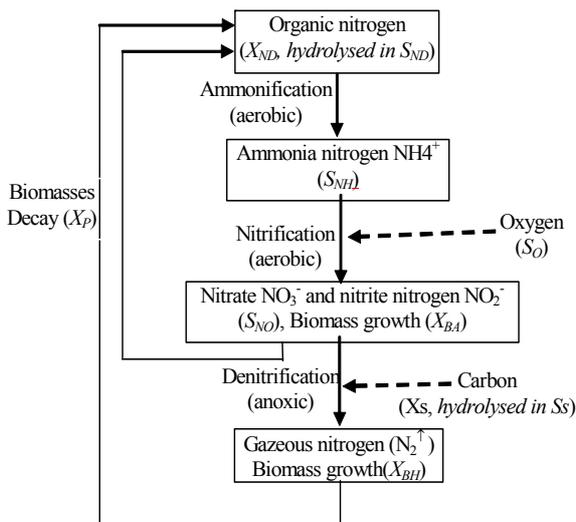


Fig. 3: Simplified nitrogen cycle in ASM1 model

function.

Thirteen state variables are considered (insoluble components are given the symbol X and the soluble components the symbol S , subscripts specify individual components):

- 4 fractions of nitrogen (X_{ND} , S_{ND} , S_{NH} , S_{NO})
- 3 fractions of organic matter (X_S , S_S , X_P)
- 2 fractions of inert matter (X_I , S_I)
- 2 types of microorganisms (heterotrophic biomass X_{BH} , autotrophic biomass X_{BA})
- Dissolved Oxygen (S_O)
- Alkalinity (S_{alk})

Eight biological processes are considered:

- 3 biomasses growths (nitrification, denitrification, carbon oxidation)
- 2 biomasses decays

- 1 ammonification of soluble organic nitrogen
- 2 hydrolysis processes

In the model, the reaction term r_i for each component i ($1 \leq i \leq 13$) is:

$$r_i = \sum_{j=1}^8 v_{ij} \rho_j \quad (7)$$

v_{ij} are stoichiometric coefficients,

ρ_j is the reaction rate expression which is a product between specific growth rate (represented by Monod laws) and biomass.

In this model, 5 stoichiometric coefficients and 14 kinetic parameters are used.

IV. REDUCED MODEL DESIGN

The assumptions for simplifying the reference plant model are from hydrodynamic and biological viewpoints. The simplifications are based on the trade-off between the most biological knowledge and the least number of state variables and parameters, in order to be able to validate the model.

A. Simplification hypothesis

1) *Hydrodynamics*. Providing a large reduction of the number of states, the compartments can be easily aggregated in only two units with a very good precision: the anoxic part and the aerobic part [7].

2) *State variables considerations*. Only the constituents necessary for the main reactions (nitrification, denitrification and carbon oxidation) are maintained and lead to 5 state variables.

-- X_I , S_I , X_P and S_{alk} have no biological influence and are removed.

-- X_{BH} , X_{BA} , S_{NO} and S_{NH} are directly used.

--The ammonia nitrogen fraction (S_{NH}) is relatively simple to measure which allows to remove the S_{ND} and X_{ND} fractions under that constraint. X_S and S_S are difficult to measure separately which leads to create a new variable:

$$X_{S_S} = X_S + S_S.$$

--At last, dissolved oxygen S_O is considered as an on-line measurement, so it becomes an input variable and no more a state variable.

3) *Biological processes*. A different model is proposed for the anoxic part and for the aerobic part which functional diagrams are represented respectively on figure 4 and figure 5. In both the biomasses decays (ρ_4 , ρ_5), independent from the phase, are present. In the anoxic part, only denitrification reaction takes place (ρ_2) while, in the aerobic part, carbon oxidation (ρ_1) and nitrification (ρ_3) are taken into account.

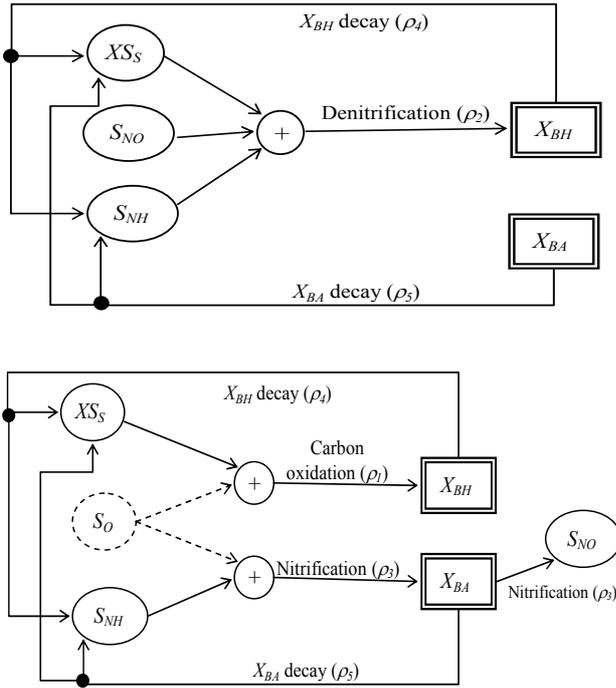


Fig. 5. Functional diagram of the aerobic model.

Thus, reduced process rates expressions are:

$$\begin{aligned}
 \rho_1 &= \gamma_{H_aero} \cdot XS_S \cdot \frac{S_0}{K_{OH} + S_0} \cdot X_{BH} \\
 \rho_2 &= \gamma_{H_anox} \cdot XS_S \cdot \frac{S_{NO}}{K_{NO} + S_{NO}} \cdot X_{BH} \\
 \rho_3 &= \gamma_{A_aero} \cdot \frac{S_{NH}}{K_{NH} + S_{NH}} \cdot \frac{S_0}{K_{OA} + S_0} \cdot X_{BA} \\
 \rho_4 &= b_H \cdot X_{BH} \\
 \rho_5 &= b_A \cdot X_{BA}
 \end{aligned} \quad (8)$$

where γ_{H_aero} , γ_{H_anox} , γ_{A_aero} , b_H and b_A are reaction rate factors that have to be estimated.

Despite introducing many parameters (half saturation terms K_{OH} , K_{OA} , K_{NH} and K_{NO}), the Monod laws are kept without changing the ASM1 parameter values. In fact Monod laws are limited to one when the concentration is at saturation and proportionate to the component concentration in the other case. The parameter value is important only for the transitory switch from one to other state which occurs only on short periods, so a bad precision has few consequences on the model accuracy. Exception is made for XS_S component which is supposed to be always under saturation.

B. Reduced model and validation

1) *Reduced model.* The reduced nonlinear aerobic model is given by the following set of equations (the anoxic model is similar):

$$\begin{cases}
 \frac{dXS_{S_aero}}{dt} = \frac{1}{V_{aero}} \cdot (Q \cdot XS_{S_anox} - Q \cdot XS_{S_aero}) \\
 \quad + \left(-\frac{1}{Y_H} \cdot \rho_1 + (1 - f_p) \cdot (\rho_4 + \rho_5) \right) \\
 \frac{dX_{BH_aero}}{dt} = \frac{1}{V_{aero}} \cdot (Q \cdot X_{BH_anox} - Q \cdot X_{BH_aero}) + (\rho_1 - \rho_4) \\
 \frac{dX_{BA_aero}}{dt} = \frac{1}{V_{aero}} \cdot (Q \cdot X_{BA_anox} - Q \cdot X_{BA_aero}) + (\rho_3 - \rho_5) \\
 \frac{dS_{NO_aero}}{dt} = \frac{1}{V_{aero}} \cdot (Q \cdot S_{NO_anox} - Q \cdot S_{NO_aero}) + \eta_2 \cdot \rho_3 \\
 \frac{dS_{NH_aero}}{dt} = \frac{1}{V_{aero}} \cdot (Q \cdot S_{NH_anox} - Q \cdot S_{NH_aero}) \\
 \quad + \left(-i_{XB} \cdot \rho_1 + \eta_1 \cdot (\rho_4 + \rho_5) - \left(i_{XB} + \frac{1}{Y_A} \right) \cdot \rho_3 \right)
 \end{cases} \quad (9)$$

where V_{aero} is the aerobic compartment volume and Q is the inner flow.

2) *Stoichiometric coefficients.* According to the IAWQ group [2], three out of five stoichiometric coefficients (f_p , Y_A , i_{XB}) are not likely to vary greatly from one wastewater to another and therefore are remained to their ASM1 numerical value. The parameter Y_H varies with the type of wastewater, and its magnitude is obtained by off-line measurements. Consequently for this application, Y_H is assigned to ASM1 reference value. Thus, only the two parameters η_1 and η_2 have to be estimated in the aerobic part. Similar reasoning for the anoxic part leads to one parameter to be estimated.

3) *Validation.* Three urban wastewater databases are available, corresponding to dry, rain and storm weather, which allow simulating real operating conditions. The parameters have been adjusted with a quasi-Newton algorithm for dry weather conditions and the model is now validated with data that have not been used for parameters estimation (rain and storm weathers).

The model, simulated in parallel with the reference model, presents an excellent accuracy for both weathers. Some results in storm conditions at the output of the reactor (aerobic state variables) are shown on figure 6. During the first two days, the steady state point of the reduced model is remarkably closed to the reference steady state point. Until the day 10, the weather is the standard dry weather, and the model accuracy is excellent. At day 10, the storm event induces rough disturbances on model inputs which influences are visible on output state variables. Though these drastic conditions, the behavior of the reduced model state variables appears hardly different from the reference state variables.

More precisely, the biomasses (X_{BH} and X_{BA}) are perfectly modeled and the dynamic variations of the carbon state variable XS_S are very close to the reference model. The most difficult behavior to reproduce is the dynamics of nitrogen fractions (S_{NO} and S_{NH}). The reduced model preserves its previous accuracy with only a slight difference at the major picks.

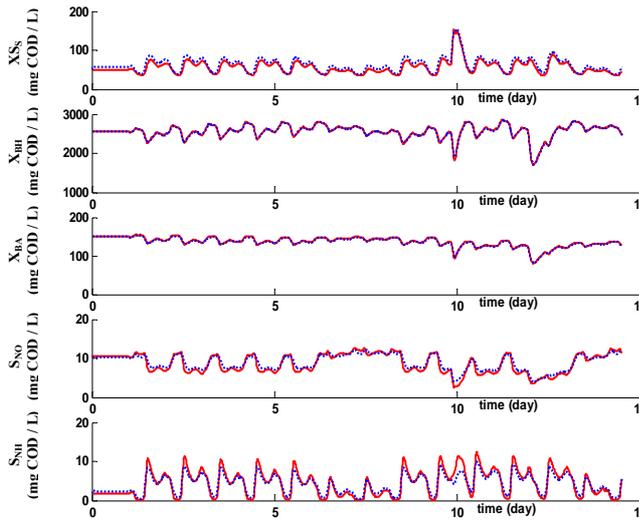


Fig. 6. Aerobic reduced model validation on storm weather (plain: Benchmark, dotted: reduced model).

If these results are compared with those obtained with the Jeppsson model that have been used on a real station [5], the proposed reduced model appears far more accurate, especially for nitrogen fractions, though the complexity is similar (same number of state variables and of parameter to be estimated). Consequently, this model is suitable for our purpose: on one hand, its accuracy is excellent so as to expect good performances for the observer based on that model and, on the other hand, this model is sufficiently simple to be validated on a real treatment plant.

V. MOVING HORIZON OBSERVER RESULTS

A. Observer Implementation

The observer is implemented by programming equations (4) to (6) in accordance with the post-stabilization approach. As for biological processes data are taken from sensors which are available only at discrete sample times, the continuous error criterion written in equation (2) is changed to a discrete form:

$$J(t_n) = \sum_{i=t_n-T}^{t_n} \left(y_{out}(i) - \hat{y}(i) \Big|_{z(t_n-T)} \right)^2 \quad (10)$$

This doesn't involve any other modification on the algorithm steps.

Therefore the observer is implemented with the above considerations and the model is used without any manipulation, which is very pleasant for updating the model.

The measured state variables choice has been made in the more realistic way that is possible. As mentioned in the simplification hypothesis of the reduced model (part IV), the choice of the state variables involves the ammonia nitrogen (S_{NH}) measurement. The high complexity of nitrogen behaviors, including both nitrate and nitrite (S_{NO}) and ammonia nitrogen (S_{NH}), associated with the fact that on-line sensors exists, lead to choose to measure S_{NO} and S_{NH} . Simulation tests showed that the best location is in the anoxic phase. In addition, the organic matter (XS_s) is supposed to be measured in the aerobic phase. This measurement may be realized through the Chemical Oxygen demand (COD) at the output of the secondary

settler, as the particulate part is supposed to be negligible. It can be noticed that all these sensors have a measurement delay but the past receding horizon lets take them into account in a very simple manner. Finally only three state variables out of ten are measured.

Only two parameters have to be tuned:

1) *Moving Horizon length (T)*: The receding horizon length choice is a delicate trade-off for the considered process. Actually the receding horizon length should not be larger than the response time of the process. In that case, the estimated state would take final values that no more depend on initial conditions. But on the other hand, the horizon length should not be too short to have enough information to distinguish the different state variables. As the sampling period is of 15 minutes (proposed by [1]), we have chosen, after some simulation tests, the receding horizon length of 4 sampling periods (1 hour).

2) *Observer gain (γ)*: this parameter is very important because it allows to tune the convergence speed. The value has to be sufficient so that the observer behaves differently from the model, but however a too high value may provide rough changes in the estimated state variables. This parameter is tuned with experiments on initial conditions changes.

B. Simulation results with respect to reduced model

To test the observer performances, the function of the real process is held by the reduced model, partly modified so as to simulate a model error. The input measurements are taken from the database.

Figure 7 shows state variables at the output of the reactor (aerobic phase) for different operating conditions. In order to estimate the observer efficiency, the reduced model is additionally computed in parallel with the observer.

First the observer is initialized to 80% of the steady state point to highlights the convergence speed. Since time 0.18 days, process kinetics parameters of the reduced model are increased of 25% from their nominal value (to obtain a perturbation on the simulated measurements), which simulates a temperature elevation, while the observer has no change. The organic matter XS_s , being a measured value, is perfectly estimated. The biomasses X_{BA} and X_{BH} though showing a long convergence duration, that may be explained because of their drastic initialization point, are very well estimated. For the nitrogen fractions (S_{NO} and S_{NH}), the efficiency of the observer is obvious: the observer estimation is globally close to the modified model though the reduced model is far less accurate.

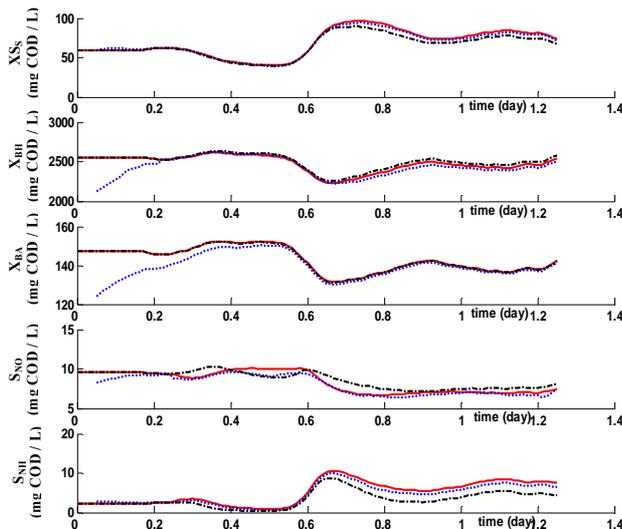


Fig. 7 Observer convergence in aerobic phase with dry weather data (red and plain: modified model, black and dash-dot line: reduced model only, blue and dotted: observer estimation using reduced model).

These simulation results show the observer compensates initialization and modeling errors. The next step is to test it on the reference plant simulator.

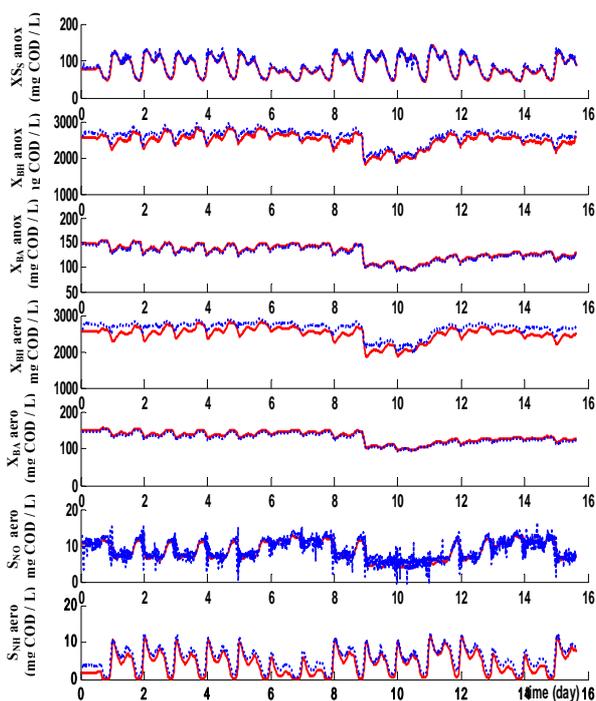


Fig. 8. Observer validation on rain weather data (red and plain: reference model, blue and dotted: observer estimation).

C. Validation on the reference plant

The observer has been tested with the reference plant simulator for rain and storm weathers which show similar results. Figure 8 presents all the 7 estimated state variables on rain weather.

The simulation results show that the moving horizon observer gives an accurate estimation of the process states. Even if some light offset may be noticed in some state variables like X_{BH} , the dynamical tendency is respected

with a very good accuracy for all the estimated state variables.

VI. CONCLUSION

In this paper a moving horizon state observer has been established for an activated sludge process. The reference plant and model is proposed by the European group COST Action 624. In a first step, a reduced model has been established and validated. The model shows an excellent accuracy. In addition the model has only few state variables and parameters to be estimated, which therefore can be validated on real plant.

The observer is very easy to implement, with no manipulation on the model, and needs only two parameters to be tuned. The simulation results are very promising, the robustness towards modeling errors is excellent without decreasing too much the dynamical accuracy.

These results confirm that the Moving Horizon State method is relevant and the next step is now to validate this observer on a real process.

REFERENCES

- [1] J.B. Copp, "The COST Simulation benchmark: Description and Simulator Manual," *Office for official Publications of the European Communities*, Luxembourg, 2002.
- [2] M. Henze, Jr. Gredy, W. Gujer, G. Marais, T. Matsuo, "Activated Sludge Model n°1," *LAWQ Scientific and Technical Report n°1*, London, 1986.
- [3] C. Cadet, J.F. Bêteau, S. C. Hernandez, "Multicriteria control strategy for cost/quality compromise in wastewater treatment plants," *Control Engineering Practice*, no. 12, pp. 335-347, 2004.
- [4] U. Jeppsson, "Modelling Aspects of wastewater treatment processes," Ph.D. dissertation, Lund Institute of Technology, Sweden, 1996.
- [5] C. Cadet, N. Lucas, J.F. Bêteau, A. Guillet, M. Arousseau, N. Simonin, "Modeling of wastewater treatment of a pulp and paper mill for monitoring," *Environmental Engineering and Management Journal*, vol. 2, no. 3, pp. 163-174, sept. 2003.
- [6] G. Bastin and D. Dochain, *On-line estimation and adaptative control of bioreactors*. Elsevier, 1990.
- [7] C. Cadet, P. Plouzenec, "synthesis of model based observers for activated sludge processes," *Mathmod*, Vienna.Austria, Feb. 2003.
- [8] Ph. Bogaerts, R. Hanus, "On-line estimation of bioprocesses with full horizon observers," *Mathematics and Computers in Simulation*, no. 56, pp. 425-441, 2001.
- [9] T. Raïssi, N. Ramdani, Y. Candau, "Bonded error moving horizon state estimator for non-linear continuous-time systems: application to a bioprocess system," *Journal of Process Control*, no. 15, pp. 537-545, 2005.
- [10] C.V. Rao, J.B. Rawlings, J.H. Lee, "Constrained linear state estimation – a moving horizon approach," *Automatica*, no. 37, pp. 1619-1628, 2001.
- [11] E. L. Haseltine, J.B. Rawlings, "Critical evaluation of Extended Kalman Filtering and Moving-Horizon Estimation," *Industrial and Engineering Chemistry Research*, no. 44, pp. 2451-2460, 2005.
- [12] C. Cadet, Y. Touré, G. Gilles, J.C. Gatina, "Nonlinear receding horizon observer and model based predictive control of evaporators in cane sugar industry," *Proceedings of European Control Conference*, Karlsruhe, Germany, 1999.
- [13] M. Alamir, "Optimization based non-linear observers revisited," *International Journal Control*, vol. 72, no. 13, pp. 1204-1217, 1999.
- [14] I. Takács, G.G. Patry, D. Nolasco, "A dynamic model of the clarification thickening process," *Wat. Res.*, vol. 25, no. 10, pp. 1263-1271, 1991.

RESUME

L'incinération des boues en lit fluidisé est un processus très complexe, produisant des polluants gazeux (monoxyde de carbone (CO) et oxydes d'azote (NOx)). Les normes de rejet doivent être respectées malgré les variations en quantité et en composition des boues à traiter. Une régulation de l'oxygène du four assure la maîtrise du CO mais pas des NOx. Leur formation, due à de nombreuses réactions chimiques à partir de l'azote des boues, est mal connue.

Un modèle prédisant les émissions de NOx a été établi. L'étude bibliographique a conduit à négliger les réactifs solides dans le four, et donc à simplifier fortement l'hydrodynamique et le nombre de réactions chimiques. Le modèle a été validé avec des mesures industrielles. Les résultats de simulation valident les hypothèses de simplification, mais nécessitent un recalage de la composition des boues. La stratégie de commande établie ensuite garantit le respect des normes des émissions de NOx.

Mots clés : incinération des boues, lit fluidisé, NOx, réaction chimique, modélisation, validation, commande.

ABSTRACT

Sludge incineration in fluidised bed is a very complex process, producing gaseous pollutants (carbon monoxide (CO) and nitrogen oxides (NOx)). The legislative norms need to be respected despite of variations of sludge in composition and in quantity. An oxygen regulation guarantees CO norm but not NOx norm. The NOx formation, due to lots of chemical reactions from the sludge nitrogen, is partly unknown.

A model predicting the NOx emissions has been proposed. Literature study leads to neglect the solid reactants, simplifying greatly the hydrodynamics and the number of chemical reactions. The model has been validated with industrial data. The simulation results validate the simplification hypotheses, but need the reconstruction of sludge composition. A control strategy implemented further next guarantees the legislative norm of NOx.

Keywords: sludge incineration, fluidised bed, NOx, chemical reaction, modelling, validation, control