



HAL
open science

Modélisation de la torréfaction de plaquettes de bois en four tournant et validation expérimentale à l'échelle d'un pilote continu de laboratoire

Baptiste Colin

► **To cite this version:**

Baptiste Colin. Modélisation de la torréfaction de plaquettes de bois en four tournant et validation expérimentale à l'échelle d'un pilote continu de laboratoire. Génie des procédés. Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, 2014. Français. NNT : 2014EMAC0015 . tel-01162630

HAL Id: tel-01162630

<https://theses.hal.science/tel-01162630>

Submitted on 11 Jun 2015

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.

Université Fédérale



Toulouse Midi-Pyrénées

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

École Nationale Supérieure des Mines d'Albi-Carmaux conjointement avec l'INP Toulouse

Présentée et soutenue par :

Baptiste COLIN

le mardi 2 décembre 2014

Titre :

Modélisation de la torréfaction de plaquettes de bois en four tournant et validation expérimentale à l'échelle d'un pilote continu de laboratoire

École doctorale et discipline ou spécialité :

ED MEGEP : Énergétique et transferts

Unité de recherche :

Rapsodee, CNRS - UMR 5302, École des Mines d'Albi-Carmaux

Directeur/trice(s) de Thèse :

Sylvain SALVADOR, Professeur, École des Mines d'Albi-Carmaux, Directeur
Patricia ARLABOSSE, Maître assistant HDR, École des Mines d'Albi-Carmaux, Co-directrice

Jury :

Mathieu PETRISSANS, Professeur, Université de Lorraine, Président
Hervé JEANMART, Professeur, Université Catholique de Louvain, Rapporteur
Frédéric MARIAS, Professeur, Université de Pau et des Pays de l'Adour, Rapporteur
Jean-Michel COMMANDRÉ, Docteur, CIRAD Montpellier, Examineur
Capucine DUPONT, Docteur, CEA Grenoble, Examinatrice
Jean-Louis DIRION, Maître assistant HDR, École des Mines d'Albi-Carmaux, Examineur
Matthieu CAMPARGUE, Directeur de RAGT Énergie, Invité

Table des matières

Table des matières	3
Nomenclature.....	7
Introduction générale.....	13
Chapitre 1 : Etat de l'art	19
I. La valorisation de la biomasse	22
I.1. Contexte énergétique mondial et européen	22
I.2. L'énergie en France	23
I.3. La biomasse énergie.....	25
I.4. Nécessité d'un prétraitement	27
II. La torréfaction	28
II.1. Principe et historique.....	28
II.2. Les modifications chimiques.....	29
II.3. Les modèles cinétiques	34
II.4. Les chaleurs de réaction	40
II.5. Les paramètres influençant la torréfaction	44
II.6. Les propriétés du bois torréfié.....	46
II.7. Les différentes technologies de torréfaction.....	54
III. Les fours tournants.....	57
III.1. Principe	57
III.2. L'écoulement de la charge	59
III.3. La Distribution des Temps de Séjour en four tournant	69
III.4. Les transferts thermiques en four tournant	73
IV. Conclusions.....	79
Chapitre 2 : Présentation et évaluation du four tournant pilote.....	81
I. Le dispositif expérimental	83
I.1. Présentation du four tournant pilote	83
I.2. Evaluation des faiblesses du dispositif et solutions proposées.....	86
I.3. Protocole expérimental	90

II.	La biomasse utilisée	92
II.1.	Choix de la biomasse.....	92
II.2.	Propriétés de la biomasse d'étude	94
III.	Evaluation du dispositif	95
III.1.	Stabilité du traitement.....	95
III.2.	Répétabilité des essais	97
IV.	Conclusions.....	98
Chapitre 3 : Modélisation de la torréfaction en four tournant : validation des sous-modèles		99
I.	Modélisation du transport de la charge.....	101
I.1.	Expériences de Distribution des Temps de Séjour	101
I.2.	Résultats.....	105
I.3.	Élaboration du modèle d'écoulement	112
I.4.	Conclusions sur le modèle de transport	115
II.	Modélisation des transferts thermiques.....	115
II.1.	Hypothèses.....	115
II.2.	Bilans thermiques sur les différentes phases	116
II.3.	Implémentation du modèle	119
II.4.	Sélection du coefficient d'échange paroi-solide et comparaison aux résultats expérimentaux	122
II.5.	Conclusions modèle de transferts thermiques.....	129
III.	Modélisation du séchage de la biomasse	130
III.1.	Mise en équation du séchage et intégration au modèle de four tournant.....	130
III.2.	La méthode des courbes caractéristiques	131
III.3.	Conclusions modèle de séchage	140
IV.	Modélisation des cinétiques de torréfaction.....	142
IV.1.	Etude thermogravimétrique	142
IV.2.	Ajustement des paramètres du modèle de Di Blasi & Lanzetta	146
IV.3.	Intégration au modèle de four tournant	153
IV.4.	Conclusions du modèle cinétique	154
V.	Conclusions générales de la modélisation	155

Chapitre 4 : Implémentation et validation expérimentale du modèle global	157
I. Implémentation du modèle global de torréfaction en four tournant	159
I.1. Résumé de la structure du modèle	159
I.2. Évolution des propriétés de la phase gaz	162
I.3. Ajustement des chaleurs de réaction	163
II. Étude expérimentale de la torréfaction de bois humide en four tournant	164
II.1. Choix des paramètres opératoires	164
II.2. Résultats expérimentaux	165
II.3. Conclusions de l'étude expérimentale	171
III. Validation et évaluation du modèle numérique	171
III.1. Résultats du modèle de torréfaction en four tournant	171
III.2. Analyse de sensibilité du modèle aux paramètres	178
III.3. Bilan énergétique du procédé	182
IV. Conclusions.....	184
Chapitre 5 : Les propriétés d'usage de la biomasse torréfiée	187
I. Aspect visuel.....	189
II. Composition	190
II.1. Composition élémentaire	190
II.2. Composition immédiate.....	193
II.3. Pouvoir calorifique et rendement énergétique	195
II.4. Teneur en fibres	197
III. Evaluation de l'hygroscopicité	201
III.1. Détermination des isothermes d'adsorption.....	201
III.2. Identification de modèles classiques	205
IV. Evaluation de la broyabilité.....	209
IV.1. Mise en place du dispositif expérimental	209
IV.2. Etablissement du protocole	210
IV.3. Broyabilité des différentes biomasses	213
IV.4. Prise en compte de la granulométrie du broyat.....	216
V. Conclusions.....	223

Conclusion générale et perspectives	225
I. Conclusions.....	227
II. Perspectives.....	230
Références bibliographiques.....	233
Annexes	249
I. Analyse par temps caractéristiques	251
I.1. Définition des temps caractéristiques	251
I.2. Calcul du nombre de pyrolyse dans le cas des plaquettes de hêtre utilisées	252
II. Établissement des équations constitutives du modèle	254
II.1. Conservation de la masse	255
II.2. Conservation de l'énergie	255
Liste des figures.....	259
Liste des tableaux.....	267

Nomenclature

a_w	Activité de l'eau	-
A_0	Facteur pré-exponentiel	s^{-1}
C	Concentration	$kg \cdot kg^{-1}$
C_p	Capacité thermique massique	$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$
C_{VR}	Constante de Von Rittinger	$J \cdot m \cdot kg^{-1}$
D_{ax}	Coefficient de dispersion axiale	$m^2 \cdot s^{-1}$
D_h	Diamètre hydraulique	m
d_p	Diamètre des particules	m
d_{50}	Diamètre médian	m
E	Fonction de distribution des temps de séjour	s^{-1}
E^r	Eclairement	$W \cdot m^{-2}$
E_a	Energie d'activation	$J \cdot mol^{-1}$
E_{ad}	Fonction de distribution des temps de séjour adimensionnelle	-
E_p	Fonction de distribution des temps de séjour du modèle d'écoulement piston avec dispersion axiale	s^{-1}
E_m	Fonction de distribution des temps de séjour du modèle de mélangeurs en cascade	s^{-1}
F	Facteur de forme	-
h	Hauteur locale du lit	m
h_d	Hauteur de diaphragme	m
h^c	Coefficient de transfert par contact paroi-solide	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$
h^{cv}	Coefficient de transfert par convection	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$
H_s	Humidité sur sec	%
H_z	Taux de remplissage local	%
ΔH	Chaleur de réaction	$J \cdot kg^{-1}$
J	Nombre de mélangeurs en cascade	-
J^r	Radiosité	$W \cdot m^{-2}$
k	Constante de vitesse de réaction	s^{-1}
L	Longueur du cylindre	m
L_{zone}	Longueur d'une zone de chauffe	m
L_{isol}	Longueur des zones isolées	m

L_{amont}	Longueur non isolée en entrée du four	m
L_{aval}	Longueur non isolée en sortie du four	m
m	Masse	kg
\dot{m}	Débit massique	$\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}$
ML	Perte de masse sèche	%
Nu	Nombre de Nusselt	-
Pe	Nombre de Péclet	-
Pr	Nombre de Prandtl	-
P_v	Pression partielle en vapeur d'eau	Pa
$P_{v,\text{sat}}$	Pression de vapeur saturante	Pa
\dot{Q}	Débit massique de solide	$\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}$
\dot{Q}_v	Débit volumique de solide	$\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$
R	Rayon du cylindre	m
R_i	Rayon interne du cylindre	m
R_e	Rayon externe du cylindre	m
R_{coq}	Rayon interne de la coquille chauffante	m
Re	Nombre de Reynolds	-
Re_ω	Nombre de Reynolds rotationnel	-
R_{GP}	Constante des gaz parfaits	$\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$
R_w	Vitesse de séchage	$\text{kg}_{\text{eau}}\cdot\text{kg}_{\text{bois sec}}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$
$R_{w,l}$	Vitesse de séchage de phase l	$\text{kg}_{\text{eau}}\cdot\text{kg}_{\text{bois sec}}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$
$R_{w,r}$	Vitesse de séchage réduite	-
\dot{r}	Vitesse de réaction des solides	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$
\dot{R}	Vitesse de réaction des matières volatiles	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$
S	Surface	m^2
S_g	Surface transversale de la phase gaz	m^2
S_l	Surface libre du lit	m^2
S_{pc}	Surface de paroi couverte par le lit	m^2
S_{pd}	Surface de paroi découverte	m^2
S_s	Surface transversale de la phase solide	m^2
t	Temps	s
t_{ad}	Temps adimensionnel	-
t_c	Temps de contact entre une particule et la paroi	s

$t_{\text{prélèvement}}$	Durée d'un prélèvement	s
t_s	Temps de séjour	s
\bar{t}_s	Temps de séjour moyen	s
T	Température	K
u	Vitesse axiale moyenne des particules	m.s^{-1}
v	Vitesse axiale	m.s^{-1}
V_i	Vitesse axiale de la phase i	m.s^{-1}
X	Teneur en eau du solide	$\text{kg}_{\text{eau}} \cdot \text{kg}_{\text{bois sec}}^{-1}$
X_{cr}	Teneur en eau critique du solide	$\text{kg}_{\text{eau}} \cdot \text{kg}_{\text{bois sec}}^{-1}$
$X_{\text{éq}}$	Teneur en eau à l'équilibre du solide	$\text{kg}_{\text{eau}} \cdot \text{kg}_{\text{bois sec}}^{-1}$
X_r	Teneur en eau réduite	-
Y	Teneur en eau du gaz	$\text{kg}_{\text{eau}} \cdot \text{kg}_{\text{gaz sec}}^{-1}$
z	Position axiale du cylindre	m

Lettres grecques :

α	Inclinaison du cylindre	rad
β	Angle de repos dynamique	rad
ε	Emissivité	-
η	Rendement massique sur sec	%
θ	Angle de charge	rad
$\dot{\theta}$	Terme source énergétique	W.m^{-3}
λ	Conductivité thermique	$\text{W.m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
μ	Viscosité dynamique	Pa.s
ρ	Masse volumique	kg.m^{-3}
σ	Constante de Stefan-Boltzmann	$\text{W.m}^{-2} \cdot \text{K}^{-4}$
σ^2	Variance	s^2
τ	Temps de passage	min
τ_g	Transmittivité du gaz	-
ϕ	Flux de chaleur	W
Φ	Somme des flux de chaleur	W
χ	Epaisseur de la couche de gaz entre la paroi et le lit de particules	-
ω	Vitesse de rotation	tr.s^{-1}
Ω_i	Volume de la phase i	m^3

Indices et exposants :

c	Contact paroi-solide
coq	Coquille chauffante
cv	Convection
g	Gaz
p	Paroi
pe	Paroi extérieure
pertes	Pertes du cylindre vers le milieu ambiant
r	Rayonnement
s	Solide
tor	Bois torréfié

Sigles :

ADF	Acid Detergent Fiber
ADL	Acid Detergent Lignin
ATG	Analyse Thermo-Gravimétrique
ATD	Analyse Thermique Différentielle
CCNUCC	Convention Cadre des Nations Unies sur les Changements Climatiques
CF	Carbone fixe
CHL	Cellulose-Hémicellulose-Lignine
DAEM	Distributed Activation Energy Model
DEM	Discret Element Method
DME	Diméthyléther
DSC	Differential Scanning Calorimetry
DTS	Distribution des Temps de Séjour
DVS	Dynamic Vapor Sorption
GES	Gaz à Effet de Serre
GIEC	Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat
HGI	Hardgrove Grindability Index
HR	Humidité relative
HWI	Hybrid Work Index

IUPAC	International Union of Pure and Applied Chemistry
MV	Matières Volatiles
NDF	Neutral Detergent Fiber
PCI	Pouvoir Calorifique Inférieur
PCS	Pouvoir Calorifique Supérieur
PID	Proportionnel Intégral Dérivé
SEC	Essais de séchage
SPPS	Société de Participation Parisienne des Sciures
TC	Taux de cendres
TFT	Essais de torréfaction en four tournant
TH	Essais de chauffe de bois sec

Introduction générale

Le contexte actuel d'accroissement constant de la consommation énergétique soulève de nombreuses problématiques environnementales et économiques. En effet, les filières de production de l'énergie sont historiquement basées sur l'utilisation de ressources fossiles. La transformation de ces ressources en énergie directement utilisable par le consommateur (électricité et chaleur) libère cependant d'importantes quantités de gaz à effet de serre. Ces gaz sont à l'origine du réchauffement climatique dont les retombées sur le climat, les écosystèmes et la santé sont considérables. D'autre part, la forte consommation des ressources fossiles entraîne leur raréfaction menant à une hausse importante des prix. Pour limiter l'impact environnemental, il est donc indispensable de produire davantage d'énergie provenant de sources renouvelables. Pour s'adapter au contexte économique, les énergies renouvelables doivent être bon marché. C'est pourquoi le secteur des énergies renouvelables fait l'objet d'un intense effort de recherche et de développement ces dernières années.

Les principales sources d'énergie renouvelable sont l'énergie hydraulique, l'énergie solaire, l'énergie éolienne et la biomasse. La filière biomasse est en plein essor et représente environ 45 % de la production d'énergie renouvelable en France. Ceci s'explique par la forte disponibilité des ressources sur l'ensemble du territoire et par la relative simplicité des procédés de valorisation traditionnels : combustion et cocombustion. Pour répondre aux besoins, d'autres procédés sont actuellement en développement, notamment avec pour objectif de produire des biocarburants. C'est le cas de la gazéification et de la pyrolyse. Ces procédés consistent à traiter la biomasse à des températures allant de 500 °C à plus de 1000 °C dans une atmosphère contrôlée (inerte ou légèrement oxydante). Cependant, la biomasse présente certains inconvénients qui freinent le développement de ces technologies. La biomasse est notamment un matériau à faible densité énergétique dont les propriétés sont extrêmement variables. De plus, sa forte affinité avec l'eau diminue les rendements des procédés de valorisation. Enfin, la structure lignocellulosique est extrêmement résistante ce qui rend son broyage très coûteux, particulièrement dans le cas des plaquettes de bois qui constituent le principal gisement de biomasse. Ce dernier aspect est particulièrement important pour les procédés nécessitant l'injection de biomasse sous forme pulvérulente comme la cocombustion et la gazéification. Pour pallier ces désavantages, il est envisagé de faire appel à une étape de prétraitement : la torréfaction.

La torréfaction est un traitement thermique à basse température (200-300 °C) en défaut d'oxygène. Ce traitement entraîne la dégradation de certains composants de la biomasse, ce qui confère au matériau de nouvelles propriétés. La biomasse torréfiée est par exemple plus dense énergétiquement, moins hygroscopique et plus fragile que la biomasse brute. Ce prétraitement a cependant un coût énergétique lié d'une part à l'énergie fournie au matériau et, d'autre part, à sa perte de masse au cours du traitement. Si les mécanismes intervenant lors de la torréfaction ont été largement étudiés, peu d'études ont été menées à l'échelle du procédé. Plusieurs technologies ont tout de même été identifiées pour réaliser ce prétraitement. C'est le cas notamment des fours tournants qui sont de conception simple, robuste et qui sont déjà largement utilisés à l'échelle industrielle pour de multiples transformations (séchage, calcination etc...).

L'objectif de ces travaux est de modéliser la torréfaction en four tournant afin d'évaluer le bilan énergétique de ce procédé. Le bilan énergétique doit prendre en compte l'énergie nécessaire au séchage des plaquettes, l'énergie utilisée pour les torréfier et leur perte de masse, mais également les gains dus à la densification énergétique du matériau et à la diminution de l'énergie de broyage.

Une approche numérique est donc adoptée afin de prédire la perte de masse des plaquettes en fonction des paramètres opératoires, alors qu'une approche expérimentale permet de relier cette perte de masse aux propriétés des plaquettes torréfiées. La modélisation de la torréfaction en four tournant fait appel aux bilans de chaleur et de matière des étapes de chauffe du bois et de séchage. Ceci permet d'évaluer la montée en température du lit. La détermination d'un schéma cinétique et des constantes de réaction associées est ensuite nécessaire pour en déduire la perte de masse.

Les mesures de la composition du bois torréfié ainsi que de son pouvoir calorifique permettent de quantifier partiellement la densification énergétique apportée par la torréfaction. La diminution de l'hygroscopicité est un autre aspect de cette densification. L'enjeu est alors de savoir s'il existe une perte de masse optimale pour stocker la biomasse en limitant la reprise d'humidité. Une telle détermination peut être réalisée par mesure des isothermes de sorption. Enfin, dans le cas de la broyabilité, l'objectif est de connaître l'économie d'énergie réalisée sur l'étape de broyage suite à la torréfaction. Ceci passe par la définition d'un critère de comparaison prenant en compte simultanément l'énergie

consommée par un broyeur et la granulométrie du broyat. La comparaison des énergies de broyage du bois brut sec et du bois brut humide est également indispensable afin de faire la part entre le gain dû à l'étape de torréfaction et le gain dû au séchage.

Le chapitre 1 présente un état de l'art détaillé du contexte de l'étude. Dans un premier temps, les caractéristiques thermochimiques des réactions de torréfaction sont passées en revue. L'évolution des propriétés de la biomasse lors de la torréfaction est également décrite. Enfin, après présentation des différentes technologies envisagées pour réaliser la torréfaction, l'accent est mis sur le fonctionnement des fours tournants. Une attention particulière est apportée à la description de l'écoulement de la charge ainsi qu'à l'expression des coefficients de transferts thermiques au sein du cylindre tournant.

Le chapitre 2 décrit le four tournant pilote et les modifications qui ont été réalisées pour l'adapter à la torréfaction de plaquettes de bois. La biomasse d'étude est ensuite présentée puis des essais de torréfaction en four tournant sont analysés afin d'évaluer le dispositif expérimental.

Le chapitre 3 consiste en la modélisation successive des différents phénomènes intervenant lors de la torréfaction en four tournant. Dans un premier temps, l'écoulement de la charge est étudié par l'intermédiaire d'expériences de distribution des temps de séjour. Des essais de chauffe de bois sec permettent ensuite de valider un modèle de transferts thermiques. Le séchage est également étudié expérimentalement et modélisé par la méthode de la courbe caractéristique. Enfin, une étude thermogravimétrique mène à l'adaptation d'un modèle cinétique de dégradation du bois.

Le chapitre 4 propose l'assemblage des différents sous-modèles en un modèle global. Des essais de torréfaction en four tournant permettent ensuite l'étude des paramètres d'influence du procédé. Les résultats numériques et les résultats expérimentaux sont alors confrontés, ce qui mène à l'évaluation des forces et des limites du modèle.

Enfin, dans le chapitre 5, les plaquettes torréfiées lors des essais sont analysées en termes de composition. L'objectif est ensuite de relier les propriétés du matériau à la perte de masse subie lors de la torréfaction. L'accent est finalement mis sur la quantification de l'hygroscopicité et de la broyabilité du bois torréfié.

Chapitre 1 : Etat de l'art

La torréfaction de la biomasse a fait l'objet de nombreuses études ces dernières années. Un état de l'art détaillé semble donc indispensable afin d'identifier les principales avancées mais également les zones d'ombres qui persistent. Cette étude bibliographique a donc pour objectifs d'une part d'établir un socle de connaissances nécessaires à la compréhension des phénomènes intervenant lors de la torréfaction et d'autre part de mettre en évidence les aspects technologiques qui nécessitent un approfondissement.

Pour ce faire, la torréfaction sera dans un premier temps resituée dans le contexte énergétique actuel. Les mécanismes de torréfaction seront ensuite décrits et mis en relation avec les propriétés de la biomasse produite. L'accent sera également mis sur les modèles cinétiques développés dans la littérature et sur les mesures de chaleur de réaction.

Une comparaison des différentes technologies envisagées pour réaliser la torréfaction sera ensuite proposée et permettra de positionner le four tournant vis-à-vis des technologies concurrentes.

Enfin, les différents phénomènes dont la maîtrise est indispensable pour la conduite d'un traitement en four tournant seront détaillés. Les aspects qui seront ainsi évoqués sont le transport d'un matériau granulaire le long d'un cylindre en rotation et les différents types de transferts thermiques mis en jeu. Cette partie servira de base à la modélisation du procédé de torréfaction en four tournant.

I. La valorisation de la biomasse

I.1. Contexte énergétique mondial et européen

Ces dernières années, le marché de l'énergie est soumis à de fortes tensions. Celles-ci sont dues pour partie à l'épuisement des ressources fossiles, mais également à l'accroissement constant de la consommation énergétique. Ceci occasionne une forte hausse des prix du pétrole, du gaz et dans une moindre mesure du charbon [1].

D'autre part, l'aspect écologique a récemment pris une place importante dans les politiques internationales. En effet, les rapports successifs du Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat (GIEC) tendent à prouver les causes anthropiques du réchauffement climatique. La version de 2014 a notamment permis de prouver que ce réchauffement est dû à l'activité humaine avec au moins 95 % de certitude. Les conséquences de ce phénomène restent encore difficiles à quantifier mais il ne fait désormais plus de doute qu'il aura des retombées sur le climat, les écosystèmes et la santé.

Les rassemblements internationaux, notamment de la Convention Cadre des Nations Unies sur les Changements Climatiques (CCNUCC), ont permis de définir les axes que doivent suivre les politiques climatiques. L'objectif principal de ces politiques est la réduction des émissions de gaz à effet de serre (CO₂, CH₄, N₂O, HFC, PFC et SF₆). Le premier objectif concret a été instauré lors du protocole de Kyoto, entré en vigueur en 2005. Les 40 pays signataires les plus industrialisés s'y engageaient à réduire leurs émissions d'au moins 5 % sur la période 2008-2012 par rapport à 1990.

A l'échelle européenne, de nouveaux objectifs ont été fixés en 2007. Ces objectifs, nommés les « 3x20 », sont composés de trois volets à atteindre à l'horizon 2020 [2]:

- Augmenter à 20 % la part des énergies renouvelables dans la consommation totale d'énergie,
- Améliorer de 20 % l'efficacité énergétique,
- Réduire de 20 % les émissions de gaz à effet de serre (GES) par rapport à 1990.

L'objectif final de ces mesures est principalement de limiter à 2 °C la hausse des températures à la surface du globe.

I.2. L'énergie en France

La France a quant à elle décidé de fixer des objectifs plus ambitieux à long terme. Elle s'est en effet engagée à diviser par 4 ses émissions de GES entre 1990 et 2050 [1]. Ceci nécessite donc notamment d'augmenter fortement la production d'énergies renouvelables dont l'impact est limité sur l'environnement.

La **Figure 1** présente la répartition de la consommation d'énergie primaire par forme d'énergie pour l'année 2012.

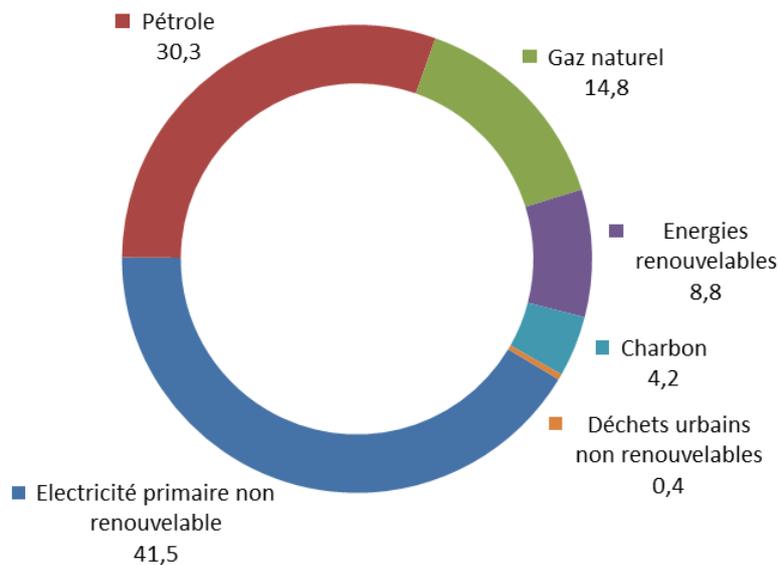


Figure 1 : Répartition (en %) de la consommation d'énergie primaire en France pour 2012 (d'après [1]).

Il apparaît clairement que l'énergie la plus utilisée en France est électrique, l'électricité primaire non renouvelable étant principalement fournie par les centrales nucléaires et les stations de transfert d'énergie par pompage. Les sources majoritaires sont ensuite le pétrole, principalement utilisé pour les transports, et le gaz naturel. Les énergies renouvelables arrivent donc en quatrième position et ne représentent que 8,8 % de la consommation totale. L'objectif de 20 % d'énergies renouvelables, imposé par l'Union Européenne à l'ensemble des pays membres, nécessite donc d'accélérer de manière importante l'implantation des unités de production de ce type d'énergies.

Par définition, une énergie renouvelable provient d'une source que l'on peut facilement régénérer. Les différentes sources d'énergie renouvelable et leur répartition pour la France sont présentées **Figure 2**.

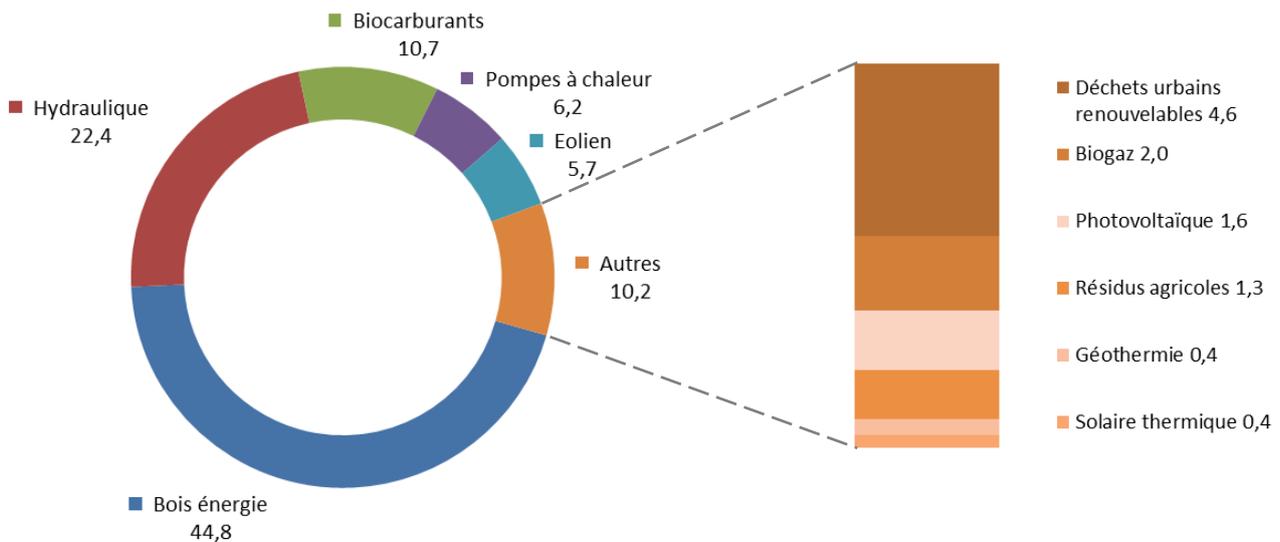


Figure 2 : Répartition (en %) de la production d'énergies primaires renouvelables en France pour 2012 (d'après [1]).

Le bois énergie représente 44,8 % de la production d'énergie renouvelable. Il est en effet consommé pour le chauffage individuel des habitations mais également par des installations industrielles permettant de produire de la chaleur ou de l'électricité. L'implantation d'unités de cogénération (production simultanée de chaleur et d'électricité) biomasse a également été encouragée ce qui a permis l'augmentation de la production d'énergie à partir du bois. Les autres énergies renouvelables sont principalement l'énergie hydraulique, les biocarburants, l'énergie produite par les pompes à chaleur et l'énergie éolienne.

De cette répartition peuvent être tirées plusieurs conclusions. Tout d'abord, il faut noter que certaines productions ont des marges de progression limitées. C'est notamment le cas de l'énergie hydraulique dont l'implantation est soumise à de fortes contraintes géographiques. Dès lors, il apparaît qu'une augmentation significative de la production d'énergie renouvelable doit nécessairement s'appuyer sur l'utilisation de la biomasse, que ce soit par l'utilisation directe de bois énergie ou par la transformation de la biomasse en biocarburants.

I.3. La biomasse énergie

Le terme « biomasse énergie » inclut de nombreux types de biomasses et plusieurs voies de valorisation. La compréhension du contexte de cette étude nécessite donc d'explicitier ces termes et d'en décrire les différentes composantes.

I.3.1. Les différents types de biomasse

La biomasse désigne classiquement tous les matériaux d'origine organique.

Historiquement, le bois bûche est la première biomasse utilisée pour ses qualités énergétiques. Pour des raisons économiques, les utilisateurs de biomasse à l'échelle industrielle se sont rapidement tournés vers les coproduits des différentes opérations de transformation du bois. Ces sous-produits comprennent les menus bois obtenus lors de l'abattage des arbres en forêt mais également les bois d'éclaircie et les bois de qualité non adaptée à la valorisation en scierie. Viennent ensuite les coproduits de scierie (sous forme de plaquettes ou de sciures) et les produits bois en fin de vie, traités ou non (palettes, panneaux, bois de charpente...).

Pour l'achat de ces biomasses, la filière bois énergie est en concurrence avec les industries de la trituration (industrie papetière et industrie des panneaux) [3]. Il est donc nécessaire de trouver de nouvelles sources d'approvisionnement. C'est pourquoi les énergéticiens se tournent désormais de plus en plus vers les résidus agricoles (paille, balles, coquilles...) mais également vers les cultures dédiées à l'usage énergétique (taillis à courte ou très courte rotation).

Malgré cette diversification des matières premières, le bois reste la biomasse de référence. Les volumes mobilisables sont en effet très importants et, au vu de l'accroissement forestier, une exploitation durable semble encore compatible avec une augmentation de la consommation [4].

I.3.2. Les filières de valorisation thermochimique

La **Figure 3** présente les principales voies de valorisation thermochimique de la biomasse.

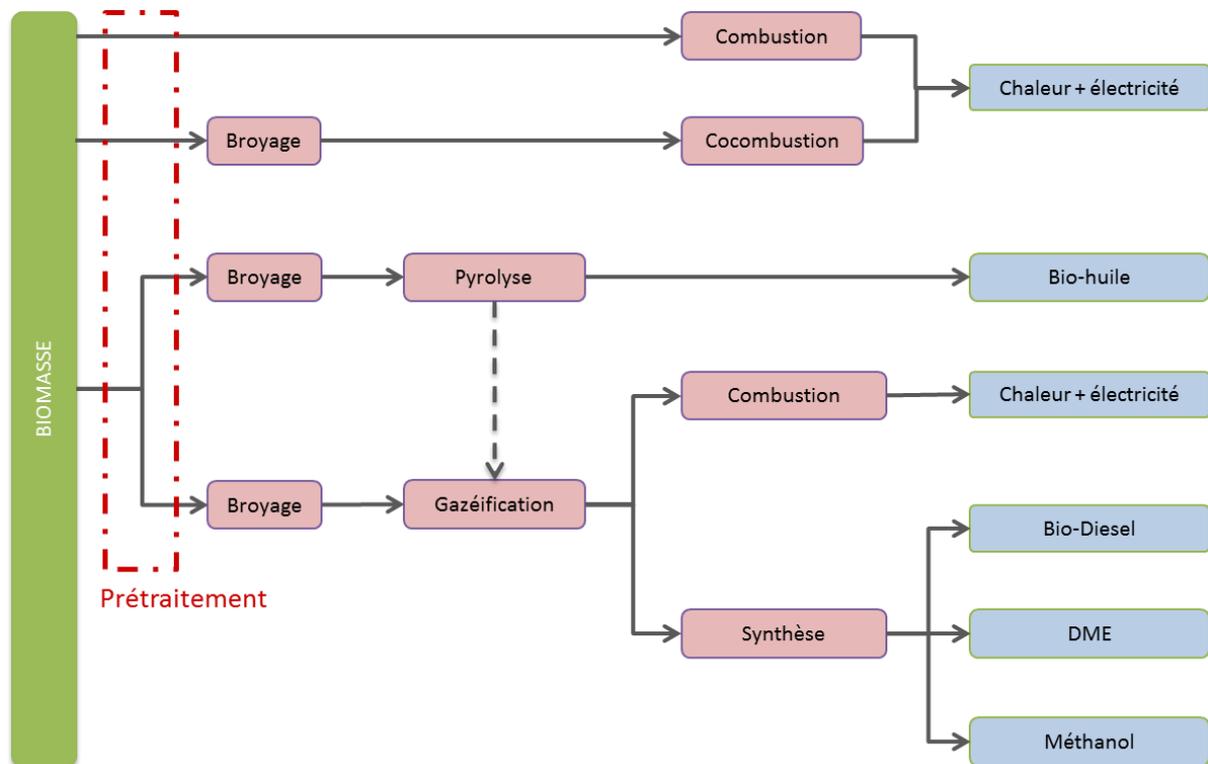


Figure 3 : Les principales filières de valorisation thermochimique de la biomasse.

Actuellement, les filières les plus représentées industriellement sont celles de la **combustion** et de la **cocombustion** (combustion simultanée de biomasse et de charbon) car ces procédés sont maîtrisés et exploités depuis plusieurs années déjà [5,6]. Ils permettent la production de chaleur et/ou d'électricité.

Les autres filières de valorisation sont principalement la pyrolyse et la gazéification [7]. La **pyrolyse** est un procédé thermique mené classiquement à des températures comprises entre 500 et 1000 °C sous atmosphère inerte. Lors de la montée en température, la biomasse subit tout d'abord une phase de séchage puis une phase de réaction thermochimique qui mène au dégagement de matières volatiles. Ces matières volatiles sont composées de gaz condensables (huiles) et incondensables et le résidu solide est un charbon. Ces trois fractions sont ensuite valorisables énergétiquement ou chimiquement. Les proportions de ces différentes phases sont principalement contrôlées par la vitesse de chauffe et la température de traitement [7]:

- Une pyrolyse dite « rapide » à 500 °C mène principalement à la production d'huile alors qu'à 1000 °C les gaz incondensables sont favorisés.
- Une pyrolyse dite « lente » favorise la production de charbon quelle que soit la température.

Enfin, la **gazéification** est également un traitement thermique à des températures supérieures à 900 °C sous atmosphère légèrement oxydante (CO_2 , H_2O , O_2 ou air sous stoechiométrique). Dans un gazéifieur, la biomasse subit donc successivement une étape de séchage puis une étape de pyrolyse. Le charbon de bois obtenu (ainsi que les gaz de pyrolyse) réagissent ensuite par des réactions de gazéification pour produire des gaz combustibles (principalement CO , H_2 , CH_4) mais également incombustibles (CO_2). Les gaz combustibles ainsi produits peuvent alors être valorisés par combustion, en chaudière ou en moteur, pour produire de la chaleur et/ou de l'électricité. Une autre voie de valorisation pour ces gaz est la production de bio-carburants (bio-diesel, DME, méthanol) en passant par une étape de synthèse chimique [8].

I.4. Nécessité d'un prétraitement

Dans le cas de la filière de combustion directe, une étape de prétraitement s'avère nécessaire lorsque la biomasse doit être transportée sur de longues distances. En effet, étant donné la faible densité énergétique apparente des plaquettes de bois (2,2 à 4 GJ/m^3) [9], la densification de cette biomasse peut permettre de limiter considérablement les coûts de transport et de manutention [10]. Le prétraitement classiquement retenu est la pelletisation qui permet d'obtenir une densité énergétique de 7,8 à 10,5 GJ/m^3 [9]. Cependant, la pelletisation nécessite de broyer la biomasse à une granulométrie de quelques millimètres maximum [11,12], ce qui représente un coût énergétique important (20 à 80 $\text{kW}_e/\text{MW}_{\text{th}}$ suivant la biomasse et la granulométrie du broyat, d'après [13]).

Les autres filières (cocombustion et gazéification notamment) nécessitent généralement l'injection de la biomasse sous forme pulvérulente. Une étape de broyage fin est donc également indispensable [14].

Les coûts induits par ces étapes de broyage justifient donc la recherche d'un prétraitement capable de fragiliser le matériau. C'est le cas de la torréfaction qui est à ce jour l'une des voies les plus prometteuses pour s'intégrer efficacement dans les chaînes de production d'énergie à partir de biomasse [15,16].

II. La torréfaction

II.1. Principe et historique

La torréfaction de la biomasse est un traitement thermique à basse température (classiquement 200-300 °C) sous atmosphère inerte. Une partie de la matière est dégradée ce qui occasionne une perte de masse et confère au bois torréfié des propriétés intermédiaires entre celles du bois brut et du charbon.

Dès les années 1930, des études se sont intéressées à ce nouveau matériau et ont évalué la possibilité de l'utiliser comme substitut au charbon dans les procédés de gazéification [17]. Ces études restent cependant limitées [18] et il faut attendre les années 1980 pour voir à nouveau la biomasse torréfiée mise en avant, cette fois en tant qu'agent réducteur dans les procédés métallurgiques [13]. Ceci a notamment abouti à la construction, par Péchiney, d'une unité de démonstration qui sera démantelée quelques années plus tard pour des raisons économiques.

Par la suite, les connaissances acquises sur la torréfaction ont permis d'envisager une utilisation du bois torréfié comme bois d'œuvre. Plusieurs procédés ont alors été développés [19], les principaux étant PLATO® (Pays-bas), RETIWOOD® (France) et THERMOWOOD® (Finlande). Tous ces procédés sont basés sur le principe de la torréfaction, les principales différences résidant dans les profils de température appliqués au bois. Les planches ainsi produites sont plus résistantes aux dégradations, plus stables dimensionnellement mais également plus fragiles [20]. Des diminutions de 50 % de la résistance à la flexion ont notamment été rapportées pour du bois résineux traité à 220 °C [21]. Elles sont donc destinées à la production d'éléments peu sollicités mécaniquement comme le mobilier d'extérieur, le bardage ou les menuiseries.

Cette fragilité, si elle est un inconvénient lors de la valorisation en bois d'œuvre, représente un véritable avantage pour la valorisation énergétique. En effet, elle permet de diminuer considérablement l'énergie nécessaire au broyage de la biomasse (70 à 90 % de réduction d'après [22]) et ainsi de limiter les coûts liés à cette étape. C'est pourquoi, ces dernières années, de nombreuses études s'appliquent à décrire les différents mécanismes intervenant dans les procédés de torréfaction et leurs effets sur les propriétés du matériau.

II.2. Les modifications chimiques

La biomasse ligno-cellulosique est constituée de trois composés majoritaires [23] : la cellulose, les hémicelluloses et la lignine (CHL), auxquels viennent s'ajouter des composés extractibles présents en faibles quantités (quelques pourcents de la masse totale). C'est l'assemblage de ces constituants qui forme la paroi des cellules végétales comme présenté schématiquement **Figure 4**.

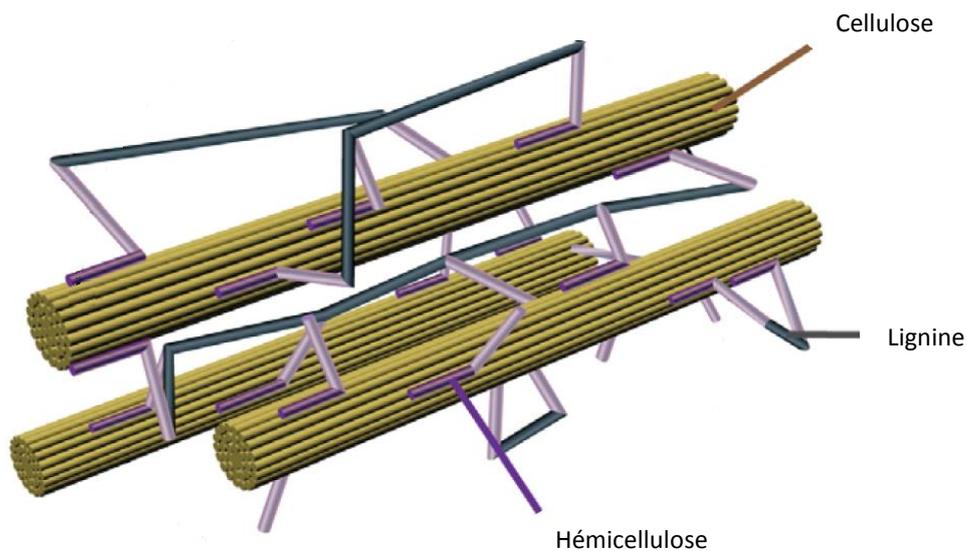


Figure 4 : Représentation schématique de la composition d'une paroi végétale (d'après [24]).

Il apparaît clairement que les fibres de cellulose, qui représentent 40 à 50 % de la masse totale du bois, sont reliées entre elles par la lignine qui est fixée aux hémicelluloses. C'est cet assemblage complexe qui confère au bois l'ensemble de ses propriétés.

L'étude du comportement thermique de chacun de ces composants est indispensable à la compréhension des phénomènes de torréfaction de la biomasse dans son ensemble.

II.2.1. Comportement des différents constituants de la biomasse

Dégradation de la cellulose

Comme mentionné précédemment, la cellulose est le constituant majoritaire de la biomasse. Une représentation de sa structure est proposée **Figure 5**.

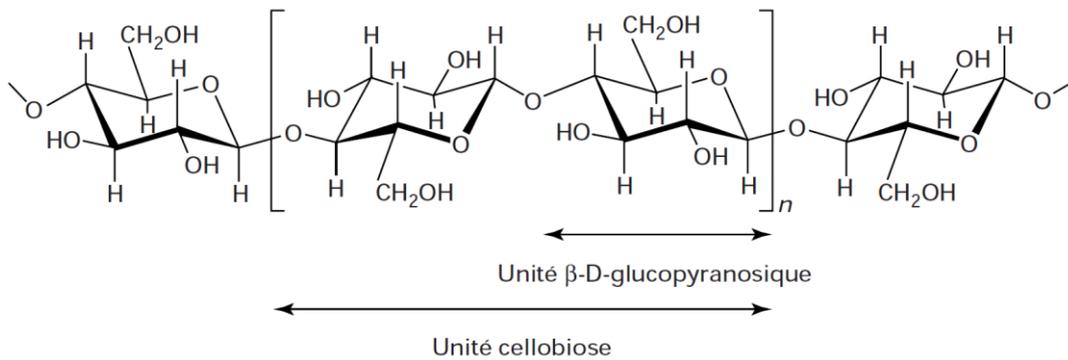


Figure 5 : Composition chimique de la cellulose (d'après [7]).

Une chaîne de cellulose est formée de 5 000 à 10 000 unités de glucose [25]. Ces chaînes sont assemblées sous forme de microfibrilles qui elles-mêmes forment des fibrilles. Il est à noter que certaines portions des microfibrilles sont désordonnées (cellulose amorphe) alors que d'autres sont ordonnées (cellulose cristalline). Il est possible de définir un indice de cristallinité (rapport cellulose cristalline / cellulose totale) qui est généralement compris entre 0,6 et 0,7 pour le bois brut [23].

La dégradation thermique de la cellulose a fait l'objet de plusieurs études [23,26–33]. L'une des méthodes les plus couramment utilisées est l'analyse thermogravimétrique (ATG) : une faible quantité de cellulose microcristalline est torréfiée à une température donnée et l'évolution de la masse est enregistrée. Il apparaît alors que la cellulose présente des pertes de masse significatives pour les températures supérieures à 250 °C [26,27]. Après analyse du solide produit et des matières volatiles dégagées, il a été montré qu'à ces températures le principal mécanisme de dégradation est la déshydroxylation [28]. La perte de groupements -OH conduirait ainsi à la formation d'une cellulose moins hydrophile et contenant des pyranoses insaturés. Les molécules produites par ces réactions sont principalement des molécules d'eau, mais également du lévoglucosane, du CO et du CO₂ aux températures les plus élevées (280-300 °C).

Une autre tendance souvent observée est l'augmentation de l'indice de cristallinité de la cellulose dès les basses températures (120-180 °C) [29]. Cette augmentation serait principalement due à la dégradation préférentielle de la cellulose amorphe, ce qui accroît la proportion de cellulose cristalline [30]. Cependant, d'autres auteurs expliquent cette évolution par un changement d'organisation moléculaire qui transformerait la cellulose amorphe en cellulose cristalline [31,32]. Il n'est donc pas impossible que ces deux

phénomènes aient lieu simultanément pour mener à une augmentation de l'indice de cristallinité. Cette augmentation a un impact direct sur les propriétés du bois torréfié car la configuration cristalline de la cellulose limite la pénétration de l'eau dans les fibres ce qui rend le matériau moins hygroscopique [23,32]. Cependant, il a été remarqué que pour les traitements aux plus hautes températures, la cellulose cristalline est dégradée à son tour ce qui peut favoriser le retour de l'eau [33].

Dégradation de la lignine

Les lignines sont des composés amorphes qui rigidifient la paroi cellulaire et permettent la cohésion entre les différentes cellules. Ce sont des polymères complexes formés à partir de trois alcools précurseurs présentés **Figure 6**.

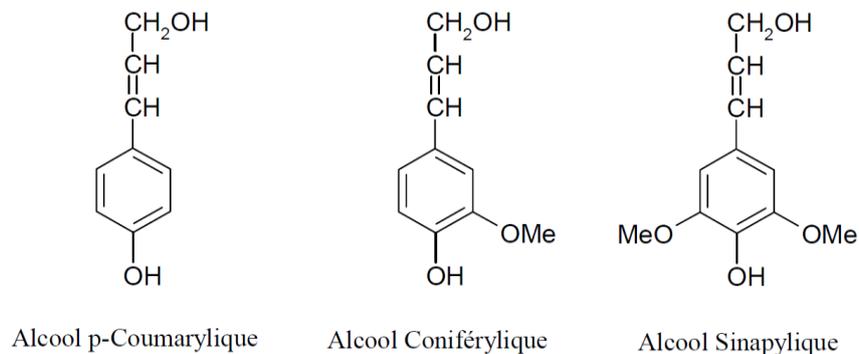


Figure 6 : Représentation schématique des phénols précurseurs des lignines (d'après [34]).

Ces alcools forment des polymères (principalement des unités hydroxyphenyl, gaiacyl et syringyl) qui eux-mêmes forment des lignines dont la composition diffère suivant la biomasse considérée.

Les études de torréfaction de la lignine ont montré que sa dégradation commence à plus basse température que celle de la cellulose (environ 150 °C) [28]. La perte de masse reste cependant limitée (inférieure à 15 %) pour les températures inférieures à 250 °C [26]. En effet, si certaines matières volatiles sont dégagées (principalement de l'eau, du CO, du CO₂ et du formaldéhyde), notamment suite à des réactions de déméthylation, les principales réactions ayant lieu dans les gammes de température de la torréfaction sont des réactions de condensation [35,36]. Celles-ci mènent à la formation de composés réticulés dérivés de la lignine. Des réactions de dépolymérisation existent ensuite aux températures supérieures à 250 °C alors que la dégradation des monomères produits n'interviendrait qu'à partir de 300 °C [31].

Dégradation des hémicelluloses

Les hémicelluloses jouent un rôle primordial dans la cohésion de la paroi cellulaire. En effet, comme présenté **Figure 4**, elles permettent la liaison entre les fibres de cellulose et la lignine. Ce sont des polysaccharides ramifiés composés de sucres à 5 carbones comme le xylane (majoritaire chez les feuillus), et de sucres à 6 carbones comme le glucose et le mannose (majoritaires chez les résineux) [23]. Les chaînes d'hémicellulose sont amorphes et contiennent de nombreux groupements hydroxyles qui en font le composé le plus hydrophile de la biomasse. Il est donc considéré comme le principal responsable de l'affinité du bois avec l'eau.

Les hémicelluloses sont les polymères les plus fortement dégradés aux températures de la torréfaction [26,27]. Les principales réactions mises en jeu lors de la torréfaction des hémicelluloses sont la déshydroxylation, la désacétylation et la dépolymérisation [37]. Dans les conditions les plus sévères de torréfaction, la quasi-totalité de l'hémicellulose est dégradée [38]. Enfin, le xylane étant plus sensible à la température que les glucomannanes, les feuillus présentent une perte de masse plus importante que les résineux à conditions de traitement identiques [39].

II.2.2. Les matières volatiles produites

Les matières volatiles produites sont constituées de gaz condensables et de gaz permanents (incondensables). Les proportions relatives de ces deux types de composés dépendent de la biomasse, de la durée et de la température de traitement [40–42]. Cependant, le rendement massique en gaz condensables (rapport entre la masse de condensables produits et la masse initiale de biomasse sèche) est toujours supérieur à celui en gaz permanents.

Les gaz condensables sont principalement composés d'eau, d'acide acétique, d'acide formique, de méthanol, d'acide lactique et de furfural. L'eau et l'acide acétique (marqueur de la dégradation des hémicelluloses) sont largement majoritaires quelles que soient les conditions de traitement [40,43]. La production de monoxyde de carbone semble quant à elle favorisée par les hautes températures.

Des espèces condensables lourdes, présentes en faibles quantités, ont également été identifiées [44]. Ce sont principalement des composés aromatiques pouvant faire l'objet d'une valorisation matière. Enfin, récemment, Nocquet *et al.* [26] ont mis en évidence

l'importance de la production de formaldéhyde qui serait la deuxième espèce condensable produite, après l'eau, comme présenté **Figure 7**.

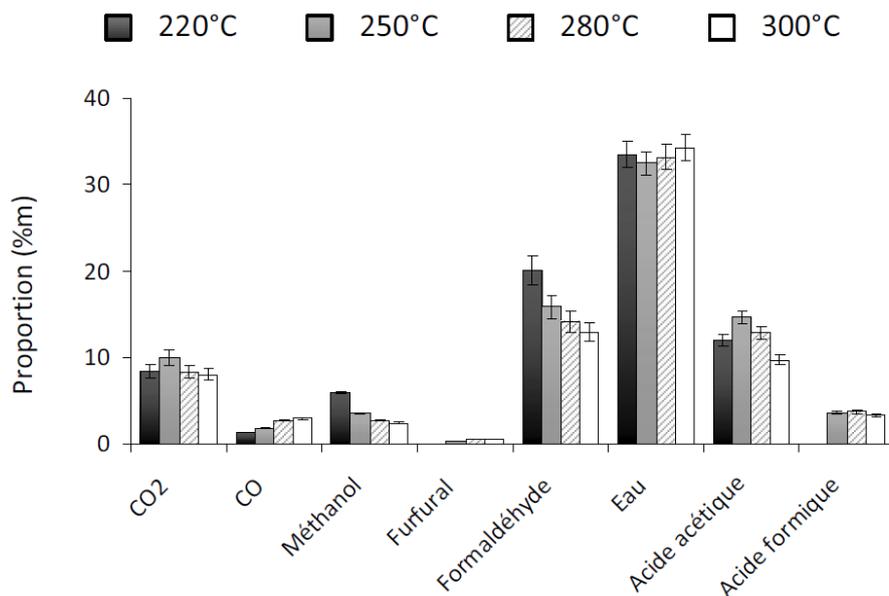


Figure 7 : Rendement en espèces volatiles après torréfaction du hêtre pendant 3h à différentes températures (d'après [18]).

Les gaz incondensables couramment observés sont le CO₂ et le CO. Le CO₂ est très largement majoritaire [40,41,43] mais le ratio CO/CO₂ augmente avec la température de torréfaction [40,45]. De faibles quantités de CH₄ sont également observées pour les plus hautes températures de traitement, notamment lors de la torréfaction de résidus agricoles [45].

II.2.3. Interactions entre les différents constituants de la biomasse

Comme présenté précédemment, le comportement individuel des principaux composants de la biomasse soumis à la torréfaction a été largement étudié. Cependant, leur évolution commune au sein du matériau reste peu connue. En effet, de nombreuses incertitudes persistent quant à l'effet synergétique de la dégradation de la cellulose, des hémicelluloses et de la lignine, mais également quant au rôle des cendres présentes dans la biomasse brute.

Malgré le manque de données sur ces phénomènes, certaines hypothèses ont été avancées :

- L'acide acétique libéré lors de la dégradation des hémicelluloses agirait comme catalyseur de la dépolymérisation de la cellulose [30,35] voire des lignines [31].
- Les composés radicalaires formés par la dégradation des hémicelluloses pourraient réagir avec les composés phénoliques des lignines [36].

- Les métaux alcalins (principalement le potassium) présents dans les cendres agiraient comme catalyseurs de la torréfaction [46–48].

Ces hypothèses amènent donc à penser que le comportement de la biomasse ne peut être assimilé à la somme des comportements de ses constituants. Ceci a été notamment été rapporté par Nocquet *et al.* [26]. Ils ont en effet comparé l'évolution du rendement massique du hêtre lors de la torréfaction à l'évolution prédite par additivité du comportement de ses différents constituants : pour les températures supérieures à 250 °C, la loi d'additivité ne fonctionne pas. De plus, l'observation de la perte de masse de mélanges des différents composants purs a permis de mettre en évidence que les principales interactions concernent les mélanges cellulose-lignine et cellulose-hémicellulose.

Il paraît donc difficile de prédire le comportement thermique d'une biomasse en se basant uniquement sur sa composition en cellulose-hémicellulose-lignine. C'est pourquoi de nombreuses études se sont attachées à décrire la décomposition de la biomasse par des modèles cinétiques.

II.3. Les modèles cinétiques

Depuis des décennies, de nombreux modèles cinétiques ont été développés pour décrire la décomposition de la biomasse au cours de la pyrolyse [49]. La torréfaction étant souvent considérée comme une pyrolyse à basse température, les modèles de pyrolyse ont récemment été adaptés au cas de la torréfaction. Leur principal objectif est de représenter les courbes de perte de masse dont un exemple est donné **Figure 8**.

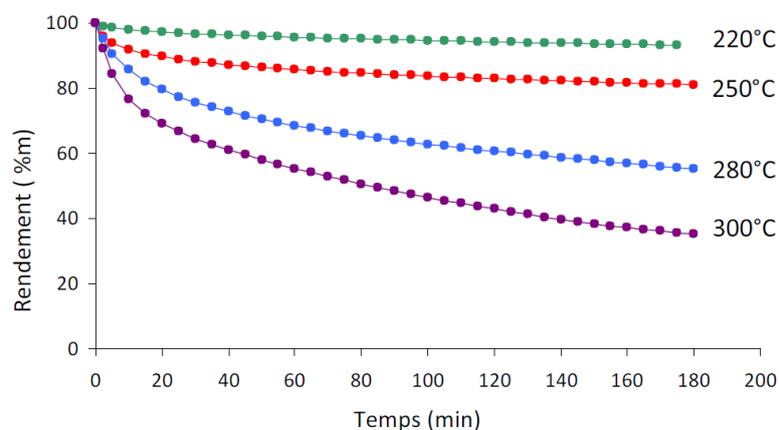


Figure 8 : Evolution du rendement massique lors de la torréfaction de hêtre à différentes températures (d'après [18]).

Les difficultés rencontrées lors de l'établissement de ces modèles sont dues à la nécessité de trouver un schéma et des paramètres cinétiques permettant de représenter précisément l'évolution de la perte de masse (ou du rendement) au cours du temps quelle que soit la température de traitement.

Les modèles présentés dans cette partie seront répartis en deux catégories :

- Les modèles « complexes », qui prennent en compte un grand nombre de réactions,
- Les modèles « globaux », qui ne considèrent que quelques réactions.

II.3.1. Les modèles « complexes »

Les plus couramment utilisés sont le modèle à énergie d'activation distribuée (DAEM pour « Distributed Activation Energy Model ») et le modèle initialement développé par Ranzi *et al.* [50].

Modèle DAEM

Dans ce modèle, la décomposition de la biomasse est considérée comme résultant d'un grand nombre de réactions irréversibles du premier ordre. Les constantes de vitesse de ces réactions suivent la loi d'Arrhenius présentée **Équation 1**.

$$k_i(T) = A_0 \exp\left(\frac{-E_{a,i}}{R_{GP}T}\right) \quad \text{Équation 1}$$

Avec k_i la constante de vitesse de la réaction i (s^{-1}), T la température absolue (K), A_0 le facteur pré-exponentiel (s^{-1}), $E_{a,i}$ l'énergie d'activation de la réaction i ($J.mol^{-1}$) et R_{GP} la constante des gaz parfaits ($J.mol^{-1}.K^{-1}$).

Toutes ces constantes ont le même facteur pré-exponentiel A_0 et leurs énergies d'activation respectives $E_{a,i}$ sont distribuées suivant une loi Gaussienne [49].

Ce modèle a récemment été appliqué au cas de la torréfaction [28]. Il a permis de représenter correctement la dégradation des composés CHL pour des températures allant de 240 à 290 °C. Le bois est alors assimilé à la somme de ses composants CHL, et les teneurs en ces trois composants ont été utilisées comme variables d'ajustement pour faire coïncider les résultats du modèle aux résultats expérimentaux obtenus en ATG.

Tapasvi *et al.* [51] ont également utilisé le modèle des énergies d'activation distribuées en considérant la décomposition de 3 pseudo-composants suivant des réactions d'ordre n . Ceci

a permis de représenter avec succès la perte de masse d'un résineux et d'un feuillu soumis à 9 profils de température différents.

Modèle proposé par Ranzi *et al.*

Ce modèle est l'un des seuls qui permettent de prédire simultanément la perte de masse du solide et la composition des matières volatiles produites lors de la pyrolyse. Dans le modèle original [50], ainsi que dans le modèle adapté par Gauthier *et al.* [53], plusieurs centaines de réactions secondaires en phase gaz sont prises en compte. Dans le modèle adapté par Blondeau et Jeanmart [54], seules les réactions secondaires intraparticulaires sont prises en compte.

Tableau 1 : Réactions prises en compte dans le modèle d'Ance-Couce *et al.* (d'après [52]).

		Reaction	A [s ⁻¹]	E [kJ/mol]
1	CELL	→ (1-x ₁) * (0.95 HAA + 0.25 GLYOX + 0.2 CH ₃ CHO + 0.25 HMFU + 0.2 C ₃ H ₆ O + 0.16 CO ₂ + 0.23 CO + 0.9 H ₂ O + 0.1 CH ₄ + 0.61 Char) + x ₁ * (5.5 Char + 4 H ₂ O + 0.5 CO ₂ + H ₂)	8 × 10 ¹³	192.5
5	HCE	→ 4/10 AA + 0.4 * [(1-x ₅) * (0.75 G{H ₂ } + 0.8 CO ₂ + 1.4 CO + 0.5 CH ₂ O + 0.25 CH ₃ OH + 0.125 ETOH + 0.125 H ₂ O + 0.625 CH ₄ + 0.25 C ₂ H ₄ + 0.675 Char) + x ₅ * (4.5 Char + 3 H ₂ O + 0.5 CO ₂ + H ₂)] + 0.6 HCEA2	1 × 10 ¹⁰	129.7
8	HCEA2	→ (1-x ₈) * (0.2 CO ₂ + 0.5 CH ₄ + 0.25 C ₂ H ₄ + 0.8 G{CO ₂ } + 0.8 G{COH ₂ } + 0.7 CH ₂ O + 0.25 CH ₃ OH + 0.125 ETOH + 0.125 H ₂ O + Char) + x ₈ * (4.5 Char + 3 H ₂ O + 0.5 CO ₂ + H ₂)	1 × 10 ¹⁰	138.1
9	LIG-C	→ 0.35 LIG-CC + 0.1 pCOUMARYL + 0.08 PHENOL + 0.41 C ₂ H ₄ + H ₂ O + 0.495 CH ₄ + 0.32 CO + G{COH ₂ } + 5.735 Char	4 × 10 ¹⁵	202.9
10	LIG-H	→ LIG-OH + C ₃ H ₆ O	2 × 10 ¹³	156.9
11	LIG-O	→ LIG-OH + CO ₂	1 × 10 ⁹	106.7
12	LIG-CC	→ (1-x ₁₂) * (0.3 pCOUMARYL + 0.2 PHENOL + 0.35 C ₃ H ₄ O ₂ + 0.7 H ₂ O + 0.65 CH ₄ + 0.6 C ₂ H ₄ + G{COH ₂ } + 0.8 G{CO} + 6.4 Char) + x ₁₂ * (14.5 Char + 3 H ₂ O + 0.5 CO ₂ + 4 H ₂)	5 × 10 ⁶	131.8
13	LIG-OH	→ H ₂ O + CH ₃ OH + 0.45 CH ₄ + 0.2C ₂ H ₄ + 1.4 G{CO} + 0.6 G{COH ₂ } + 0.1 G{H ₂ } + 4.15 Char + [(1-x ₁₃) * (y ₁₃ * FE2MACR + (1 - y ₁₃) * (H ₂ O + 0.5 CO + 0.2 CH ₂ O + 0.4 CH ₃ OH + 0.2 CH ₃ CHO + 0.2 C ₃ H ₆ O + 0.6 CH ₄ + 0.65 C ₂ H ₄ + G{CO} + 0.5 G{COH ₂ } + 5.5 Char)) + x ₁₃ * (10.5 Char + 3 H ₂ O + 0.5 CO ₂ + 3 H ₂)] y ₁₃ = - 3.680E-11 * T ⁵ + 8.262E-08 * T ⁴ - 6.891E-05 * T ³ + 2.613E-02 * T ² - 4.591 * T + 4.041E+02; T in [°C]	3 × 10 ⁸	125.5

Anca-Couce *et al.* [52] ont récemment appliqué ce modèle à la torréfaction en négligeant les réactions en phase gaz qui sont très limitées à basse température. Ils ont également montré que certaines modifications de ce modèle étaient nécessaires afin de prédire correctement les matières volatiles produites. Leur schéma final est constitué de 13 réactions dont les constantes de vitesse suivent la loi d'Arrhenius. Ces réactions sont présentées dans le

Tableau 1.

L'utilisation de ce modèle nécessite de déterminer la composition de la biomasse en termes de cellulose (CELL), hémicellulose (HCE) et lignines (LIG-C, LIG-H et LIG-O). Ces trois lignines sont dénommées suivant leurs teneurs élémentaires en C, H et O [55].

Les résultats numériques sont comparés à des résultats expérimentaux de torréfaction de hêtre à 250 et 285 °C. Le rendement massique est surestimé de 3 et 6 % pour ces deux températures mais une réelle amélioration est observée sur la prédiction de la production des principales matières volatiles par rapport au modèle original.

II.3.2. Les modèles « globaux »

Modèles les plus courants

Les deux modèles présentés précédemment sont complexes à mettre en œuvre. C'est pourquoi la plupart des modèles développés considèrent un nombre limité de réactions simples, généralement du premier ordre. Les plus utilisés sont présentés dans le **Tableau 2**.

Tableau 2 : Les modèles cinétiques globaux les plus utilisés (d'après [56,57]).

(1)	Modèle à une étape	$A \xrightarrow{K_B} B + V$
(2)	Modèle à une étape de deux réactions parallèles	$A \begin{cases} \xrightarrow{K_1} V \\ \xrightarrow{K_2} B \end{cases}$
(3)	Modèle à trois réactions parallèles	$A \begin{cases} \xrightarrow{K_1} V_{\text{condensables}} \\ \xrightarrow{K_2} V_{\text{incondensables}} \\ \xrightarrow{K_3} B \end{cases}$
(4)	Modèle à deux étapes de deux réactions parallèles	$A \begin{cases} \xrightarrow{K_{V1}} V_1 \\ \xrightarrow{K_B} B \end{cases} \quad B \begin{cases} \xrightarrow{K_{V2}} V_2 \\ \xrightarrow{K_C} C \end{cases}$
(5)	Modèle à trois étapes de deux réactions parallèles	$A \begin{cases} \xrightarrow{K_{V1}} V_1 \\ \xrightarrow{K_B} B \end{cases} \quad B \begin{cases} \xrightarrow{K_{V2}} V_2 \\ \xrightarrow{K_C} C \end{cases} \quad C \begin{cases} \xrightarrow{K_{V3}} V_3 \\ \xrightarrow{K_C} D \end{cases}$

Pour tous ces modèles, *A* représente la biomasse brute, *B*, *C* et *D* représentent des solides torréfiés et *V* représente les matières volatiles. Les constantes cinétiques *K* suivent la loi d'Arrhénius.

Le modèle (1) a permis de représenter correctement la perte de masse du hêtre et de l'épicéa lors de la torréfaction [58]. Cependant, de par sa construction, ce modèle prédit toujours la même répartition entre le char et les matières volatiles. Il n'est donc pas en mesure de prévoir l'évolution du rendement en solide lorsque la température de torréfaction varie, ce qui rend son utilisation limitée.

Le modèle (3), également appelé modèle de Shafizadeh et Chin, présente comme principal avantage de prédire l'évolution de la répartition des produits dans les trois phases (solide, liquide et gaz). Il a notamment été utilisé lors de la modélisation de la torréfaction d'une particule de bois [59]. Ce modèle à l'échelle de la particule a par la suite été intégré dans un modèle de pilote continu de torréfaction [60].

Le modèle (2) a été confronté aux modèles (4) et (5) dans une étude récente de la dégradation des composés CHL séparés, d'une essence de résineux et d'une essence de feuillu [61]. Il en a été conclu que le modèle (2) à une étape ne permet pas de prédire correctement la perte de masse du solide. Ceci est probablement dû au fait qu'en ne considérant qu'une seule étape, le ralentissement des réactions au cours du temps, observé expérimentalement, ne peut être représenté. Le modèle (4) à deux étapes décrit correctement les courbes de perte de masse lors de la torréfaction alors que le modèle (5) n'apporte qu'une faible amélioration en comparaison de la complexité qu'engendre la prise en compte d'une étape supplémentaire.

Ces observations sont cohérentes avec les autres études publiées sur les cinétiques de torréfaction. En effet, le modèle (4), également appelé modèle de Di Blasi et Lanzetta [62], est le modèle le plus couramment utilisé [39,43,58,63–66]. Il a initialement été développé pour décrire la dégradation du xylane lors d'une pyrolyse isotherme, ce qui peut expliquer sa bonne adaptation au domaine de la torréfaction. Il présente également l'avantage d'être simple à mettre en œuvre.

Cependant, il faut noter que ce modèle reste difficile à interpréter physiquement. Il a notamment été remarqué que le fait de représenter la production du bois torréfié et la production des matières volatiles par des réactions séparées est erroné [58].

Modèles originaux

Tous ces modèles présentant des avantages et des inconvénients, certains auteurs ont proposé des améliorations à ces schémas classiques.

Repellin *et al.* [58] modélisent séparément la torréfaction des composés CHL suivant le schéma présenté **Figure 9**.

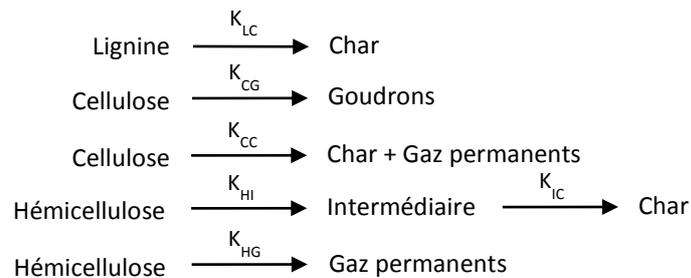


Figure 9 : Modèle cinétique de torréfaction proposé par Repellin *et al.* [58].

Ce modèle a été obtenu en simplifiant un modèle initialement développé par Rousset *et al.* [67]. Il apparaît clairement que ce modèle est basé sur une superposition des modèles simples présentés dans le **Tableau 2**. Bien qu'il repose sur des hypothèses fortes comme l'absence d'interactions entre les différents composés CHL, l'étude conclut à une bonne adéquation entre les résultats numériques et les valeurs expérimentales.

Deux études, basées sur le modèle de Di Blasi et Lanzetta, proposent de modéliser l'évolution de la composition des matières volatiles au cours du temps :

- Bates *et al.* [43] donnent des compositions différentes aux matières volatiles V_1 et V_2 produites lors des deux étapes du modèle.
- Nocquet *et al.* [68] considèrent que ces deux types de matières volatiles ont la même composition et la dégradation des différents composés CHL de la biomasse est modélisée séparément. L'originalité du modèle réside alors dans la prise en compte d'un quatrième composé, représentant les groupements acétyles de la biomasse, qui permet de modéliser la production d'acide acétique. La prise en compte des interactions entre les différents composés nécessite de déterminer un coefficient empirique dépendant de la température de torréfaction. Le modèle est donc difficile à extrapoler à d'autres biomasses et à d'autres conditions opératoires.

Enfin, Basu *et al.* proposent un modèle original [69]. La biomasse est tout d'abord dégradée par deux réactions parallèles, l'une menant à la production de char primaire et l'autre à la

production de matières volatiles. Une partie de ces matières volatiles, riches en hydrocarbures lourds, se redéposent alors à la surface du char primaire. Cette redéposition est prise en compte par l'intermédiaire d'un coefficient δ qui dépend principalement de la taille des particules : plus la taille des particules est importante, plus les transferts de matière sont limitants et plus les matières volatiles se recondensent. Ces matières redéposées réagissent alors par crackage (pour former de nouvelles matières volatiles légères) et par re-polymérisation (pour former un char secondaire). Ce modèle prend donc en compte d'autres phénomènes comme la recondensation et les transferts de masse, ce qui n'est pas le cas dans les modèles précédents qui sont des modèles de cinétique intrinsèque.

II.4. Les chaleurs de réaction

Lors de l'étude d'un procédé de torréfaction, la réalisation du bilan énergétique nécessite de s'intéresser aux chaleurs de réaction. L'évaluation de ces chaleurs est indispensable afin de maîtriser la consommation énergétique du procédé, mais également, dans le cas de réactions exothermiques, afin de limiter le dégagement de chaleur pouvant mener à un emballement thermique [70]. Cependant, ces chaleurs sont extrêmement difficiles à quantifier. C'est pourquoi, là encore, de nombreux travaux sont basés sur les résultats obtenus dans le domaine de la pyrolyse.

II.4.1. Chaleurs de réaction en pyrolyse

Rath *et al.* [71] réalisent une étude de la pyrolyse de hêtre et d'épicéa en DSC (Differential Scanning Calorimetry). Des creusets sans couvercles et avec couvercles percés sont utilisés. La température est amenée à 500 °C avec une vitesse de chauffe de 10 °C/min. Sans couvercle, la dégradation est endothermique pour les températures inférieures à 400 °C. Les réactions secondaires (entre 400 et 500 °C) sont ensuite exothermiques. Avec couvercle, des réactions exothermiques sont observées entre 250 et 330 °C : la présence du couvercle limitant l'évacuation des matières volatiles, le contact de celles-ci avec le char primaire mènerait à la formation de char secondaire à basse température. C'est cette formation qui serait exothermique.

Cette hypothèse est également confirmée par un rendement en solide plus important en présence d'un couvercle (formation du char secondaire). Une relation linéaire est ainsi

observée entre la chaleur de réaction et le rendement massique de la pyrolyse : plus le rendement est élevé, plus la réaction est exothermique.

Enfin, en l'absence de couvercle, une augmentation du débit de balayage mène à un rendement plus faible. Ceci s'explique par l'évacuation des matières volatiles qui auraient pu réagir avec le char primaire.

En conclusion de cette étude, une estimation des chaleurs de réaction lors de la pyrolyse primaire est proposée. Cette étape serait en fait le résultat de deux réactions compétitives :

- Une **exothermique** menant à la formation de char. La chaleur de réaction correspondante est évaluée à $-3525 \text{ kJ/kg}_{\text{char}}$ pour le hêtre et à $-3827 \text{ kJ/kg}_{\text{char}}$ pour l'épicéa.
- Une **endothermique** menant à la formation de matières volatiles (MV). La chaleur de réaction correspondante est évaluée à $936 \text{ kJ/kg}_{\text{MV}}$ pour le hêtre et à $1277 \text{ kJ/kg}_{\text{MV}}$ pour l'épicéa.

Une étude similaire a été menée par Gomez *et al.* [72] et les mêmes tendances sont observées (avec du hêtre et des chardons d'Espagne). Les chaleurs de réaction lors de la pyrolyse ont également été mesurées pour les biomasses après des prétraitements (élimination des extractibles et/ou lavage pour évacuer les matières minérales). Il a alors été montré que ces traitements diminuent le caractère exothermique des réactions de pyrolyse. Les composés extractibles et minéraux auraient donc un effet catalytique sur les réactions secondaires de pyrolyse.

Si ces études apportent des informations quant à l'origine des réactions exothermiques, elles restent cependant difficiles à extrapoler au cas de la torréfaction qui est généralement réalisée lors d'un palier à une température inférieure ou égale à 300 °C .

II.4.2. Chaleurs de réaction en torréfaction

Dans le domaine de la torréfaction, les exothermicités ont principalement été observées lors du traitement de bois massifs [73,74]. Ces phénomènes apparaissent au cœur des planches de bois, ce qui semble en accord avec les mécanismes identifiés dans le domaine de la pyrolyse. En effet, plus la torréfaction a lieu proche du cœur de la pièce de bois, plus les transferts de matière sont limités. Ceci favorise donc le contact entre les matières volatiles

et le char ce qui mène à l'apparition de réactions secondaires exothermiques. Ces réactions seraient également favorisées par une température et/ou un temps de traitement élevés.

Ainsi, l'existence de ces réactions exothermiques aux températures de torréfaction ne fait plus de doute. La difficulté réside donc désormais dans la quantification des chaleurs dégagées et dans l'identification des facteurs influençant l'apparition des exothermicités.

Les méthodes utilisées pour déterminer ces chaleurs de réactions ΔH_r peuvent être classées en trois catégories :

- Le **bilan masse et énergie** : cette méthode est basée sur un bilan massique expérimental. Le principe est présenté **Figure 10** :

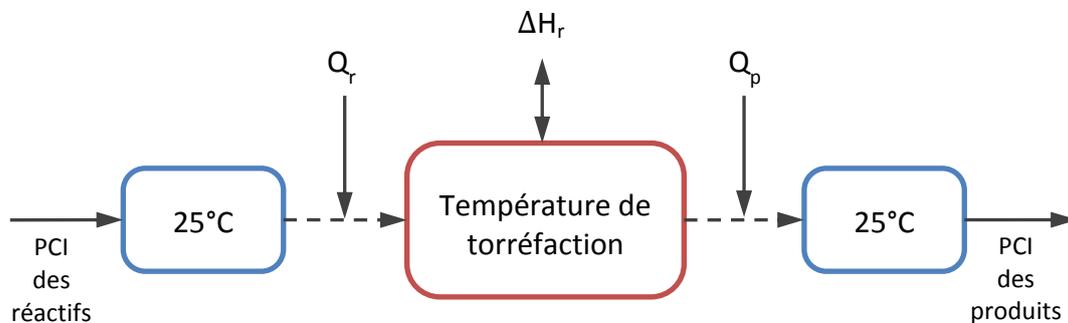


Figure 10 : Principe de la détermination de H_r par bilan masse-énergie (d'après [75]).

De la connaissance des réactifs et des produits peuvent être déduits les pouvoirs calorifiques des espèces entrant et sortant du procédé. Les principales difficultés de cette méthode sont de quantifier précisément les matière volatiles produites [75] et d'estimer les chaleurs sensibles des réactifs et des produits (Q_r et Q_p).

- La **confrontation modèle / expériences** : l'ensemble des phénomènes intervenant lors de la torréfaction d'une particule sont modélisés. La chaleur de réaction est alors déterminée par méthode inverse pour représenter au mieux l'évolution de la température pendant l'expérience. L'inconvénient de cette méthode est la multiplication des erreurs induites par les nombreuses hypothèses nécessaires à l'établissement d'un modèle.
- Le **bilan énergétique expérimental** : la torréfaction est réalisée dans un réacteur dont la consommation énergétique est mesurée. Les principales sources d'erreurs proviennent de l'estimation des pertes thermiques du réacteur et du calcul des

chaleurs sensibles des réactifs et des produits. Dans le cas de l'utilisation de biomasse humide, la prise en compte de l'énergie de séchage peut être une cause supplémentaire d'incertitude.

Les principales valeurs de chaleurs de réaction disponibles dans la littérature sont présentées dans le **Tableau 3**.

Tableau 3 : Synthèse des chaleurs de torréfaction disponibles dans la littérature.

Source	Méthode	Biomasse	Température (°C)	Chaleur de réaction (kJ/kg _{biomasse})
Prins [76]	Bilan masse et énergie	Saule	250	87 ± 449
			300	124 ± 400
Van der Stelt [75]	Bilan masse et énergie	Hêtre	230 à 280	1500 à -1200
	Confrontation modèle/ expériences	Hêtre - Saule	200 à 300	De 0 à -250
Ohliger <i>et al.</i> [77]	Bilan énergétique expérimental	Hêtre	270 à 300	De -199 à 148
Bates <i>et al.</i> [78]	Bilan masse et énergie	Saule	200 à 300	-280 à -40 ⁽¹⁾
Granados <i>et al.</i> [79]	Bilan masse et énergie	Balle de riz	250	-2043 ± 3321
		Sciure		-392 ± 1260
	Bilan masse et exergie	Balle de riz		-1387 ± 2250
		Sciure		-165 ± 531
Chen <i>et al.</i> [80]	Bilan énergétique expérimental	Palmier	200 à 300	-3500 à 700
		Eucalyptus		2300 à 400

⁽¹⁾ Enthalpie de réaction calculée pour la première étape du modèle de Di Blasi et Lanzetta

Les valeurs présentent une forte disparité et couvrent les domaines endothermique et exothermique. Cependant, la majorité des études concluent à des réactions plus exothermiques (ou moins endothermiques) lorsque la température de traitement augmente. De plus, pour un même protocole de mesure, les résultats obtenus avec diverses biomasses sont très différents ce qui prouve la forte influence de la composition [79,80].

Parmi les facteurs ayant une influence sur la chaleur dégagée lors de la torréfaction figure la vitesse du gaz de balayage. C'est notamment ce qu'ont montré Perré *et al.* [70]. En effet, après étude du comportement d'un rack de planches soumis à un flux d'air chaud, il a été observé que l'apparition des réactions exothermiques peut être limitée en améliorant les

échanges convectifs entre le matériau et le flux d'air (en augmentant le débit d'air ou en augmentant l'espace entre les planches).

L'influence de la taille des plaquettes de bois a été analysée par Saleh *et al.* [47]. L'étude a été menée sur un réacteur de torréfaction et de broyage simultanés. Pour la température de traitement la plus élevée (320 °C), lorsque la taille des particules brutes augmente, la taille des particules qui composent le broyat torréfié diminue. Ceci traduirait une torréfaction plus intense due à l'apparition de réactions exothermiques.

Enfin, d'après Ohliger *et al.* [77] qui réalisent une étude en réacteur continu, un temps de séjour important des particules dans le réacteur augmente leur durée de contact avec les matières volatiles ce qui favorise les réactions exothermiques. De plus, les chaleurs de réaction mesurées pour des biomasses sèches sont plus exothermiques que celles obtenues avec des biomasses humides. Deux raisons sont avancées pour expliquer ce phénomène :

- A temps de séjour égal, les particules sèches restent plus longtemps à la température de torréfaction,
- Lorsque la biomasse est humide, l'eau évaporée augmente le débit de balayage ce qui accélère l'évacuation des matières volatiles.

II.5. Les paramètres influençant la torréfaction

La majorité des paramètres opératoires ayant une influence sur le rendement de la torréfaction ont déjà été évoqués. Les principaux sont :

- La température : son influence sur les constituants de la biomasse et sur les matières volatiles produites a été traitée §II.2.1 et §II.2.2.
- La durée de traitement : l'influence de ce paramètre est mise en évidence par l'évolution des rendements massiques présentés **Figure 8**.
- La taille des particules qui peut favoriser l'apparition de nouvelles réactions gaz-solide.

Le dernier paramètre dont l'influence n'a pas été discutée est l'atmosphère de traitement. En effet, si la torréfaction est généralement menée sous un flux d'azote à pression atmosphérique, d'autres conditions ont été testées.

L'effet de la présence d'O₂ a notamment été étudié par Rousset *et al.* [81] lors de la torréfaction d'eucalyptus à 240 et 280 °C pendant 60 min. Les teneurs du gaz en O₂ testées étaient 2, 6, 10 et 21 %. A 240 °C, aucune influence significative de la teneur en O₂ n'est détectée sur la perte de masse. A 280 °C, le rendement massique du procédé diminue légèrement lorsque la teneur en O₂ augmente. Ces résultats montrent donc qu'aux températures de la torréfaction, la teneur en oxygène n'a que peu d'effet sur le rendement du procédé. Cependant, les auteurs suggèrent de travailler sous atmosphère inerte afin d'éviter la combustion des matières volatiles produites. Ces résultats ont été confirmés par Wang *et al.* [82]. Par contre, une étude de Chen *et al.* [83] menée sous N₂ et sous air montre que l'utilisation d'air diminue significativement le rendement en solide quelle que soit la température testée (250, 300 et 350 °C). Ceci est expliqué par une oxydation en surface des particules qui est notamment gouvernée par la vitesse du flux d'air. Enfin, il a récemment été montré [84] que sous balayage de CO₂ la perte de masse lors de la torréfaction est plus importante que sous N₂. L'écart de perte de masse est d'autant plus important que la température de traitement est élevée.

Les effets de la présence d'O₂ ou de CO₂ dans le gaz de balayage ont donc été étudiés séparément mais aucun consensus ne semble se dégager quant à l'influence de ces gaz sur le rendement massique de la torréfaction. Leur effet conjugué reste également à étudier afin d'évaluer l'efficacité d'une torréfaction dont le chauffage serait assuré par la mise en contact avec des gaz de combustion.

L'impact de la pression dans la gamme 0,1 à 4 MPa a été étudié par Wannapeera et Worasuwanarak [41]. A une température donnée, une augmentation de la pression mène à une légère hausse du rendement en solide et augmente fortement la teneur en carbone de ce solide. La biomasse torréfiée sous pression a donc un pouvoir calorifique supérieur à celui de la biomasse torréfiée à pression atmosphérique.

II.6. Les propriétés du bois torréfié

Les mécanismes de torréfaction ayant été décrits, leur impact sur les propriétés de la biomasse va être évalué.

II.6.1. Affinité avec l'eau et résistance à la biodégradation

L'effet du traitement thermique sur l'affinité de la biomasse avec l'eau a été discuté précédemment. Cependant, dans une optique de recherche de conditions optimales de torréfaction, il est nécessaire de quantifier cet effet. Dans la littérature, deux méthodes ont été utilisées :

- **L'immersion** : l'humidité des biomasses est mesurée après 2 heures d'immersion dans l'eau [85,86]. Les résultats obtenus montrent que la reprise d'humidité diminue lorsque la perte de masse lors de la torréfaction augmente. Cette méthode est cependant assez peu représentative d'une utilisation réelle de la biomasse, qui est généralement stockée à l'abri de l'eau liquide.
- La **méthode par adsorption de vapeur d'eau**, connue également sous le nom de « méthode des solutions salines »: la biomasse est placée dans des bocaux étanches ; l'humidité relative de l'air contenu dans ces bocaux est contrôlée à l'aide d'une solution saline saturée en sel. L'humidité d'équilibre des échantillons est déterminée lorsque leur masse est stabilisée. Comme l'humidité d'équilibre est fortement dépendante de la température ambiante [87], il est nécessaire de contrôler la température durant la stabilisation. L'évolution de l'humidité d'équilibre de la biomasse en fonction de l'humidité relative de l'air est alors appelée isotherme de sorption. L'influence de la torréfaction a été étudiée par plusieurs auteurs [88–91]. Les résultats obtenus pour du pin sylvestre brut et traité à 200 °C sont présentés **Figure 11**. Le phénomène d'hystérésis est visible sur l'ensemble des courbes : les humidités d'équilibre lors de la désorption sont plus élevées que celles lors de l'adsorption. Il est également possible de constater que pour une humidité relative donnée, l'humidité d'équilibre du bois torréfié est plus faible que celle du bois brut. Cependant, il faut noter que d'après certains auteurs [88,91], les courbes de sorption de biomasses torréfiées à des températures supérieures à 200 °C sont confondues. Ceci traduirait donc qu'un minimum d'hygroscopicité serait atteint dès les basses températures de torréfaction.

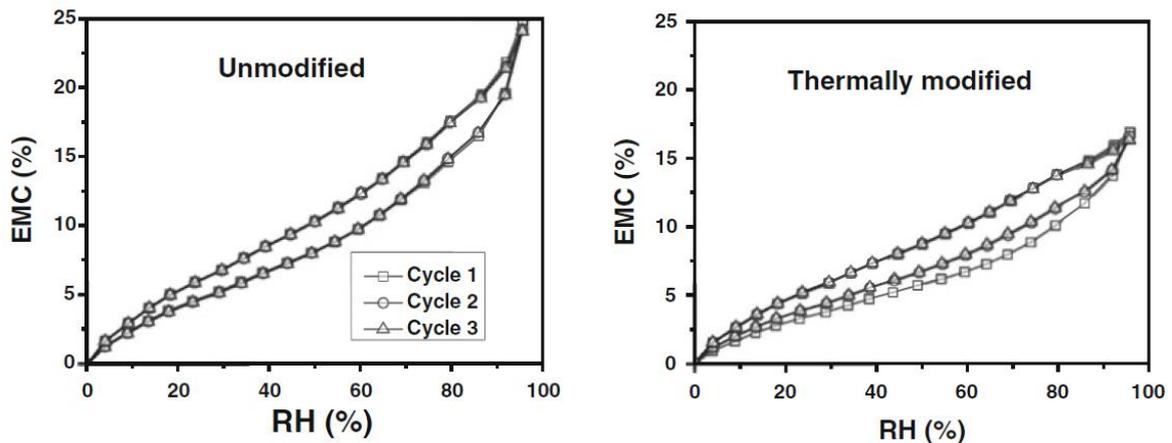


Figure 11 : Isothermes de sorption de pin sylvestre brut (à gauche) et de pin sylvestre traité à 200 °C (à droite) (d'après [92]).

La reprise d'humidité limitée après traitement thermique serait une des raisons de la résistance des bois torréfiés aux attaques fongiques [91]. En effet, une certaine teneur en eau est nécessaire au développement des moisissures. Les autres causes de la résistance aux dégradations fongiques seraient :

- Les modifications chimiques de l'hémicellulose et de la lignine qui les rendraient non dégradables par les champignons [93],
- L'action fongicide d'une partie des extractibles produits [32,94].

II.6.2. Broyabilité

Comme mentionné précédemment, les hémicelluloses permettent de relier les fibres de cellulose aux lignines. Elles sont donc un composé essentiel à la cohésion de la biomasse. C'est pourquoi leur destruction fragilise le matériau. Ceci présente un intérêt particulier lorsque la biomasse doit être broyée. Un nombre important d'études se sont donc attachées à quantifier le gain sur la broyabilité du matériau. Ces études, présentées dans le **Tableau 4**, peuvent être classées dans trois catégories, suivant le protocole utilisé :

- Protocole **adapté du domaine du charbon** : pour estimer la broyabilité du charbon, le Hardgrove Grindability Index (HGI) a été développé. Le charbon subit une phase de pré-broyage puis la fraction la plus grossière (> 600 μm) est broyée dans un broyeur à boulets (pendant 60 tours). La valeur de l'index est ensuite calculée à partir de la fraction massique passant à travers un tamis de 75 μm d'ouverture. Le HGI évalue donc la broyabilité de la partie la moins fragile du charbon. Bergman *et al.* [22]

rapportent que, dans le cas de la biomasse torréfiée, une grande partie est broyée finement dès la phase de pré-broyage. Utiliser le HGI dans le cas de la biomasse mènerait ainsi à des résultats défavorables et non représentatifs du matériau dans son ensemble. Le principal avantage de cette méthode est donc qu'elle permet une comparaison rapide avec le charbon. Le HWI (Hybrid Work Index) est une version dérivée du HGI.

- Protocole **basé sur une mesure de l'énergie nécessaire au broyage** : la puissance consommée par un broyeur est mesurée en continu. Par intégration de cette puissance au cours du temps, il est possible de calculer l'énergie nécessaire au broyage d'une quantité de biomasse donnée. L'utilisation de cette méthode nécessite de soustraire la consommation du broyeur à vide. Le principal inconvénient de cette méthode est que les valeurs obtenues sont fortement dépendantes du type de broyeur utilisé [95]. Les résultats ne peuvent donc être utilisés qu'à titre comparatif. Enfin, il faut noter que les résultats d'énergie de broyage ne prennent pas en compte la granulométrie du broyat. C'est pourquoi la répartition granulométrique est souvent présentée à part. Repellin *et al.* [96] proposent donc de diviser l'énergie de broyage par la fraction volumique de broyat ayant une taille de particules inférieure à 200 μm . Cependant, l'étendue de la dispersion granulométrique n'est pas prise en compte par cette méthode.
- Protocole par **comparaison de la répartition granulométrique** : les biomasses sont broyées dans des conditions fixées (durée du broyage, vitesse de rotation) et les répartitions granulométriques des broyats sont comparées. C'est la méthode la plus utilisée car la plus facile à mettre en œuvre mais les résultats restent qualitatifs.

Ces méthodes présentent chacune leurs avantages et leurs inconvénients. Elles ont tout de même permis de montrer que la torréfaction diminue fortement l'énergie de broyage, et ce pour de nombreuses biomasses.

Tableau 4 : Synthèse des études sur la broyabilité du bois torréfié.

	Biomasse	Type de broyeur	Mesure de la granulométrie	Type de résultat	Référence
Protocole adapté du domaine du charbon	Saule, miscanthus	Broyeur à boulets	Tamisage	HGI modifié	[97]
	Paille de blé, pin, épicéa	Broyeur à boulets avec torréfaction simultanée	Tamisage	HGI	[47]
	Pin	Broyeur planétaire	Tamisage	HWI	[98]
	Hêtre	Broyeur à rouleaux	Tamisage	HGI modifié	[77]
	Saule, eucalyptus, feuillus, résineux	Broyeur à boulets	Tamisage	HGI modifié	[85]
Protocole avec mesure de l'énergie nécessaire au broyage	Hêtre, épicéa	Broyeur ultra-centrifuge	Granulométrie laser	Critère original	[96]
	Pin sylvestre	Broyeur ultra-centrifuge	-	Energie de broyage	[99]
	Résidus de taille, saule, bois de démolition	Broyeur à couteaux	-	Energie de broyage	[13]
	Pin	Broyeur à couteaux	Analyse d'images	Energie de broyage	[100]
	Coquilles de noix de palme	Broyeur à couteaux	-	Energie de broyage	[101]
	Paille de coton, paille de maïs	Broyeur à couteaux	Granulométrie laser	Energie de broyage	[102]
Protocole avec comparaison de la répartition granulométrique	Peuplier	Mixeur de laboratoire	Tamisage	Répartition granulométrique	[103]
	Lauan	Mixeur de laboratoire	Tamisage	Répartition granulométrique	[44]
	Eucalyptus	Broyeur à couteaux	Tamisage	Répartition granulométrique	[104]
	Paille de riz, paille de colza	Broyeur à boulets	Tamisage	Répartition granulométrique	[45]
	Bouleau	Broyeur à boulets	Tamisage	Répartition granulométrique	[88]
	Chêne, écorce de pin, noyaux d'olive, paille	Mixeur de laboratoire	Tamisage	Répartition granulométrique	[105]
	Paille de blé, paille d'orge	Broyeur à couteaux	Tamisage	Répartition granulométrique	[106]
	Genévrier, acacia	Broyeur à boulets	Tamisage	Répartition granulométrique	[84]

II.6.3. Densification énergétique

La dégradation des composés de la biomasse a également des conséquences sur ses compositions immédiate et élémentaire. Par définition, les matières dégagées à basse température sont des matières volatiles. Ceci explique la diminution de la teneur en matières volatiles couramment observée lorsque la sévérité du traitement augmente [86,107]. Il y a alors concentration du carbone fixe et des cendres.

La composition élémentaire de la biomasse évolue également lors de la torréfaction. Un exemple de l'évolution des ratios molaires H/C et O/C est proposé sur le diagramme de Van Krevelen **Figure 12**.

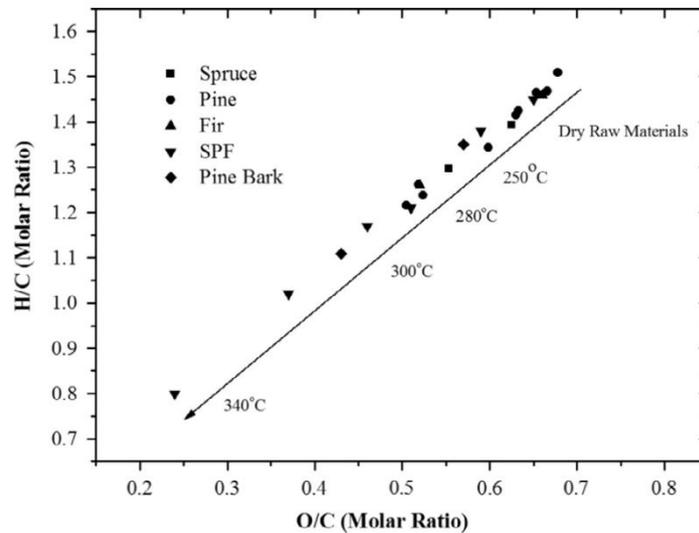


Figure 12 : Diagramme de Van Krevelen de différentes espèces de résineux bruts et torréfiés [108].

Pour les différentes biomasses considérées, les ratios H/C et O/C diminuent lorsque la température augmente. Ceci est dû au départ des groupements hydroxyles –OH, ce qui appauvrit la biomasse en oxygène et hydrogène. Il y a donc concentration du carbone.

Cette augmentation de la teneur en carbone permet d'augmenter le pouvoir calorifique de la biomasse. La torréfaction est donc un procédé de densification énergétique. Cependant, certaines études proposent de pelletiser le bois torréfié afin d'obtenir une densité énergétique apparente encore plus élevée. Cette étape supplémentaire a tout d'abord été proposée par Bergman *et al.* [17] qui n'explicitent pas les conditions de production des pellets torréfiés. Les pellets obtenus sont plus denses énergétiquement ($18,4 \text{ GJ/m}^3$ contre $10,5 \text{ GJ/m}^3$ pour les pellets de bois brut) et 1,5 à 2,5 fois plus résistants à l'écrasement. La reprise d'humidité des pellets torréfiés est également plus faible que celle des pellets de bois brut.

Cependant, une étude plus récente proposée par Stelte *et al.* [109] présente des résultats contradictoires. Tout d'abord, la pression nécessaire pour pelletiser la biomasse torréfiée est bien plus élevée que pour la biomasse brute (**Figure 13a**), ce qui engendre une augmentation de la consommation énergétique du procédé.

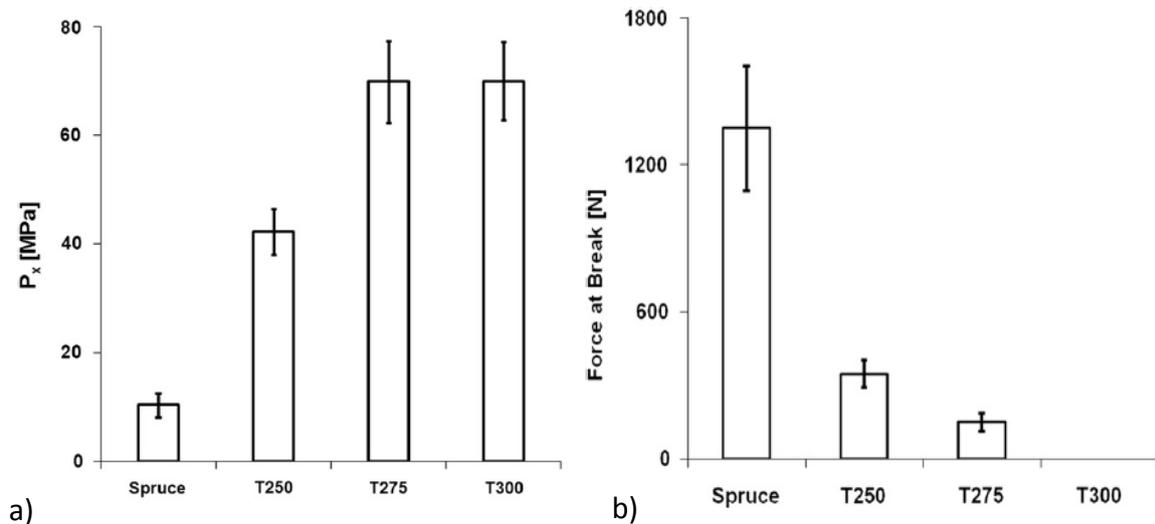


Figure 13 : a) Pression nécessaire à la pelletisation (P_x) et b) Force de compression à la rupture de pellets d'épicéa brut et torréfiés à 250, 275 et 300 °C (d'après [109]).

Ensuite, le comportement de ces pellets a été testé en compression (**Figure 13b**) et il apparaît clairement que leur résistance diminue lorsque la sévérité du traitement augmente. Une des causes de ces problèmes serait le manque d'humidité car l'eau agit normalement comme agent plastifiant. Elle abaisse la température de transition vitreuse des polymères du bois (principalement hémicellulose et lignine) ce qui leur permet de se réarranger et de former des liaisons entre les différentes particules. D'autre part, la déshydroxylation des hémicelluloses lors de la torréfaction limite la possibilité de liaisons hydrogènes lors de la pelletisation. Une solution serait donc d'ajouter un agent liant à la biomasse torréfiée. Järvinen *et al.* [90] ont exploré cette voie sans succès en ajoutant de la farine de blé à des plaquettes de bois, cependant, Reza *et al.* [110] ont réussi à améliorer la qualité de pellets torréfiés en ajoutant de la biomasse traitée par voie hydrothermale.

Une autre solution pour pallier ces problèmes de résistance serait d'ajouter de l'eau à la biomasse torréfiée et/ou d'augmenter la température de la presse [82,108,111].

II.6.4. Utilisation du bois torréfié

Utilisation en cocombustion

Le principe de la cocombustion est de remplacer une partie du charbon par de la biomasse dans les centrales thermiques existantes pour réduire les émissions de CO₂ d'origine fossile. Cependant, les propriétés de la biomasse ne sont pas toujours compatibles avec les réacteurs de combustion conçus pour le charbon. C'est pourquoi le taux de substitution du charbon par la biomasse est classiquement inférieur à 10 % [5]. Le **Tableau 5** présente les

principales propriétés de la biomasse, leur effet sur la cocombustion et leur évolution lorsque la biomasse est torréfiée.

Tableau 5 : Propriétés de la biomasse brute et leurs effets sur le procédé de cocombustion. Mise en parallèle avec les propriétés de la biomasse torréfiée.

Propriété	Biomasse brute [5]	Effet sur la cocombustion	Biomasse torréfiée	Réf.
Humidité	Élevée	Problèmes de stockage, de transport, PCI faible, volume de fumées élevé, température de combustion réduite	Réduite	[88–91]
Broyabilité	Faible	Difficulté à broyer sous forme pulvérulente	Élevée	[13]
Teneur en matières volatiles	Élevée	Dévolatilisation à basse température, réaction de combustion rapide, raccourcissement de la flamme pouvant détériorer le brûleur	Réduite	[5,112–114]
Teneur en cendres	Faible	Phénomènes d'abrasion réduits	Faible	[112–114]
Teneur en soufre	Faible	Emissions de SO ₂ réduites	Faible	[115]
Teneur en azote	Faible	Emissions de NO et NO ₂ réduites	Faible	[115]
Teneur en métaux alcalins (Na et K)	Élevée	Diminution température de fusibilité des cendres, risques d'encrassement, corrosion	Plus élevée	[116,117]
Teneur en chlore	Variable	Emission de HCl, problèmes de corrosion	Réduite	[118,119]
Teneur en métaux lourds	Faible	Problématique pour la valorisation des cendres	Faible	[119]

L'humidité, au-delà de l'effet direct sur le contenu énergétique de la biomasse, représente un réel désavantage. En effet, une forte humidité initiale mène à la production d'un important volume de fumées. Ceci favorise le ré-envol des cendres abrasives et donc la dégradation des conduites. Le teneur en cendres est également un critère important lors de la sélection de la biomasse : il faut noter que si les taux de cendres sont classiquement faibles pour le bois (< 2 %), ils peuvent être élevés pour certaines biomasse, notamment les résidus agricoles (> 10 %) [114].

La teneur en matières volatiles élevée de la biomasse brute est problématique car elle est à l'origine de la dégradation rapide de la biomasse à basse température. Sa diminution lors de la torréfaction limite la réactivité de la biomasse lors de la combustion [112–114]. Ceci permet de réduire l'écart de comportement avec le charbon et donc de faciliter la maîtrise du procédé de combustion.

Certains éléments contenus dans la biomasse voient leur concentration évoluer lors de la torréfaction. C'est le cas pour le chlore qui est majoritairement évacué lors du prétraitement ce qui limite les dégagements de chlorure d'hydrogène corrosif lors de la combustion. Par contre, les éléments alcalins (principalement K et Na) sont plus concentrés dans la biomasse torréfiée que dans la biomasse brute. Ceci engendre notamment une diminution de la température de fusibilité des cendres et peut induire un plus fort encrassement.

La torréfaction permet donc de faciliter l'utilisation de la biomasse dans les unités de cocombustion et limite les émissions de gaz polluants. Les principales incertitudes concernent désormais les phénomènes d'encrassement et la recherche d'un optimum de torréfaction permettant d'augmenter le rendement de toute la chaîne de valorisation de la biomasse.

Utilisation en gazéification

Les études sur la gazéification de biomasse torréfiée sont peu nombreuses. Prins *et al.* [120] ont montré que l'efficacité de la gazéification augmente lorsque la teneur en oxygène de la biomasse diminue. Ceci pourrait donc faire de la torréfaction un prétraitement adapté pour l'injection en gazéifieur. Cependant, l'efficacité globale de la chaîne de production ne pourrait être améliorée que si la chaleur produite lors de la gazéification sert à alimenter le réacteur de torréfaction et si les matières volatiles de la torréfaction sont réutilisées dans le gazéifieur.

Couhert *et al.* [121] ont démontré expérimentalement que, lors de la gazéification sous vapeur d'eau en lit à flux entraîné à 1400 °C, la biomasse torréfiée permet l'obtention de meilleurs rendements en CO et H₂ que la biomasse brute. A 1200 °C, la réactivité des chars produits à partir de biomasse torréfiée est cependant plus faible que celle des chars de la biomasse brute. Ceci a été confirmé par Fisher *et al.* [112] et implique que le dimensionnement des unités de gazéification nécessitera la prise en compte d'un éventuel prétraitement.

Enfin, plusieurs études [117,122] ont montré que les propriétés de la biomasse n'évoluent pas nécessairement de manière monotone lorsque la température de torréfaction augmente. La **Figure 14** illustre ce comportement.

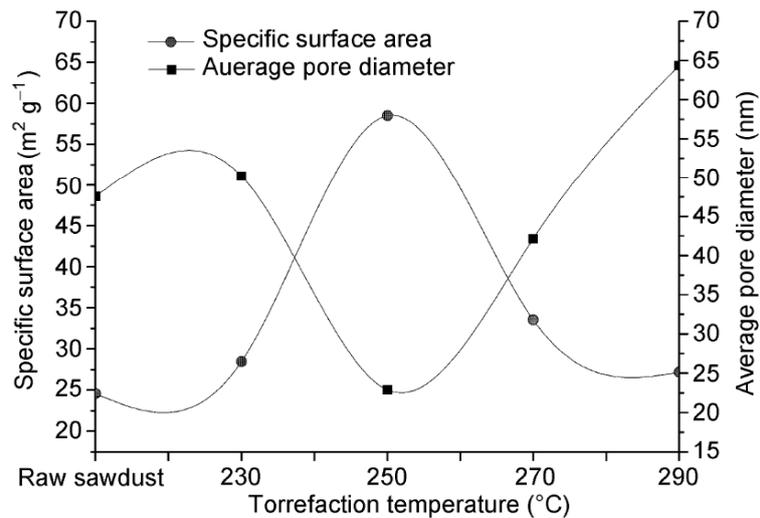


Figure 14 : Evolution de la surface spécifique et du diamètre moyen des pores avec l'augmentation de la température de torréfaction (d'après [122]).

Lorsque la température de torréfaction augmente jusqu'à 250 °C, la surface spécifique de la biomasse augmente également. Au-delà de cette température, la surface spécifique diminue. Ces phénomènes ne sont pas encore tout à fait maîtrisés mais leur prise en compte est indispensable lors du choix d'un pré-traitement. En effet, ces études concluent à un optimum de torréfaction à 250 °C pendant 30 min, notamment afin de maximiser la surface spécifique.

II.7. Les différentes technologies de torréfaction

Ces dernières années, de nombreuses compagnies ont investi dans le développement de procédés de torréfaction [123]. Les principales technologies connues à ce jour sont présentées dans le **Tableau 6**. Les avantages et inconvénients de chacune de ces technologies sont également évoqués. Il faut noter que, du point de vue du produit, les paramètres les plus importants sont l'efficacité des transferts thermiques et la qualité du mélange car ils sont indispensables à l'obtention d'un produit torréfié homogène. La source d'énergie (électrique ou thermique) et la capacité à passer à l'échelle industrielle sont également des critères indispensables pour la sélection d'une technologie.

Tableau 6 : Présentation des principales technologies de torréfaction et leurs propriétés (d'après [9,124,125]).

Technologie	Compagnies	Avantages	Limitations
Four tournant	Torr-coal	<ul style="list-style-type: none"> • Technologie éprouvée • Contrôle du temps de séjour • Mélange efficace • Large gamme granulométrique 	<ul style="list-style-type: none"> • Transferts thermiques • Contrôle de la température • Production de particules fines • Nombreuses parties mobiles • Changement d'échelle
	Andritz		
	Atmosclear		
	ETPC-Umea University		
	BIO3D		
	Stramproy		
	Torkapparater		
Earth Care Products			
Lit fluidisé	River Basin Energy	<ul style="list-style-type: none"> • Technologie éprouvée • Transferts thermiques • Changement d'échelle • Chauffage uniforme • Mélange efficace 	<ul style="list-style-type: none"> • Contrôle de la température • Contrôle du temps de séjour
Lit mobile	Buhler	<ul style="list-style-type: none"> • Transferts thermiques • Contrôle du temps de séjour 	<ul style="list-style-type: none"> • Contrôle de la température • Peu de mélange • Passage préférentiel des gaz
	ECN		
	Thermiya		
Réacteur à vis	BioLake BV	<ul style="list-style-type: none"> • Technologie éprouvée • Transferts thermiques • Contrôle du temps de séjour • Mélange efficace • Large gamme granulométrique 	<ul style="list-style-type: none"> • Contrôle de la température • Nombreuses parties mobiles • Changement d'échelle
	BTG		
	Foxcoal		
Micro-ondes	CanBiocoal	<ul style="list-style-type: none"> • Transferts thermiques • Contrôle de la température 	<ul style="list-style-type: none"> • En cours de développement • Energie électrique
	Rotawave		
Four à soles multiples	CMI-NESA	<ul style="list-style-type: none"> • Technologie éprouvée • Transferts thermiques • Contrôle du temps de séjour • Mélange efficace • Large gamme granulométrique • Changement d'échelle 	<ul style="list-style-type: none"> • En cours de développement • Nombreuses parties mobiles
	Integro Earth Fuels		
Réacteur à bande	Agri-Tech producers	<ul style="list-style-type: none"> • Technologie éprouvée • Contrôle du temps de séjour 	<ul style="list-style-type: none"> • Contrôle de la température • Changement d'échelle
	4EnergyInvest		
	New Earth		
	Stramproy Green Investment		
REVE [105] (lit vibrant)	REVTECH Process Systems	<ul style="list-style-type: none"> • Flexibilité • Transferts thermiques 	<ul style="list-style-type: none"> • En cours de développement • Energie électrique
TORBED [124] (cyclone)	Topell Energy	<ul style="list-style-type: none"> • Temps de séjour court • Réacteurs compacts • Transferts thermiques élevés 	<ul style="list-style-type: none"> • Particules de petite taille

Parmi ces technologies, les plus représentées sont les lits mobiles, les fours à soles multiples et les fours tournants. Les réacteurs à soles multiples présentent en effet de nombreux avantages dont une bonne maîtrise de la température et du temps de séjour ainsi qu'un mélange efficace alors que les lits mobiles et les fours tournants sont des technologies déjà utilisées à l'échelle industrielle.

Cependant, malgré le nombre croissant de projets d'unités à l'échelle de démonstrateur ou à l'échelle industrielle [124], peu de données sont disponibles sur la conduite de procédés de torréfaction en continu. Le **Tableau 7** recense les études de pilotes continus parues à ce jour.

Tableau 7 : Études à l'échelle pilote continu publiées.

Technologie	Débit d'étude	Type d'étude	Référence
Réacteur à vis (chauffage indirect)	3-8 kg/h	<ul style="list-style-type: none"> • Etude expérimentale (influence de la température, du temps de séjour, du débit d'alimentation et de l'humidité de la biomasse) • Bilan énergétique du procédé • Identification de chaleurs de réaction 	[77]
Lit mobile	3-8 kg/h	<ul style="list-style-type: none"> • Développement d'un modèle • Peu de résultats expérimentaux 	[60]
REVE	40-80 kg/h	<ul style="list-style-type: none"> • Etude expérimentale (influence de la température, du temps de séjour et du débit d'alimentation) 	[105]
Réacteur à vis (chauffage indirect)	6 kg/h	<ul style="list-style-type: none"> • Etude expérimentale (influence de la température) • Modèle cinétique déterminé en ATG • Application de ce modèle au profil de température mesuré expérimentalement 	[64]
Four tournant (chauffage indirect)	6 kg/h	<ul style="list-style-type: none"> • Uniquement composition de la biomasse torréfiée en fonction de la température 	[126]
Lit mobile (chauffage direct ou indirect)	2 kg/h	<ul style="list-style-type: none"> • Dimensionnement du pilote • Pas d'étude expérimentale 	[127]

Il apparait que ces études mettent en avant soit l'aspect expérimental, soit l'aspect modélisation. Aucune étude ne propose de réelle confrontation entre un ensemble de données expérimentales et le modèle numérique d'un procédé.

Malgré la difficulté que représente la prise en compte de l'ensemble des phénomènes intervenant lors de la torréfaction, la modélisation d'un procédé continu permettrait d'identifier les facteurs ayant une influence sur la biomasse. Après validation, le modèle pourrait également servir de base à l'optimisation des conditions de torréfaction. De tels résultats seraient donc de première importance car la recherche de paramètres opératoires optimaux a récemment été identifiée comme l'un des défis majeurs dans le domaine de la torréfaction [9].

III. Les fours tournants

La technologie choisie pour cette étude est le four tournant. Le principal avantage de cette technologie est sa simplicité. D'après Boateng [128], le premier dépôt de brevet de four tournant remonte à 1885. Il aurait été déposé par un ingénieur anglais pour la production de ciment. Les fours tournants ont depuis été largement utilisés à l'échelle industrielle à diverses températures :

- Fabrication de clinker (1500 °C)
- Réduction des oxydes de fer (1400 °C)
- Calcination du coke de pétrole (1250 °C)
- Défluoration de l'hexafluorure d'uranium (700 - 900 °C)
- Production de charbons actifs (400 - 800 °C)
- Séchage (jusqu'à 550 °C)

C'est donc une technologie robuste qui permet de traiter une large gamme de produits. De plus, les fours tournants sont déjà utilisés pour traiter de la biomasse *via* les opérations de séchage ou de production de charbons actifs.

III.1. Principe

Un four tournant est constitué d'un cylindre dont le diamètre peut atteindre plusieurs mètres et la longueur plusieurs dizaines de mètres. La circulation de la matière d'une extrémité à l'autre du cylindre est permise par son inclinaison par rapport à l'horizontale qui peut varier entre 0 et 5 ° et par sa mise en rotation à des vitesses habituellement comprises entre 0,5 et 30 tr/min.

Les fours tournants peuvent être classés en deux principales catégories en fonction du mode d'apport de la chaleur à la charge :

- Four tournant à **chauffage indirect** : la chaleur est apportée à la charge à travers la paroi du cylindre. Pour ce faire, les flammes produites par une rampe de brûleurs peuvent être mises en contact avec la paroi externe du cylindre (**Figure 15a**) ce qui permet sa montée en température. Cependant, la plupart des fours tournants à chauffage indirect sont constitués d'une double paroi dans laquelle circulent des gaz de combustion (**Figure 15b**).

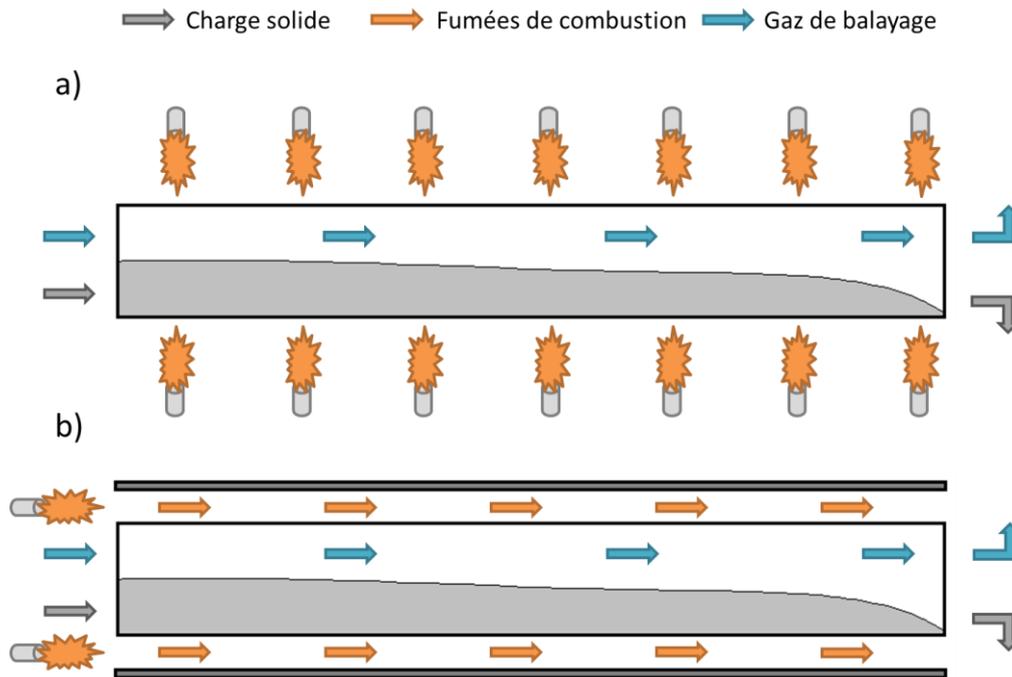


Figure 15 : Représentation schématique des principaux modes de chauffage indirect : a) chauffage par rampe de brûleurs externes et b) chauffage par circulation de fluide caloporteur en double paroi.

Lorsque le chauffage est indirect, les principaux modes de transferts thermiques mis en jeu sont la conduction et le rayonnement. De faibles débits de gaz de balayage sont alors utilisés à l'intérieur du cylindre afin d'évacuer les gaz produits. Dans le cas où ces gaz peuvent être valorisés, le chauffage indirect présente l'intérêt de ne pas les diluer ce qui facilite leur traitement ultérieur.

- Four tournant à **chauffage direct (Figure 16)**: la chaleur est apportée à la charge par l'intermédiaire d'un gaz chaud, classiquement composé de gaz de combustion. Le débit du gaz de balayage est donc important car il joue également le rôle de fluide caloporteur. Les principaux modes de transfert thermique sont alors la convection et le rayonnement.

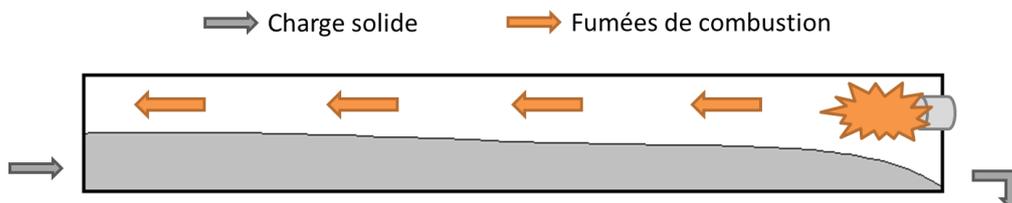


Figure 16 : Représentation schématique d'un four tournant à chauffage direct contre-courant.

La circulation du gaz chaud et de la charge peuvent être à co-courant ou à contre-courant (cas de la **Figure 16**). Dans le cas de la circulation à co-courant, la montée en

température de la charge est plus rapide car elle est mise en contact avec les gaz les plus chauds dès son entrée dans le cylindre.

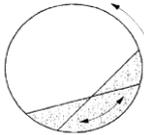
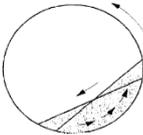
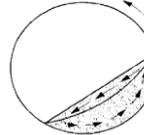
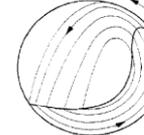
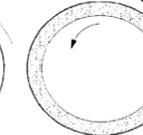
Quel que soit le mode d'apport de chaleur, la maîtrise du transport de la charge est indispensable à la conduite du procédé. En effet, la circulation de la charge à l'intérieur du cylindre conditionne le temps de passage du matériau et l'efficacité du brassage mais également les surfaces d'échange entre le lit de particules, la paroi du cylindre et la phase gaz.

III.2. L'écoulement de la charge

III.2.1. Le comportement transversal

L'écoulement de la charge le long du four dépend du mouvement des particules dans une section transversale du cylindre. Les différents types de mouvements décrits par Henein *et al.* [129,130] puis par Mellmann [131] sont présentés dans le **Tableau 8**.

Tableau 8 : Modes d'écoulement en four tournant (d'après [131]).

Glissement		Avalanche			Cataracte	
Sliding	Surging	Slumping	Rolling	Cascading	Catacracting	Centrifuging
						

Le **régime de glissement** est obtenu lorsque les frottements entre la paroi et la charge sont insuffisants. Deux cas existent :

- Le *sliding* : le lit n'est pas du tout entraîné par la rotation du cylindre. Ce mouvement est obtenu pour les coefficients de friction paroi-solide les plus faibles et ne permet aucun brassage de la charge.
- Le *surging* : la charge est entraînée de manière périodique jusqu'à un angle de déflexion à partir duquel elle glisse et revient à sa position initiale. Ce mouvement ne permet qu'un brassage limité de la charge.

Le **régime d'avalanche** est obtenu quand les forces de friction sont du même ordre de grandeur que les forces de gravité et permettent l'adhésion du lit à la paroi. Trois mouvements sont alors possibles :

- Le *slumping* : le lit est entraîné par la paroi jusqu'à ce que l'angle de repos dynamique soit atteint. Les particules en partie haute s'écoulent alors périodiquement en « avalanche » à la surface du lit. La couche composée de ces particules est appelée **couche active**. La couche inférieure, composée des particules suivant le mouvement de la paroi, est appelée **couche passive**.
- Le *rolling* : ce mouvement est observé lorsque la vitesse de rotation du cylindre est plus élevée. La couche active est alors alimentée en continu. C'est le mode d'écoulement le plus utilisé dans les fours tournants car il permet un bon mélange de la charge [132,133].
- Le *cascading* : pour les vitesses plus importantes, les particules sont éjectées de la couche passive et « cascaded » légèrement avant de réintégrer la couche active. Ceci mène à une déformation de la surface du lit.

Le **régime de cataracte** se met en place pour les vitesses les plus élevées (supérieures à 30 tr/min [134]) :

- Le *cataracting* : les particules sont éjectées du lit et traversent une partie de la phase gaz avant de le réintégrer. Le brassage est intense mais les vitesses à mettre en œuvre sont souvent trop importantes pour des installations industrielles.
- Le *centrifuging* : ce mode est obtenu pour les vitesses de rotation extrêmes. La charge est alors plaquée à la paroi et le mélange est très limité.

Comme précisé précédemment, la majorité des fours tournants fonctionnent en mode *rolling*. En conséquence, seul ce mode sera considéré dans la suite de cette étude.

III.2.2. Le comportement axial

La compréhension du comportement transversal d'un matériau granulaire dans un cylindre en rotation permet d'identifier les mécanismes de progression des particules dans la direction axiale.

Lors de leur passage dans la couche passive, les particules sont solidaires de la paroi (voir **Figure 17**). Elles ont toutes la même vitesse angulaire ce qui justifie le fait que cette couche soit qualifiée de région piston. La couche passive n'est donc pas le siège de phénomènes de mélange ni de transport axial.

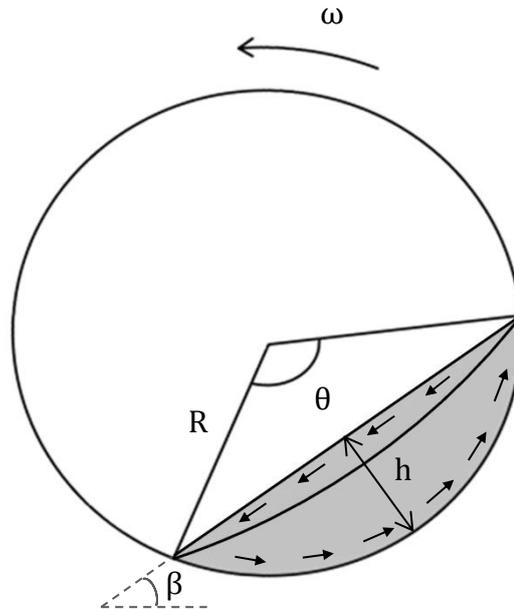


Figure 17 : Représentation schématique d'une section transversale de four tournant en mode rolling.

Où R est le rayon du cylindre (m), ω la vitesse de rotation (tr/s), θ l'angle de charge (rad), h la hauteur de lit (m) et β l'angle de repos dynamique (rad).

Lorsque les particules « roulent » dans la couche active, elles sont soumises à la gravité et progressent axialement. La distance axiale parcourue reste cependant faible en comparaison avec la distance parcourue dans le plan transversal (il y aurait un facteur 50 entre ces deux distances d'après Hanrot [135]). Il est dès lors possible d'identifier les principaux paramètres de fonctionnement qui influencent la vitesse axiale des particules et donc le temps de passage des particules dans le cylindre :

- La **vitesse de rotation** qui impose la fréquence de passage des particules dans la couche active,
- L'**inclinaison du cylindre** qui définit la distance parcourue à chaque passage dans la couche active,
- Le **débit d'alimentation** dont l'influence est discutée [136].

Afin de calculer les surfaces d'échange entre les différentes phases (gaz, solide et paroi du cylindre), il est nécessaire de déterminer le profil de chargement. Le profil de chargement est défini comme l'évolution de la hauteur de lit h (représentée **Figure 17**) ou du taux de remplissage local H_z le long du cylindre.

La hauteur de lit peut être calculée, à une position donnée z (m) de l'axe du four, à partir de l'angle de charge θ par la relation présentée **Équation 2**.

$$h(z) = R \left(1 - \cos \frac{\theta(z)}{2} \right) \quad \text{Équation 2}$$

Le taux de remplissage local H_z (%) est le rapport entre la section occupée par le solide et la section totale du cylindre. Il est calculé suivant l'**Équation 3**.

$$H_z(z) = \frac{\theta(z) - \sin \theta(z)}{2\pi} \times 100$$

$$= \frac{2 \cos^{-1} \left(1 - \frac{h(z)}{R} \right) - \sin \left(2 \cos^{-1} \left(1 - \frac{h(z)}{R} \right) \right)}{2\pi} \times 100 \quad \text{Équation 3}$$

La présence ou non de diaphragme (réduction locale du diamètre du cylindre) influe sur le profil de chargement comme présenté **Figure 18**.

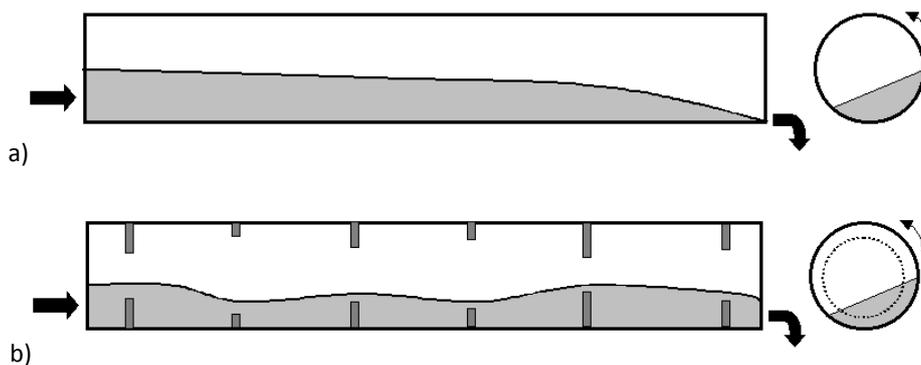


Figure 18 : Allure du profil de chargement a) sans diaphragme et b) avec diaphragmes (d'après [134]).

En modifiant le profil de chargement, ces diaphragmes ont également un impact sur le taux de remplissage moyen et sur le temps de passage. Ils sont généralement placés en entrée et/ou en sortie mais sont parfois utilisés à des positions intermédiaires afin de modifier l'écoulement des particules dans une zone particulière du four.

Connaissant l'angle de charge (ou la hauteur du lit) à une position axiale donnée, les surfaces d'échange suivantes peuvent être calculées :

- S_s : surface transversale de la phase solide
- S_g : surface transversale de la phase gaz
- S_l : surface libre du lit (surface de contact entre la phase gaz et la phase solide)
- S_{pc} : surface de paroi couverte par le lit
- S_{pd} : surface de paroi découverte (surface de contact entre la paroi et la phase gaz).

Pour un volume de contrôle de longueur Δz , ces surfaces sont calculées suivant l'Équation 4 :

$$S_s = \frac{R^2}{2} (\theta - \sin \theta)$$

$$S_g = R^2 \left(\pi - \frac{1}{2} (\theta - \sin \theta) \right)$$

$$S_l = 2(2Rh - h^2)^{1/2} \Delta z$$

$$S_{pc} = R\theta \Delta z$$

$$S_{pd} = R(2\pi - \theta) \Delta z$$

Équation 4

Il faut également noter que certains fours tournants sont équipés de releveurs comme présenté **Figure 19**.

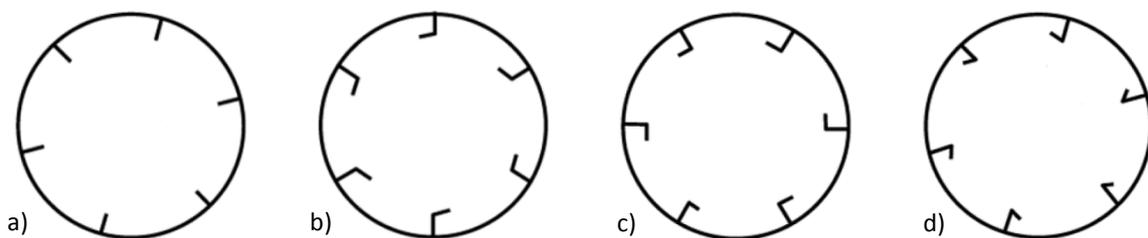


Figure 19 : Vues en coupe de cylindres équipés de releveurs a) droits et avec angles à b) 105 °; c) 90 ° et d) 75 ° (d'après [137]).

Les releveurs permettent d'augmenter l'adhésion de la charge à la paroi et le brassage mais également de favoriser le contact entre les particules et le gaz dans le cas des fours tournants avec chauffage direct. En effet, les particules sont soulevées et tombent ensuite en « pluie » dans la phase gaz. La forme et le nombre de releveurs influencent le transport de la charge [138] car cela conditionne la quantité de matière transportée à chaque rotation et l'angle à partir duquel les releveurs se vident [139].

III.2.3. Les modèles d'écoulement

L'écoulement d'un milieu granulaire le long d'un four tournant dépend donc des propriétés du solide, des caractéristiques du cylindre et des paramètres de fonctionnement. La nécessité de contrôler cet écoulement a ainsi mené au développement de modèles numériques de transport. Plusieurs méthodes ont été utilisées [140].

La **méthode de Monte-Carlo** permet de simuler le comportement individuel des particules. Des fonctions de probabilité sont utilisées pour décrire les différentes possibilités de mouvement : probabilité de passer dans la couche active, longueur parcourue dans la

couche active, angle de descente lors du roulement... Le choix des probabilités considérées ainsi que les valeurs qui leur sont associées influencent donc fortement les résultats obtenus. Cette méthode peut permettre une description fine de l'évolution du lit mais est très coûteuse en temps de calcul et n'est par conséquent pas utilisée pour les modélisations à l'échelle pilote ou à l'échelle industrielle [140].

La **méthode DEM** (Discret Element Method). Là encore, les particules sont modélisées séparément et une approche mécanique permet de simuler leurs interactions. Les trajectoires des particules sont ainsi calculées et il est possible d'en déduire le comportement global du lit. La modélisation du comportement de plusieurs millions de particules est désormais possible [141] mais les temps de calcul importants qui en découlent rendent cette méthode peu adaptée à la modélisation de procédés industriels [140].

Les **corrélations empiriques** sont les plus fréquentes. Elles permettent généralement de relier le temps de passage τ aux paramètres opératoires et éventuellement au produit utilisé. Le temps de passage est le ratio entre la masse retenue dans le cylindre et le débit massique d'alimentation \dot{Q} (**Équation 5**).

$$\tau = \frac{m_{\text{retenue}}}{\dot{Q}} \quad \text{Équation 5}$$

Les corrélations présentées dans la suite de cette partie sont retranscrites sous la forme proposée par les auteurs. Les unités ne sont pas nécessairement en accord avec le système international.

La première corrélation (**Équation 6**) a été établie par Sullivan et al. [142] pour les cylindres sans diaphragme de sortie.

$$\tau = 1,77 \frac{L\sqrt{\beta}}{2R\omega\alpha} \quad \text{Équation 6}$$

Dans cette corrélation, les caractéristiques du cylindre sont prises en compte *via* sa longueur et son rayon (L et R). L'angle de repos dynamique β est caractéristique du solide et les paramètres opératoires sont la vitesse de rotation et l'inclinaison (ω et α).

De nombreux auteurs se sont ensuite attachés à proposer des relations prenant en compte d'autres paramètres. C'est notamment le cas de Chatterjee *et al.* [143] qui considèrent que

le débit volumique de solide \dot{Q}_v a une influence sur le temps de passage. La relation proposée est présentée **Équation 7**.

$$\tau = K \frac{L^3}{\dot{Q}_v} \left(\frac{\beta}{\alpha} \right)^{1,054} \left(\frac{\dot{Q}_v}{L^3 \omega} \right)^{0,981} \quad \text{Équation 7}$$

Où K est une constante. Il faut cependant noter que, d'après cette expression, l'influence du débit d'alimentation en solide est faible en comparaison avec les autres paramètres de fonctionnement.

Sai *et al.* [144] établissent également une expression du temps de passage. Les matériaux utilisés sont du sable, du charbon et de l'ilménite. La corrélation proposée (**Équation 8**) présente l'avantage de prendre en compte la hauteur du diaphragme (h_d) disposé en sortie du cylindre.

$$\tau = 1315,2 \frac{h_d^{0,24}}{\alpha^{1,02} \omega^{0,88} \dot{Q}^{0,072}} \quad \text{Équation 8}$$

Où \dot{Q} est le débit massique de solide (kg/h). Le temps de passage est ici considéré comme indépendant du matériau utilisé.

Plus récemment, Thibault *et al.* [137] étudient l'écoulement de farine de poisson, farine de soja, sable et sciure dans un sécheur rotatif. Les influences respectives du produit, du débit d'alimentation en solide et en gaz, de l'inclinaison et de la vitesse de rotation du cylindre sont étudiées. Les résultats expérimentaux ont tout d'abord été exploités sous forme d'une corrélation présentée **Équation 9**.

$$\tau = \rho_s \left(\frac{0,151}{\dot{Q}^{0,81} \omega^{0,60}} \right) (1 - 11,97\alpha) (1 - 5,40\dot{G}) \quad \text{Équation 9}$$

Où ρ_s est la masse volumique du solide et \dot{G} est le débit massique de gaz. Il faut cependant noter que malgré la présence de relevateurs qui augmentent le contact entre le gaz et les particules, l'effet du débit de balayage sur le temps de passage reste faible en comparaison avec les autres paramètres.

Une autre solution proposée par Thibault *et al.* pour modéliser le temps de passage est d'utiliser un réseau de neurones comme présenté **Figure 20**.

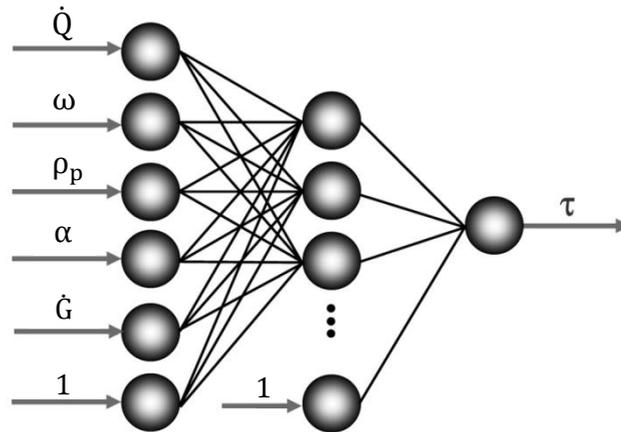


Figure 20 : Schéma de principe du réseau de neurones utilisé pour la modélisation du temps de passage (d'après [137]).

Les données d'entrée sont les mêmes que lors de l'établissement de l'Équation 9 et la sortie est le temps de passage. Le nombre n de neurones de la couche intermédiaire est dans un premier temps considéré comme un paramètre d'ajustement. Dès $n=2$, les résultats prédictifs du réseau de neurones sont meilleurs que ceux de la corrélation précédente. Quand n augmente, l'écart entre le modèle et les résultats expérimentaux diminue. Les auteurs concluent à un nombre de neurones optimal situé entre 5 et 6 pour éviter le surajustement et minimiser l'écart à l'expérience. L'inconvénient de ce genre de modèles est qu'ils ne mettent pas en évidence de manière explicite l'influence des paramètres opératoires.

Pour finir, un des modèles les plus utilisés est celui proposé par Saeman [145]. Etabli à partir de calculs théoriques, il permet de calculer le profil de chargement le long d'un cylindre sans diaphragme de sortie et sans releveur. Ce modèle a été développé et comparé aux résultats expérimentaux obtenus avec du sable, qui est souvent considéré comme un matériau modèle. Afacan et Masliyah [146] ont ensuite adapté ce modèle à d'autres configurations de cylindres (avec releveurs, avec diaphragme) mais toujours en utilisant du sable. Le modèle se présente sous la forme d'une équation différentielle – présentée **Équation 10** – décrivant l'évolution de la hauteur du lit le long du cylindre.

$$\frac{dh(z)}{dz} = \frac{3\dot{Q}_v \tan(\beta)}{4\pi\omega R^3} \left(\frac{2h}{R} - \frac{h^2}{R^2} \right)^{-3/2} - \frac{\tan(\alpha)}{\cos(\beta)} \quad \text{Équation 10}$$

Pour résoudre cette équation, la hauteur du lit en sortie du cylindre est considérée égale à la hauteur du diaphragme h_d ou au diamètre moyen des particules d_p (en l'absence de

diaphragme). Ce modèle a également été récemment validé par Gao *et al.* [147] avec des particules sphériques, des particules cylindriques et des particules allongées quadrilobes. Un exemple des résultats obtenus est donné **Figure 21**.

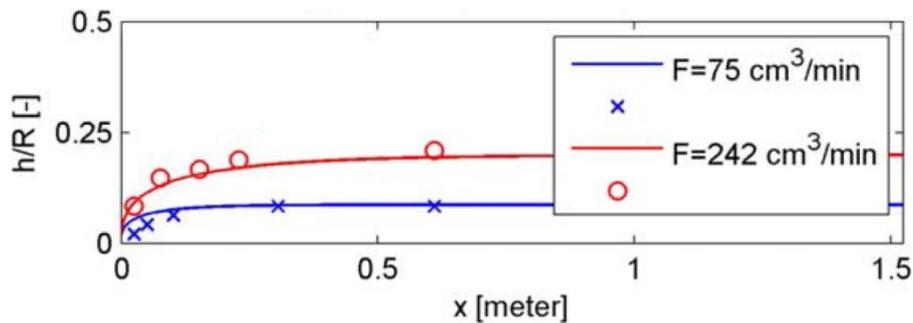


Figure 21 : Profil de chargement lors d'expériences avec des particules sphériques pour deux débits d'alimentation. h/R est le ratio hauteur du lit / rayon du cylindre et x est la distance à la sortie (d'après [147]).

Les prédictions du modèle (traits continus) sont en adéquation avec les valeurs expérimentales, excepté à la sortie du cylindre pour le faible débit d'alimentation. Il faut cependant noter que, là encore, les particules utilisées sont calibrées. La validité de ce modèle avec un solide granulaire irrégulier n'a pas été prouvée.

III.2.4. Les phénomènes de ségrégation

Comme mentionné précédemment, la plupart des relations permettant de calculer le temps de passage des particules dans un cylindre en rotation ont été établies pour des milieux modèles. Cependant, il a été observé que, pour des solides granulaires moins homogènes, des phénomènes de ségrégation se mettent en place. Les études sur la ségrégation sont classiquement menées dans des cylindres transparents fonctionnant en mode batch [148] mais les résultats sont similaires à ceux obtenus dans des cylindres à alimentation continue [149].

Les principales causes de la ségrégation sont la dispersion de la taille des particules ou de leur densité. Leur état de surface et leur humidité seraient également des facteurs déterminants [148].

Par observation du comportement du sable, Das Gupta *et al.* [150] concluent que la **ségrégation axiale** est la conséquence de deux phénomènes :

- La **ségrégation par flottement** : les grosses particules « flottent » en surface du lit, restant ainsi dans la couche active,

- La **ségrégation radiale** : les petites particules percolent entre les grosses particules. Un « cœur » de particules de petite taille se forme alors en dessous de la couche active, comme présenté **Figure 22**.

Ces particules ne passent donc plus par la couche active ce qui limite leur déplacement dans la direction axiale.

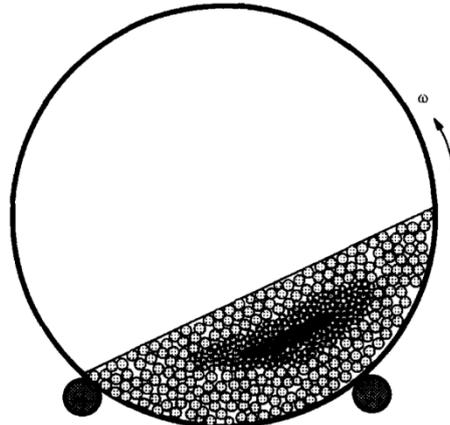


Figure 22 : Schéma de la ségrégation radiale pour un solide constitué de particules de différentes tailles (d'après [132]).

Enfin, d'après Boateng et Barr [132] et Bridgwater *et al.* [151], la principale cause de la ségrégation axiale serait la **ségrégation de trajectoire** : la distance parcourue par une particule lors de son passage dans la couche active serait proportionnelle au carré du diamètre de la particule.

Il est donc admis que la ségrégation axiale est la conséquence de l'effet conjugué de ces différents types de ségrégations. Il faut cependant noter que la ségrégation n'est pas nécessairement défavorable. En effet, les particules de grandes tailles sont situées à la périphérie du lit, proches des sources de chaleur (gaz et/ou paroi). Elles reçoivent donc plus d'énergie que les petites particules qui réagiraient plus vite à la même température. Identifier l'existence ou non de phénomènes de ségrégation peut donc s'avérer primordial pour aborder les problématiques d'homogénéité du traitement.

L'écoulement d'un milieu granulaire dans un four tournant est donc un procédé complexe mettant en jeu plusieurs phénomènes qui doivent être pris en compte simultanément afin de modéliser précisément le traitement. Les principaux phénomènes ayant été décrits, la partie suivante s'intéresse au concept de distribution des temps de séjour qui est un outil classiquement utilisé pour l'étude des écoulements dans les réacteurs.

III.3. La Distribution des Temps de Séjour en four tournant

Jusqu'ici, seul le temps de passage a été pris en compte. L'écoulement est donc considéré comme piston ce qui signifie que toutes les particules ont la même vitesse. L'écart de cette hypothèse à la réalité doit être quantifié. Pour cela, des expériences de distribution des temps de séjour (DTS) peuvent être réalisées.

III.3.1. Principes de la DTS

La DTS est un outil qui permet de caractériser l'hydrodynamique d'un réacteur et d'évaluer l'écart par rapport aux écoulements idéaux obtenus dans un **réacteur piston** et dans un **réacteur parfaitement agité**. Dans le cas d'un écoulement granulaire en four tournant, l'objectif est donc d'estimer le temps passé par chaque particule dans le cylindre. Pour ce faire, un stimulus est imposé en entrée du cylindre et la réponse en sortie est analysée.

Le stimulus consiste en l'injection d'un traceur sous forme d'une impulsion ou d'un échelon [152]. Ce traceur doit être facilement détectable et marquer le flux sans le perturber. Il doit donc avoir les mêmes propriétés que le solide tracé et être inerte. En four tournant, l'impulsion est couramment utilisée car elle demande de faibles quantités de traceur.

En sortie du cylindre, la concentration $C(t)$ en traceur est mesurée au cours du temps. La fonction de distribution des temps de séjour $E(t)$ peut alors être calculée suivant l'**Équation 11**.

$$E(t) = \frac{C(t)}{\int_0^{\infty} C(t) dt} \quad \text{Équation 11}$$

Le temps de séjour moyen \bar{t}_s et la variance de la distribution σ^2 sont déduits de cette fonction grâce à l'**Équation 12** et à l'**Équation 13** respectivement.

$$\bar{t}_s = \int_0^{\infty} tE(t) dt \quad \text{Équation 12}$$

$$\sigma^2 = \int_0^{\infty} t^2 E(t) dt - \bar{t}_s^2 \quad \text{Équation 13}$$

Il est possible d'adimensionnaliser les courbes en traçant la fonction E_{ad} en fonction du temps adimensionnel t_{ad} . Ces termes sont calculés suivant les **Équations 14 et 15**.

$$E_{ad} = \bar{t}_s \cdot E(t) \quad \text{Équation 14}$$

$$t_{ad} = t / \bar{t}_s$$

Équation 15

Ceci permet de comparer des écoulements ayant des bases temporelles différentes.

III.3.2. Résultats classiquement obtenus

La **Figure 23** présente une fonction de distribution des temps de séjour obtenue lors de l'étude de l'écoulement de sable en four tournant [153].

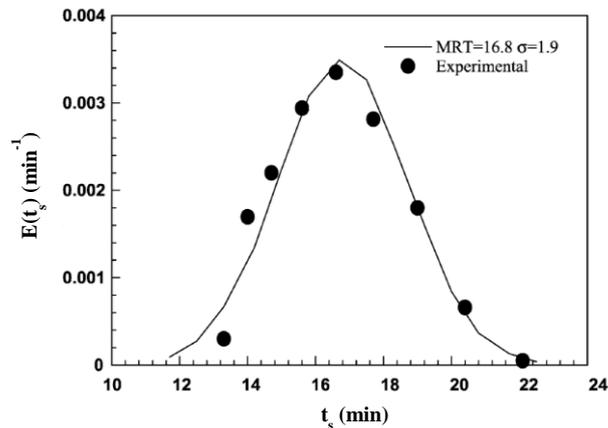


Figure 23 : Fonction de distribution des temps de séjour obtenue par traçage de sable en four tournant (d'après [153]).

Le temps de séjour moyen est ici de 16,8 min ce qui correspond bien au pic de la fonction. La courbe est plutôt symétrique ce qui tend à prouver que la dispersion axiale est faible et qu'il n'y a pas de défaut majeur d'écoulement [154]. Cependant, il a été montré que certains paramètres comme la composition ou l'humidité du produit peuvent mener à l'obtention de courbes non symétriques [155,156]. Ceci traduit alors une plus forte dispersion des temps de séjour ce qui peut conduire à un manque d'homogénéité du traitement.

Un autre résultat de la DTS est la comparaison du temps de séjour moyen et du temps de passage. De manière générale [157], un écart important entre ces deux valeurs met en évidence un dysfonctionnement :

- Si $\bar{t}_s < \tau$, cela peut être dû à l'existence d'un **volume mort** dans le cylindre,
- Si $\bar{t}_s > \tau$, cela peut être dû à un phénomène de **court-circuit** dans le cylindre.

Les résultats de cette comparaison dans le cas des fours tournants ne sont pas tranchés. Certaines études ne trouvent pas de réelle différence entre \bar{t}_s et τ [158] alors que d'autres mettent en évidence que des écarts significatifs entre ces deux valeurs peuvent apparaître pour les temps de séjour élevés [159].

L'étude du temps de séjour moyen permet également de quantifier l'influence des paramètres opératoires du four. Un exemple tiré de l'étude de Li *et al.* [153] est donné **Figure 24**.

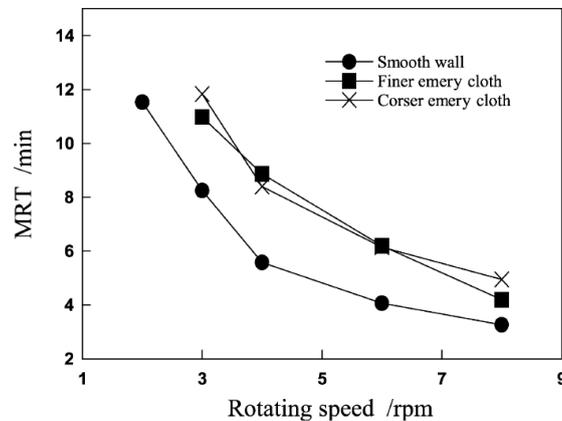


Figure 24 : Influence de la vitesse de rotation et de la rugosité de la paroi du cylindre sur le temps de séjour moyen de déchets municipaux dans un four tournant (d'après [153]).

Ces courbes montrent, d'une part, qu'un cylindre lisse mène à des temps de séjour plus faibles qu'un cylindre dont la paroi est rendue rugueuse (ici par de la toile émeri) et, d'autre part, que le temps de séjour moyen diminue quand la vitesse de rotation augmente. Ceci est cohérent avec les relations de temps de passage présentées précédemment. Une augmentation de l'inclinaison mène également à une diminution du temps de séjour [160].

Bien que l'influence du débit d'alimentation en solide soit controversée (§III.2.3), il semblerait qu'une augmentation de ce débit d'alimentation provoque une augmentation du temps de séjour. Cette augmentation serait cependant très limitée lorsqu'un faible débit de gaz de balayage est utilisé [160].

III.3.3. Les modèles de DTS

Les deux principaux modèles utilisés pour représenter l'allure des courbes de DTS sont :

- Le modèle d'**écoulement piston avec dispersion axiale** qui quantifie la déviation par rapport à un écoulement piston. L'**Équation 16** permet de calculer la fonction de distribution des temps de séjour pour ce modèle.

$$E_p(t) = \frac{1}{2\bar{t}_s} \sqrt{\frac{Pe}{\pi}} \exp\left(-\frac{Pe(\bar{t}_s - t)^2}{4\bar{t}_s^2}\right) \quad \text{Équation 16}$$

Le paramètre d'ajustement est le nombre de Péclet Pe . Plus ce nombre est élevé, plus l'écoulement est proche d'un écoulement piston.

- Le modèle de **mélangeurs en cascade** qui quantifie la déviation par rapport à un mélangeur parfait. L'**Équation 17** permet de calculer la fonction de distribution des temps de séjour pour ce modèle.

$$E_m(t) = \left(\frac{J}{\bar{t}_s}\right)^J \frac{1}{(J-1)!} t^{J-1} \exp\left(-J \frac{t}{\bar{t}_s}\right) \quad \text{Équation 17}$$

Le paramètre d'ajustement est le nombre de réacteurs en cascade J . Plus ce nombre est élevé, plus le comportement de l'écoulement s'éloigne de celui d'un mélangeur parfait.

Dans la littérature, deux méthodes ont été utilisées pour déterminer les paramètres des modèles présentés **Équations 16 et 17**:

- La **définition théorique** des nombres Pe et J :

$$Pe = 2 \frac{\bar{t}_s^2}{\sigma^2} \quad \text{Équation 18}$$

$$J = \frac{\bar{t}_s^2}{\sigma^2} \quad \text{Équation 19}$$

- L'ajustement des paramètres** : Pe et J sont alors déterminés afin de minimiser l'écart entre l'expérience et les résultats du modèle.

En four tournant, Pe et J sont classiquement supérieurs à 50 et 25 respectivement, ce qui confirme la faible dispersion axiale [152].

A partir du nombre Pe il est possible de calculer un coefficient de dispersion axiale D_{ax} (m^2/s). Ce coefficient satisfait l'**Équation 20**.

$$D_{ax} = \frac{uL}{Pe} = \frac{L^2}{\bar{t}_s \times Pe} \quad \text{Équation 20}$$

Où u est la vitesse axiale moyenne et L la longueur du cylindre. Une étude détaillée de ce coefficient [140] a permis de montrer qu'il augmente quand la vitesse de rotation augmente ou quand le taux de remplissage diminue.

Enfin, le nombre de mélangeurs en série J est indépendant du débit d'alimentation en solide. Le ratio entre la longueur du cylindre L et le nombre de mélangeurs en série J définit la longueur moyenne d'un mélangeur. Cette longueur correspond approximativement à 10 % du diamètre du cylindre.

III.4. Les transferts thermiques en four tournant

Lors de la modélisation d'un procédé de traitement thermique en four tournant, plusieurs types de transferts thermiques doivent être pris en compte. Les principaux sont représentés **Figure 25**.

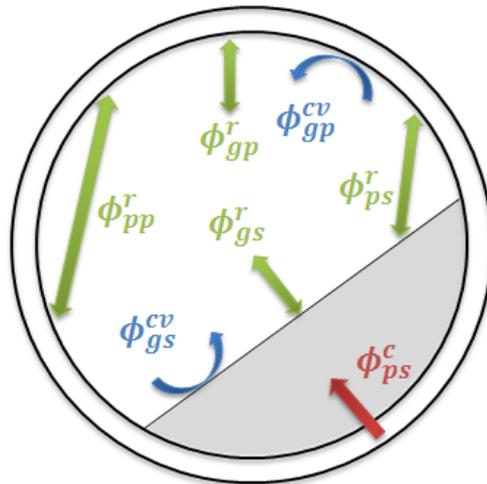


Figure 25 : Principaux transferts thermiques intervenant dans une section de four tournant.

Où :

- ϕ_{ps}^c est le flux échangé par contact paroi-solide
- ϕ_{gs}^{cv} est le flux échangé par convection gaz-solide
- ϕ_{gp}^{cv} est le flux échangé par convection gaz-paroi
- ϕ_{ps}^r est le flux échangé par rayonnement paroi-solide
- ϕ_{pp}^r est le flux échangé par rayonnement paroi-paroi
- ϕ_{gp}^r est le flux échangé par rayonnement gaz-paroi
- ϕ_{gs}^r est le flux échangé par rayonnement gaz-solide

Les différents types de transferts vont être présentés succinctement.

III.4.1. Transferts convectifs

Les deux flux convectifs intervenant dans la section du four tournant sont des flux de convection forcée dus au gaz de balayage (auquel peuvent venir s'ajouter les matières volatiles produites). Leur expression générale est présentée **Équation 21**.

$$\phi^{cv} = h^{cv}S\Delta T$$

Équation 21

Où S est la surface d'échange, ΔT la différence de température entre le gaz et la paroi ou le solide et h^{cv} le coefficient de transfert thermique.

Ce coefficient est calculé de la manière suivante :

$$h^{cv} = \frac{Nu \cdot \lambda_g}{D_h} \quad \text{Équation 22}$$

Où Nu est le nombre de Nusselt, λ_g la conductivité thermique du gaz et D_h le diamètre hydraulique dont l'expression, déterminée par Tscheng et Watkinson [161] dans le cas d'un four tournant, est présentée **Équation 23**.

$$D_h = R \left(\frac{2\pi - \theta + \sin \theta}{\pi - \frac{\theta}{2} + \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)} \right) \quad \text{Équation 23}$$

La difficulté réside donc dans l'estimation du nombre de Nusselt correspondant aux transferts entre le gaz et la paroi et entre le gaz et le lit de particules.

Transferts gaz-paroi

Parmi les corrélations établies, les plus fréquemment utilisées ont été proposées par Tscheng et Watkinson [161] et par Gorog *et al.* [162]. Elles sont présentées **Équation 24** et **Équation 25** respectivement.

$$Nu_{gp} = 1,54 \cdot Re^{0,535} Re_{\omega}^{-0,292} \quad \text{Équation 24}$$

$$Nu_{gp} = 0,036 \cdot Re^{0,8} Pr^{0,33} \left(\frac{D}{L} \right)^{0,055} \quad \text{Équation 25}$$

Où Re est le nombre de Reynolds, Re_{ω} le nombre de Reynolds rotationnel et Pr le nombre de Prandtl définis **Équation 26**.

$$\left\{ \begin{array}{l} Re = \frac{\rho_g v_g D_h}{\mu_g} \\ Re_{\omega} = \frac{\rho_g \omega D_h^2}{\mu_g} \\ Pr = \frac{\mu_g C_{p,g}}{\lambda_g} \end{array} \right. \quad \text{Équation 26}$$

ρ_g , v_g , μ_g et $C_{p,g}$ sont respectivement la masse volumique, la vitesse axiale, la viscosité dynamique et la capacité thermique massique du gaz.

Il faut noter que ces corrélations ont été établies pour des nombres de Re élevés, correspondant à des écoulements de gaz turbulents. Seghir-Ouali *et al.* [163] ont donc développé une corrélation adaptée à des écoulements laminaires :

$$Nu_{gp} = 0,01963 \cdot Re^{0,9285} + 8,5101 \cdot 10^{-6} Re_{\omega}^{1,4513} \quad \text{Équation 27}$$

Cette corrélation a été validée pour des nombres Re compris entre 0 et $3 \cdot 10^4$ et pour des nombres Re_{ω} compris entre $1,6 \cdot 10^3$ et $2,77 \cdot 10^5$.

Transferts gaz-solide

Les corrélations les plus couramment employées pour évaluer le coefficient de transfert convectif gaz-solide ont également été établies par Tscheng et Watkinson [161] et par Gorog *et al.* [162]. L'Équation 28, proposée par Tscheng et Watkinson, a été établie dans un domaine couvrant les régimes d'écoulement laminaire et turbulent. Celle proposée par Gorog *et al.* (Équation 29) permet directement le calcul du coefficient de transfert gaz-solide et a été établie pour des nombre de Re situés entre $2 \cdot 10^5$ et $5 \cdot 10^5$.

$$Nu_{gs} = 0,46 \cdot Re^{0,535} Re_{\omega}^{0,104} \left(\frac{H_z}{100} \right)^{-0,341} \quad \text{Équation 28}$$

$$h_{gs}^{cv} = 0,4 \left(\frac{\dot{m}_g}{S_g} \right)^{0,62} \quad \text{Équation 29}$$

Où \dot{m}_g est le débit massique de gaz (en kg/h). L'intérêt de ces relations réside principalement dans le fait qu'elles ont été développées spécifiquement pour représenter le comportement des fours tournants. L'utilisation de la relation de Tscheng et Watkinson semble particulièrement faire consensus lors de l'élaboration de modèles de fours tournants à une dimension [164].

III.4.2. Transferts radiatifs

Bien que les transferts radiatifs soient souvent considérés comme négligeables pour des températures inférieures à 300-400 °C [165], certains développements permettent de prendre en compte ce mode de transfert de manière simple. De plus, tenir compte du rayonnement dans un modèle de torréfaction pourrait s'avérer indispensable lors de l'exploitation de ce modèle aux températures de traitement les plus élevées.

Les travaux menés par Gorog *et al.* [166] ont permis de tirer plusieurs conclusions sur le comportement radiatif des fours tournants. Ils ont notamment conclu que les transferts par

rayonnement dus aux gradients de température dans la direction axiale peuvent être négligés. Ainsi, lors de la modélisation du procédé, le rayonnement est considéré comme significatif uniquement dans un plan transversal, ce qui simplifie considérablement les équations [167]. Ensuite, la paroi du cylindre et le lit de particules peuvent être considérés comme des surfaces grises et diffusantes. Enfin, ils proposent l'expression des facteurs de forme entre la paroi p et le solide s :

$$\begin{cases} F_{ss} = 0 \\ F_{sp} = 1 \\ F_{ps} = \frac{S_l}{S_{pd}} \\ F_{pp} = 1 - \frac{S_l}{S_{pd}} \end{cases} \quad \text{Équation 30}$$

Basé sur ces remarques, Descoins [134] propose un modèle simplifié de rayonnement dans un four tournant pilote. La méthode des radiosités est alors employée [168]. La radiosité J^r est définie comme la somme de l'émittance de la surface et du flux réfléchi par unité de surface et s'écrit sous la forme :

$$J^r = \varepsilon\sigma T^4 + (1 - \varepsilon)E^r \quad \text{Équation 31}$$

Où ε , T , E^r sont l'émissivité, la température et l'éclairement de la surface et σ la constante de Stefan-Boltzmann.

La densité de flux nette perdue par la surface (Équation 32) est égale à la différence entre la radiosité (densité de flux quittant la surface par émission et réflexion) et son éclairement (densité de flux arrivant sur la surface).

$$\frac{\Phi_{\text{net}}^r}{S} = J^r - E^r = \frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon} (\sigma T^4 - J^r) \quad \text{Équation 32}$$

La radiosité prend en compte plusieurs composantes. Si on considère une surface i échangeant avec n surfaces d'indices j :

$$J_i^r = \varepsilon_i \sigma T_i^4 + (1 - \varepsilon_i) \sum_{j=1}^n F_{ij} \tau_g J_j^r + (1 - \varepsilon_i) \varepsilon_g \sigma T_g^4 \quad \text{Équation 33}$$

Le premier terme correspond au flux émis par la surface S_i . Le deuxième correspond au flux émis par la surface S_j , traversant le gaz et étant réfléchi par S_i . Enfin, le troisième est le flux émis par le gaz et étant réfléchi par S_i .

Par hypothèse, le gaz est considéré comme gris donc sa transmittivité τ_g vérifie l'Équation 34.

$$\tau_g = 1 - \varepsilon_g \quad \text{Équation 34}$$

En appliquant l'Équation 33 à la surface de cylindre S_{pd} et à la surface de solide S_l , il est possible d'obtenir un système de deux équations :

$$\begin{bmatrix} A_{ss} & A_{sp} \\ A_{ps} & A_{pp} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} J_s^r \\ J_p^r \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} B_s \\ B_p \end{bmatrix} \quad \text{Équation 35}$$

Avec :

$$\begin{cases} A_{ss} = 1 - (1 - \varepsilon_s)F_{ss}(1 - \varepsilon_g) \\ A_{sp} = -(1 - \varepsilon_s)F_{sp}(1 - \varepsilon_g) \\ A_{ps} = -(1 - \varepsilon_p)F_{ps}(1 - \varepsilon_g) \\ A_{pp} = 1 - (1 - \varepsilon_p)F_{pp}(1 - \varepsilon_g) \\ B_s = \varepsilon_s \sigma T_s^4 + (1 - \varepsilon_s)\varepsilon_g \sigma T_g^4 \\ B_p = \varepsilon_p \sigma T_p^4 + (1 - \varepsilon_p)\varepsilon_g \sigma T_g^4 \end{cases} \quad \text{Équation 36}$$

Ce système comporte deux inconnues J_s^r et J_p^r . Après résolution, les flux nets échangés par le solide et la paroi peuvent être calculés suivant l'Équation 37.

$$\begin{cases} \frac{\Phi_s^r}{S_l} = \frac{\varepsilon_s}{1 - \varepsilon_s} (\sigma T_s^4 - J_s^r) \\ \frac{\Phi_p^r}{S_{pd}} = \frac{\varepsilon_p}{1 - \varepsilon_p} (\sigma T_p^4 - J_p^r) \end{cases} \quad \text{Équation 37}$$

Enfin, le flux net du rayonnement de la phase gazeuse est calculé grâce à l'Équation 38.

$$\Phi_g^r = -(\Phi_s^r + \Phi_p^r) \quad \text{Équation 38}$$

Cette méthode est donc simple à mettre en œuvre et peu coûteuse en temps de calcul ce qui en fait une méthode de choix pour la modélisation d'un procédé complexe.

III.4.3. Transferts paroi-solide

L'estimation du terme de transfert paroi-solide est cruciale, notamment lors de la modélisation d'un four tournant à chauffage indirect. Dans la littérature, une quantité limitée d'études se sont attachées à développer des corrélations pour représenter ce mode de transfert.

Wes *et al.* [169] considèrent que les particules sont en contact avec la paroi. La théorie de la pénétration (prenant en compte la conduction solide-solide, la convection dans la porosité du lit de particules et le rayonnement) est alors utilisée pour quantifier les transferts de

chaleur de la couche de contact vers l'intérieur du lit. L'expression pour le coefficient d'échange pariétal h_{ps}^c prend alors la forme suivante :

$$h_{ps}^c = 2 \sqrt{\frac{\lambda_s \rho_s C_{p,s}}{\pi t_c}} \quad \text{Équation 39}$$

Où t_c est le temps de contact entre une particule et la paroi dont l'expression proposée par Li *et al.* [170] est présentée **Équation 40**.

$$t_c = \frac{\theta/2}{2\pi\omega} \quad \text{Équation 40}$$

Lehmberg *et al.* [171] supposent l'existence d'une fine couche de gaz entre la paroi du cylindre et le lit de particules. L'épaisseur de cette couche augmente avec le diamètre des particules. L'expression alors déterminée est présentée **Équation 41**.

$$h_{ps}^c = \sqrt{\frac{\lambda_s \rho_s C_{p,s}}{t_c}} \left(\frac{2}{\sqrt{\pi}} - \frac{1}{h\sqrt{a_s t_c}} + \frac{1}{h\sqrt{a_s t_c}} \exp(h^2 a_s t_c) \operatorname{erfc}(h a_s t_c) \right) \quad \text{Équation 41}$$

Avec h le coefficient de transfert relatif à la paroi et a_s la diffusivité du lit ($m^2 \cdot s^{-1}$). Bien que cette expression soit plus réaliste, en prenant en compte la résistance due à la couche de gaz entre la paroi et le lit, son utilisation est complexe.

Ding *et al.* [165] soulignent cependant que la prise en compte de cette couche de gaz est indispensable pour éviter la surévaluation du coefficient de transferts. Une conclusion identique est tirée par Li *et al.* [170] qui proposent alors la relation suivante :

$$h_{ps}^c = \left(\chi d_p / \lambda_g + \left(2 \sqrt{4 \lambda_s \rho_s C_{p,s} \omega / \theta} \right)^{-1} \right)^{-1} \quad \text{Équation 42}$$

Où χ est l'épaisseur de la couche de gaz entre la paroi et le lit de particules. Ce paramètre a ensuite été identifié pour ajuster les résultats du modèle aux résultats expérimentaux. Il a alors été observé que χ augmente de 0,096 à 0,198 quand le diamètre des particules d_p (ici du sable) augmente de 157,5 à 1038 μm .

Ce modèle a récemment été comparé à d'autres modèles tirés de la littérature par Herz *et al.* [172,173]. Pour cette comparaison, des résultats obtenus dans un cylindre chauffé électriquement ont été confrontés aux résultats numériques. Les paramètres testés sont la vitesse de rotation (1 à 6 tr/min), le taux de remplissage moyen (10 à 20 %), la nature du

solide (sable, billes de verre, billes de cuivre) et la taille des particules (0,5 à 2,5 mm pour les billes de verre). Le seul modèle permettant de bien représenter les résultats expérimentaux, quel que soit le facteur étudié, est le modèle proposé par Li *et al.*.

IV. Conclusions

Au vu de l'état de l'art, il apparaît que les principaux mécanismes de la torréfaction ont été identifiés à l'échelle de la particule. Les études menées sur la cellulose, l'hémicellulose et la lignine ont mis en évidence les réactions qui occasionnent des changements de composition de la biomasse. Les principaux gaz produits lors de la décomposition de ces composés ont été déterminés. Cependant, les interactions entre les polymères n'ont jusqu'à présent fait l'objet que d'hypothèses. Il en est de même pour l'influence des cendres, dont l'effet catalytique lors du traitement thermique a été évoqué par plusieurs auteurs.

Étant donné la complexité de ces réactions, les modèles cinétiques permettant de décrire la perte de masse de la biomasse lors de la torréfaction sont en grande majorité théoriques. Ils sont en effet construits en considérant des pseudo-composants sans fondement chimique. Parmi les nombreux modèles présentés, certains se sont distingués par leur capacité à représenter fidèlement les courbes de perte de masse et par leur simplicité de mise en œuvre. Le seul modèle basé sur des bilans chimiques n'a que récemment été adapté à la torréfaction et sa complexité le rend difficilement applicable à des biomasses variées.

Les nombreuses études sur les chaleurs de torréfaction se sont heurtées à de sérieuses difficultés qui mènent à des résultats peu précis. Néanmoins, cela a permis de montrer que des exothermicités apparaissent dans certaines conditions. L'hypothèse la plus souvent avancée pour expliquer ce phénomène est que les réactions les plus exothermiques sont les réactions de formation du char secondaire lors du contact avec les matières volatiles. Les facteurs favorisant l'apparition de ces réactions restent peu connus.

Enfin, les principales propriétés de la biomasse torréfiée ont été mesurées. Les changements de composition, élémentaire et immédiate, permettent l'obtention d'un solide plus dense énergétiquement et présentant des propriétés favorables à sa valorisation en cocombustion ou en gazéification. Dû à la décomposition des hémicelluloses, la biomasse torréfiée est également plus friable que la biomasse brute. Un des enjeux actuels pour évaluer la rentabilité du procédé de torréfaction est désormais de quantifier précisément la diminution

de l'énergie nécessaire au broyage. Ceci nécessiterait de prendre en compte simultanément l'énergie consommée lors de l'étape de broyage mais également la granulométrie du broyat.

Malgré la forte croissance récente du secteur de la torréfaction qui a permis l'émergence de nombreux projets industriels, peu de données sont disponibles sur la conduite de procédés continus. Plusieurs technologies ont tout de même été identifiées pour réaliser la torréfaction. Les fours tournants, en particulier, présentent l'avantage d'être de conception simple et d'être couramment utilisés à l'échelle industrielle.

L'étude de la torréfaction en four tournant passe par la modélisation du procédé. Une telle modélisation est nécessairement basée sur le couplage entre les transferts de chaleur et de matière. Les différents phénomènes qui doivent être pris en compte sont le transport des particules le long du four, les transferts de chaleur, le séchage de la biomasse et les cinétiques de torréfaction.

Différents modèles ont été établis pour l'écoulement de milieux modèles le long de cylindres rotatifs. Ces modèles considèrent que l'écoulement de la charge est de type piston. Cependant, différents phénomènes peuvent intervenir et invalider cette hypothèse. C'est notamment le cas lorsque certaines caractéristiques du solide (comme une forte humidité) modifient l'écoulement ou lorsque des phénomènes de ségrégation se mettent en place.

L'étude des transferts de chaleur a permis l'identification des coefficients de transferts par convection et par contact paroi-solide. Là encore, les mesures expérimentales sont complexes ce qui rend la validité des modèles difficile à établir. Il semble cependant que certains fassent consensus. Le rayonnement n'est classiquement considéré prépondérant que pour les fortes températures mais un modèle simple a été présenté. Ceci permettra de limiter au maximum les sources d'incertitude.

Chapitre 2 : Présentation et évaluation du four tournant pilote

Dans cette partie, le four tournant pilote est présenté. Ce four n'ayant pas été conçu pour la torréfaction, certaines faiblesses ont été identifiées. Des solutions techniques sont donc proposées et leur mise en œuvre est décrite. Les protocoles expérimentaux établis pour réaliser les essais de torréfaction seront également détaillés.

Les différentes biomasses qui ont été envisagées pour mener l'étude seront ensuite exposées, et la démarche adoptée pour leur sélection sera justifiée.

Enfin, deux essais seront sommairement présentés afin d'évaluer la stabilité du traitement et la répétabilité des essais à l'échelle pilote.

I. Le dispositif expérimental

I.1. Présentation du four tournant pilote

Une photographie du four tournant pilote utilisé pour les essais est présentée **Figure 26**.

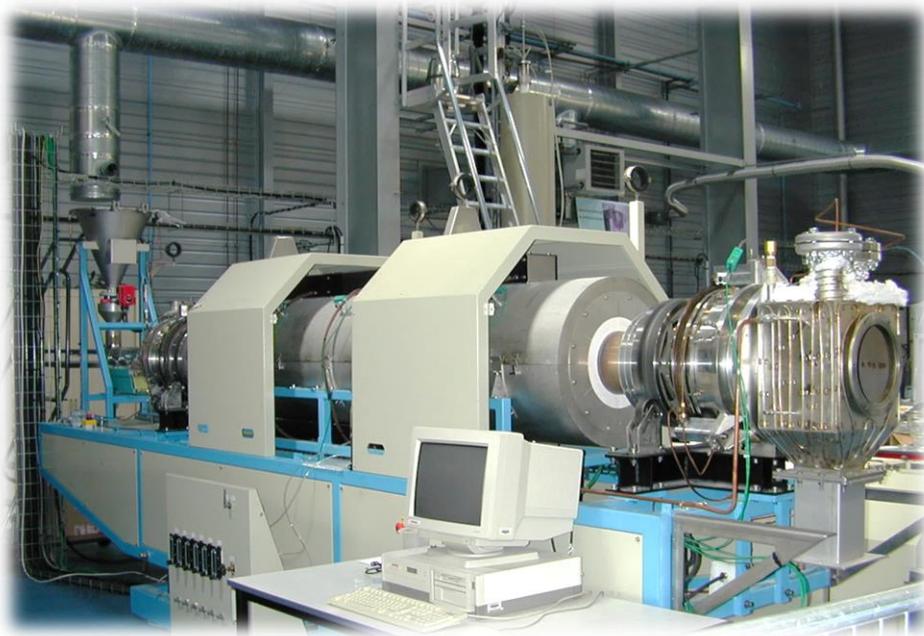


Figure 26 : Le four tournant pilote.

Ce four est constitué d'un cylindre en chromel (alliage nickel/chrome) dont la longueur L est de 4,2 m, le rayon interne R_i de 0,105 m et le rayon externe R_e de 0,107 m. La paroi interne est recouverte d'une grille métallique amovible qui augmente l'adhérence de la charge. Un moteur électrique permet la mise en rotation du cylindre à des vitesses comprises entre 0,5 et 21 tr/min. L'ensemble du four peut être incliné de 0 à 7 °.

Le matériau à traiter est introduit dans une trémie d'alimentation d'une contenance de 30 L fermée hermétiquement (voir **Figure 27**). Il est ensuite convoyé jusqu'à l'entrée du cylindre grâce à un couloir vibrant dont l'amplitude de vibration est réglable afin d'ajuster le débit. La liaison entre le couloir vibrant et la trémie est réalisée par un manchon souple. A l'autre extrémité du cylindre, le produit est récupéré dans des pots en métal fixés de manière étanche au caisson de sortie. Les gaz produits lors du traitement sont évacués vers un oxydateur thermique alimenté en propane qui permet leur combustion avant de les relâcher à l'extérieur.

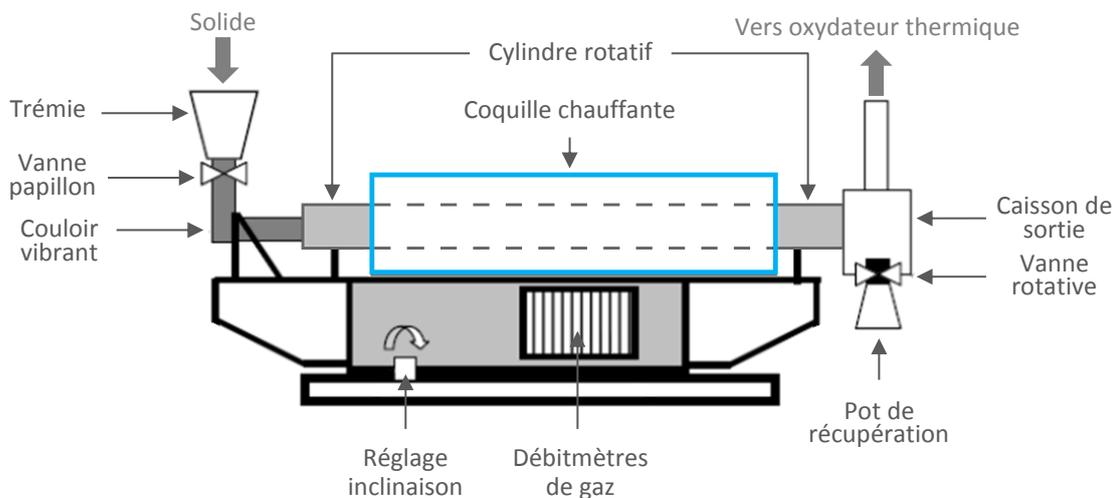


Figure 27 : Représentation schématique du four tournant pilote.

Une partie du cylindre est insérée dans une coquille chauffante présentée **Figure 27**. Cette coquille est divisée en 5 zones de longueur L_{zone} encadrées par 2 zones d'isolant de longueur L_{isol} (voir **Figure 28a**). Les principales dimensions sont récapitulées dans le **Tableau 9**.

Tableau 9 : Caractéristiques dimensionnelles de la coquille chauffante (en m).

L_{zone}	L_{isol}	L_{amont}	L_{aval}	R_{coq}
0,5	0,125	0,65	0,8	0,147

La chauffe de ces zones est assurée de manière indépendante par des résistances électriques englobées dans de la fibre d'alumine. Une couche d'air sépare le cylindre de cette fibre qui est entourée par une épaisse couche d'isolant thermique (voir **Figure 28b**). La régulation de chaque zone est basée sur des mesures de température réalisées par deux thermocouples positionnés dans la couche d'air au centre de chaque zone. La température de la coquille est assimilée à ces températures [134]. La puissance délivrable par les résistances des zones 1 et 5 est de 10,8 kW et celle des zones 2, 3 et 4 est de 5,4 kW. Le caisson de sortie ainsi que la

liaison four tournant-oxydateur thermique sont tracés thermiquement à 200 °C afin d'éviter la condensation des matières volatiles.

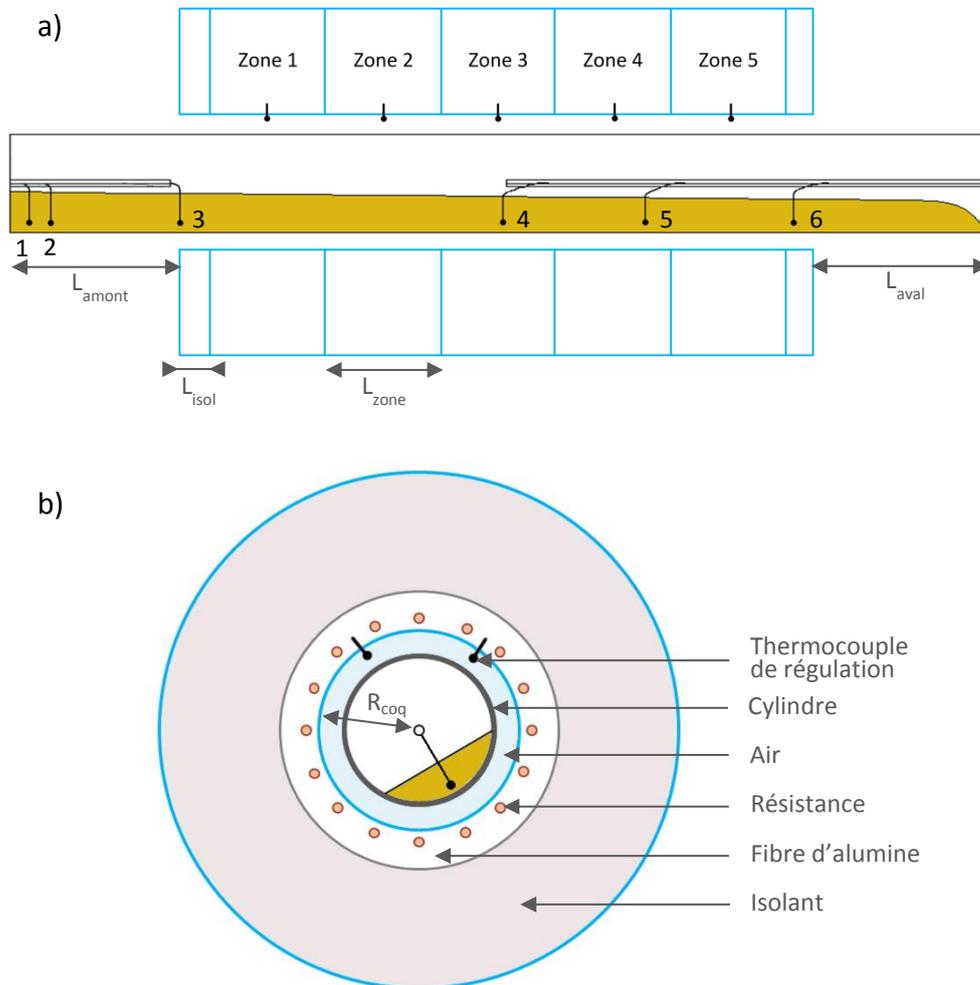


Figure 28 : Schémas de constitution du four électrique et position des thermocouples a) dans la longueur et b) en coupe.

Des débitmètres à flotteurs permettent de gérer la répartition des gaz (air ou azote). Pour des raisons de sécurité, des disques de rupture sont positionnés aux deux extrémités du four afin d'éviter une montée en pression de l'installation.

Enfin, la mesure de la température du lit de particules est réalisée grâce à 6 thermocouples :

- 3 sont insérés à l'entrée du cylindre (thermocouples 1, 2 et 3 **Figure 28a**) mais leur position exacte n'est pas connue et il est difficile d'accéder à cette extrémité pour les repositionner avec précision,
- 3 sont amenés *via* une canne fixe au niveau des zones de chauffe 3 et 4 et à la sortie du four. Leur position est connue précisément.

I.2. Evaluation des faiblesses du dispositif et solutions proposées

Ce pilote ayant été développé pour calciner des produits sous forme de poudre, certaines modifications ont dû être réalisées afin de l'adapter à la torréfaction de plaquettes de bois.

I.2.1. Régulation du débit d'alimentation

Initialement, le débit d'alimentation était réglé par étalonnage. Le signal électrique (0 – 20 mA) commandant l'amplitude de vibration du couloir vibrant était corrélé expérimentalement au débit d'alimentation avant chaque expérience. Il n'y avait donc pas de mesure ni de régulation continue du débit. Celui-ci était par conséquent soumis à des fluctuations comme présenté **Figure 29**.

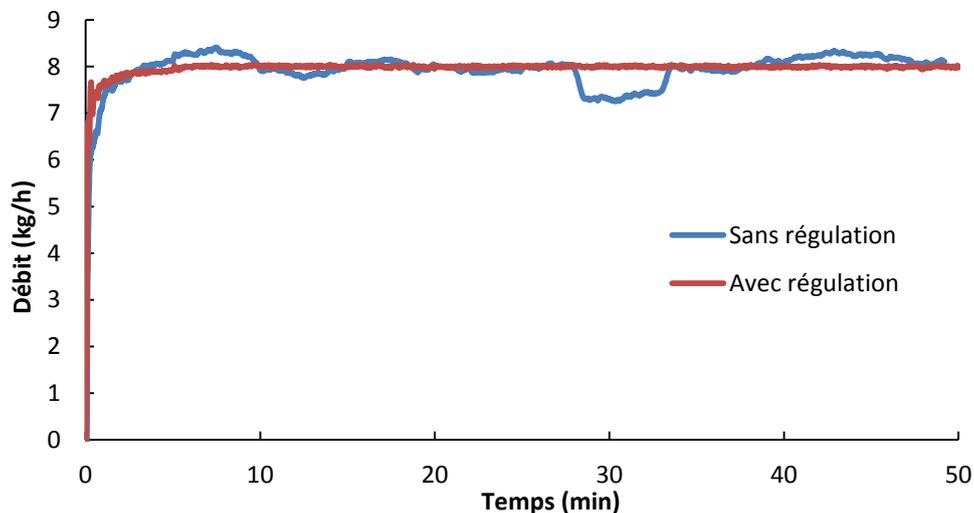


Figure 29 : Comparaison du débit délivré par le couloir vibrant avec et sans système de régulation.

Un doseur pondéral a donc été installé. La précision de la balance est de 0,2 g pour une portée de 300 kg. La masse du système d'alimentation (trémie + couloir vibrant) est ainsi mesurée en continu et une boucle de régulation PID a été implémentée afin de commander l'amplitude de vibration du couloir vibrant. Le débit d'alimentation peut ainsi être régulé entre 0 et 10 kg/h avec une précision de 50 g/h. La régularité du débit obtenu est très satisfaisante, comme illustré **Figure 29**.

Il faut également noter que la manipulation des plaquettes de bois implique l'apparition fréquente de voûtes (notamment à la base de la trémie). Lorsqu'un tel phénomène se produit, le débit d'alimentation diminue. Le système de régulation réagit alors en augmentant fortement l'amplitude de vibration ce qui permet l'élimination de la voûte sans intervention extérieure. Ceci contribue également à l'amélioration de la régularité du débit.

I.2.2. Interface de commande

La mise en place du système de régulation du débit présenté précédemment a été accompagnée d'une refonte totale de l'interface de commande du four devenue obsolète. La nouvelle interface, implémentée sous Labview® (National Instruments, Austin, États-Unis) permet le contrôle des paramètres opératoires :

- Vitesse de rotation du cylindre,
- Débit d'alimentation (réglage manuel ou régulation automatique),
- Température de consigne des différentes zones,
- Température de traçage du caisson de sortie.

Elle permet également l'acquisition des données expérimentales au cours du temps :

- Débit d'alimentation réel,
- Température de coquille des différentes zones,
- Puissance consommée par les résistances de chaque zone,
- Température du lit de particules.

Cette acquisition s'accompagne d'un tracé en temps réel de l'évolution des températures et permet d'évaluer la mise en régime permanent.

I.2.3. Fonctionnement en atmosphère inerte

Inertage du four

Jusqu'alors, le four tournant n'avait été utilisé que pour la calcination sous air. L'étanchéité de l'installation n'était donc pas problématique. Pour torréfier de la biomasse, il est cependant impératif de contrôler la qualité de l'inertage.

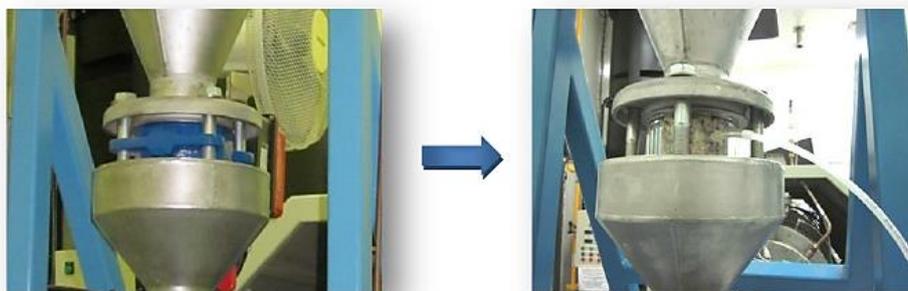


Figure 30 : Remplacement de la vanne papillon par une bride transparente avec injection d'azote.

La vanne rotative positionnée sous le caisson de sortie (voir **Figure 27**) – chargée de limiter l'entrée d'air lors d'un changement de pot – a été remplacée par une vanne à guillotine plus étanche.

Pour éviter les phénomènes de voûtage, la vanne papillon située à la base de la trémie a été remplacée par une bride transparente (voir **Figure 30**). Celle-ci permet d'une part le contrôle visuel du bon écoulement du solide et, d'autre part, l'injection d'azote afin de contrer l'entrée d'air lors de l'ouverture de la trémie durant une phase de rechargement. L'ensemble des positions auxquelles l'injection de l'azote est possible sont représentées sur le schéma du four tournant modifié **Figure 31**.

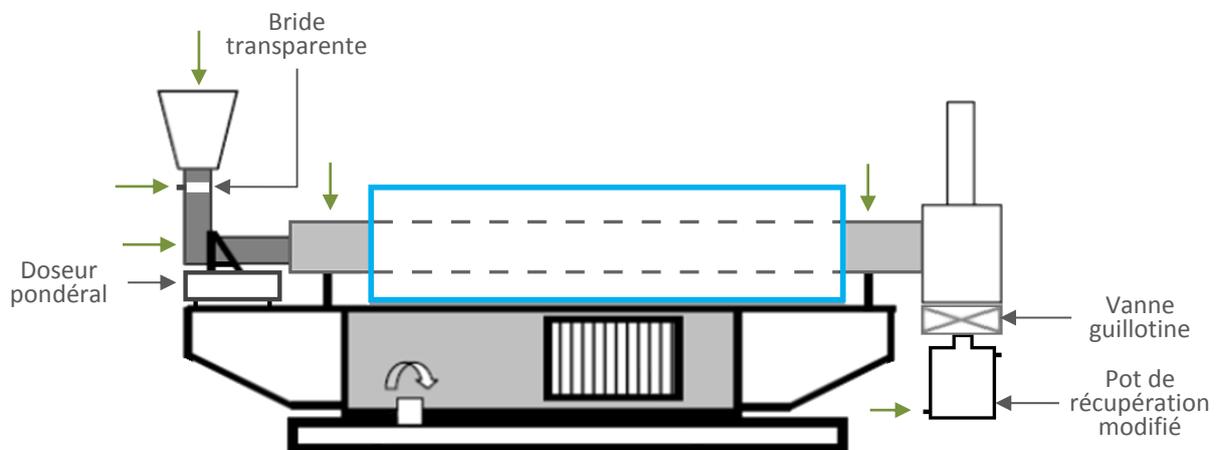


Figure 31 : Représentation schématique du four tournant pilote modifié et localisation des points d'injection d'azote (flèches vertes).

L'injection est donc réalisée :

- Au niveau des joints dynamiques qui assurent l'étanchéité des liaisons entre le cylindre en rotation et les parties fixes,
- Au niveau de la trémie d'alimentation pour limiter l'entrée d'air lors du rechargement,
- Au niveau de la bride transparente à la base de la trémie,
- A l'extrémité libre du couloir vibrant,
- Au niveau du caisson de sortie et des pots de récupération,
- A l'entrée ou à la sortie du cylindre rotatif suivant le mode de fonctionnement souhaité (co- ou contre-courant).

Un test d'étanchéité a été effectué. Les consignes de température des 5 zones ont été fixées à 250 °C. Le four est alors balayé avec un débit d'azote de 1 Nm³/h. Une fois les températures stabilisées, la teneur en oxygène dans le caisson de sortie a été mesurée à

l'aide d'un analyseur de fumées TESTO® 350 (Testo, Lenzkirch, Allemagne). Cette teneur est de 0,7 %vol. Lorsque le pot de récupération est enlevé, seule la vanne guillotine empêche l'entrée d'air et la teneur en oxygène atteint 1 %vol. Enfin, si la trémie est ouverte pendant 1 minute, cette teneur atteint 4,8 %vol.

Ces résultats sont donc satisfaisants, notamment au vu des tendances reportées dans la littérature. Il a en effet été observé [81] que la teneur en oxygène n'influence significativement le procédé que pour les teneurs supérieures à 10 %vol. De plus, il faut noter qu'en conditions réelles de torréfaction le rechargement en biomasse est réalisé lorsqu'il reste de la matière à la base de la trémie. L'entrée d'air dans le four est donc limitée, d'autant plus que le rechargement peut être effectué en moins d'une minute.

Inertage des pots de récupération

Une autre problématique inhérente au procédé de torréfaction est le risque d'emballement thermique lors du refroidissement du produit. Le principal facteur menant à l'apparition de tels phénomènes est le contact avec l'air. Il est donc nécessaire d'inertiser les pots de récupération.

De nouveaux pots ont donc été conçus et un exemple est présenté **Figure 32**.



Figure 32 : Pot de récupération conçu pour la torréfaction.

Le corps du pot, en aluminium mécano-soudé, a une contenance de 30 L. Le couvercle est équipé d'un joint torique et de trois points de serrage qui permettent sa fermeture hermétique. Un hublot facilite le contrôle visuel du niveau de remplissage du pot. Deux vannes ont été fixées de part et d'autre du corps du pot pour réaliser un balayage d'azote.

I.3. Protocole expérimental

Le protocole expérimental établi pour réaliser la torréfaction dans ce four tournant est présenté **Figure 33**.

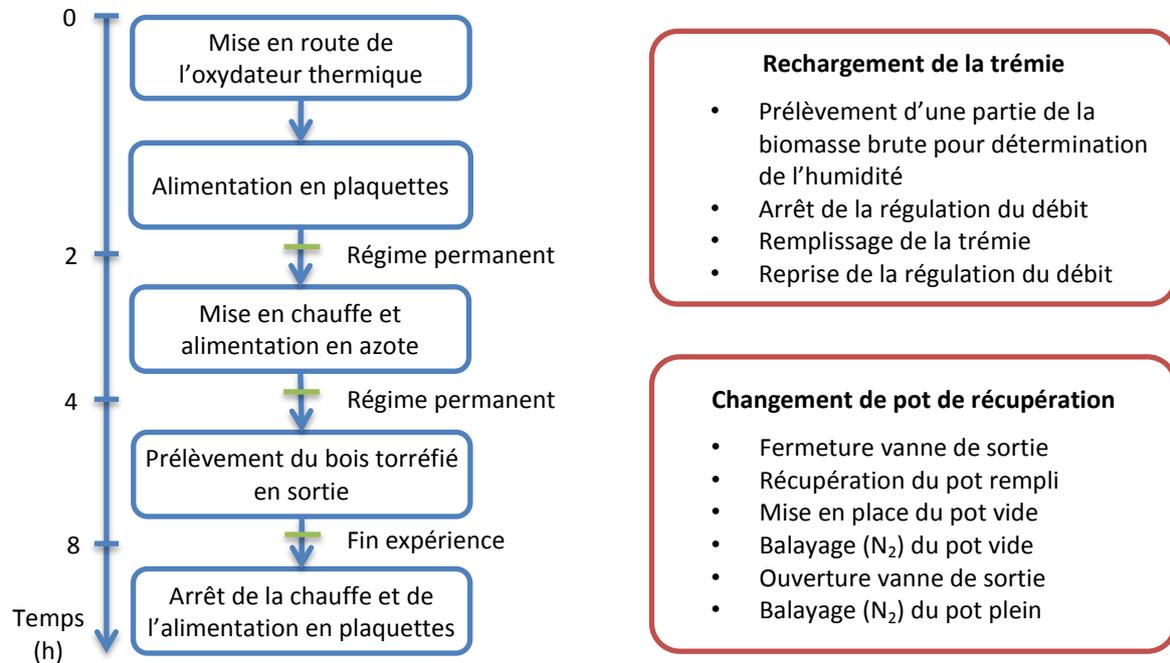


Figure 33 : Déroulement d'une expérience de torréfaction en four tournant et protocoles des phases critiques (rechargement de la trémie et changement de pot de récupération).

L'**incinérateur** est mis en route dès le début de l'expérience afin d'éviter l'accumulation de poussières pouvant créer une atmosphère explosive dans la chambre de combustion. L'**alimentation en plaquettes** de bois est ensuite activée et la chauffe n'intervient qu'une fois le régime permanent de l'écoulement atteint. Lors de cette phase d'écoulement à froid, une balance est placée en sortie du four pour évaluer le régime permanent. L'égalité des débits de sortie et d'entrée est typiquement observée au bout de 2 à 3 h.

Le **balayage d'azote** débute en même temps que la **chauffe**. Lorsque la température de la charge est stabilisée, un délai équivalent au temps de séjour de la biomasse dans le cylindre est imposé avant de débiter les **prélèvements**. Un pot vide de masse connue est alors mis en place et la durée du prélèvement $t_{\text{prélèvement}}$ est chronométrée.

Les phases critiques sont le rechargement de la trémie et le changement de pot. Leur réalisation suit un protocole strict afin de limiter les perturbations sur le procédé :

- Lors du **rechargement de la trémie**, un prélèvement est effectué afin de mesurer l'humidité sur sec H_s de la biomasse. Le système d'alimentation est ensuite passé en mode manuel car le rechargement perturbe les mesures de la balance. La trémie peut alors être remplie, puis la régulation du débit d'alimentation est réactivée.

- Lors du **changement de pot de récupération**, la vanne guillotine est fermée. Le pot rempli est récupéré, fermé hermétiquement et le pot vide est mis en position. Un tuyau relié au réseau d'azote est branché à l'une de ses vannes et un tuyau débouchant à l'extérieur du bâtiment est branché sur l'autre vanne. Un balayage est alors effectué pendant 5 min avec $1,2 \text{ Nm}^3/\text{h}$ d'azote. Les vannes sont ensuite fermées et la vanne guillotine est ouverte. Le même protocole est appliqué pour le balayage du pot plein. Il a été constaté que l'intérieur du pot reste en surpression pendant plusieurs heures après le balayage. Le contact avec l'air est ainsi évité.

La température au centre d'un pot de récupération a été mesurée au cours d'une expérience de torréfaction à 270 °C . Le résultat est présenté **Figure 34**. Lors du remplissage du pot (durant 1 h), la température augmente jusqu'à une température maximale de 94 °C , le thermocouple étant immergé dans la biomasse. Cette faible température traduit un fort refroidissement de la biomasse dans la partie non chauffée du cylindre. La diminution brutale de la température (à $t=29 \text{ min}$) correspond ensuite à l'arrêt du remplissage et au balayage à l'azote.

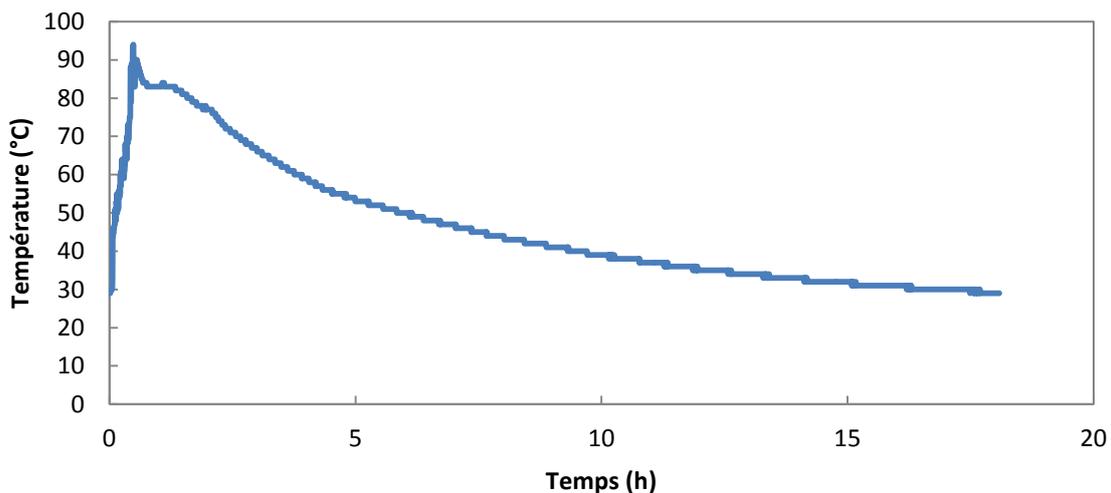


Figure 34 : Évolution de la température à l'intérieur d'un pot de récupération au cours du remplissage et du refroidissement.

Il apparaît également que le refroidissement jusqu'à la température ambiante nécessite une quinzaine d'heures. La pesée du pot plein n'est donc réalisée qu'après cette période. La

masse de bois torréfié m_{tor} est utilisée pour calculer la perte de masse sèche ML (ou le rendement massique sur sec η) en % :

$$ML = 100 - \eta = 100 - \frac{m_{tor}}{\dot{Q} \times t_{pr\grave{e}l\grave{e}vement}} \times \left(1 + \frac{H_s}{100}\right) \times 100 \quad \text{Équation 43}$$

II. La biomasse utilisée

Comme présenté dans le **Chapitre 1**, le comportement de la biomasse lors de la torréfaction est intimement lié à sa composition et à ses propriétés. Cette partie présente donc les critères de sélection de la biomasse utilisée pour cette étude puis les principales propriétés de cette biomasse.

II.1. Choix de la biomasse

Afin de pouvoir comparer les résultats avec la littérature, le choix s'est orienté vers des biomasses couramment utilisées. Il a donc été décidé d'utiliser des plaquettes de bois. De plus, des plaquettes de grande taille et présentant une forte dispersion granulométrique semblaient plus représentatives de la réalité industrielle.

Les trois biomasses dont l'injection dans le four tournant pilote a été testée sont présentées **Figure 35**.



Figure 35 : Les trois types de biomasses testées pour l'injection dans le four tournant pilote : a) mélange de résineux, b) pin maritime et c) hêtre.

Dans un premier temps, une biomasse fournie par une scierie Aveyronnaise (**Figure 35a**) a été choisie. Les espèces qui la composent sont le sapin, l'épicéa et le douglas. Ces espèces représentent la majorité des résineux disponibles sur le territoire français et sont donc un

matériau d'étude de choix. Cependant, l'hétérogénéité en tailles et en formes des plaquettes a posé des problèmes de blocage à la base de la trémie. La formation de ces voûtes est intervenue généralement à l'occasion d'un rétrécissement de la section de passage. Afin d'identifier le comportement des plaquettes en l'absence de rétrécissement, un tube lisse de diamètre identique à celui de la base de la trémie a été utilisé. Le résultat est présenté **Figure 36**. Des voûtes se forment même en l'absence de rétrécissement. Il apparaît ainsi qu'une modification de la trémie n'aurait pas résolu le problème. Seul un système de dessilage aurait pu favoriser le transport de ces plaquettes. La mise en place d'un tel système n'étant pas envisageable sur l'installation pilote, il a été décidé d'utiliser des plaquettes plus homogènes en taille.

Des plaquettes de pin maritime, produites en Ardèche, ont alors été testées (**Figure 35b**). Malgré une granulométrie plus uniforme et des tamisages successifs, le transport de ces plaquettes de la trémie vers le cylindre rotatif est resté impossible.



Figure 36 : Formation de voûtes dans un tube lisse.

Enfin, des plaquettes de hêtre de petites dimensions (**Figure 35c**), fournies par SPPS (Société de Participation Parisienne des Sciures, Frasne, France), ont été utilisées. Celles-ci s'écoulent facilement dans le système d'alimentation et les quelques voûtes qui se forment sont éliminées automatiquement par le système de régulation comme expliqué précédemment.

II.2. Propriétés de la biomasse d'étude

Les principales caractéristiques des plaquettes de hêtre sont présentées dans le **Tableau 10**.

Tableau 10 : Caractéristiques des plaquettes de hêtre utilisées pour les expériences.

Propriété	Valeur	Méthode de mesure
Longueur des particules	5 – 15 mm	Pied à coulisse / 200 particules
Largeur des particules	2 – 7 mm	Pied à coulisse / 200 particules
Epaisseur des particules	1 – 3 mm	Pied à coulisse / 200 particules
Humidité sur sec	10 – 12 %	NF EN 14774-1 : 2010-01
Angle de repos dynamique	42 °	Analyse d'images en four tournant
Masse volumique des particules	656 ± 30 kg/m ³	Pied à coulisse / pesée / 30 particules
Masse volumique apparente du lit	280 ± 10 kg/m ³	NF EN 15103 : 2010-03

Les dimensions des particules ont été déterminées par mesure au pied à coulisse avec une précision de 0,1 mm sur 200 plaquettes. Le détail des répartitions des dimensions est présenté **Figure 37**.

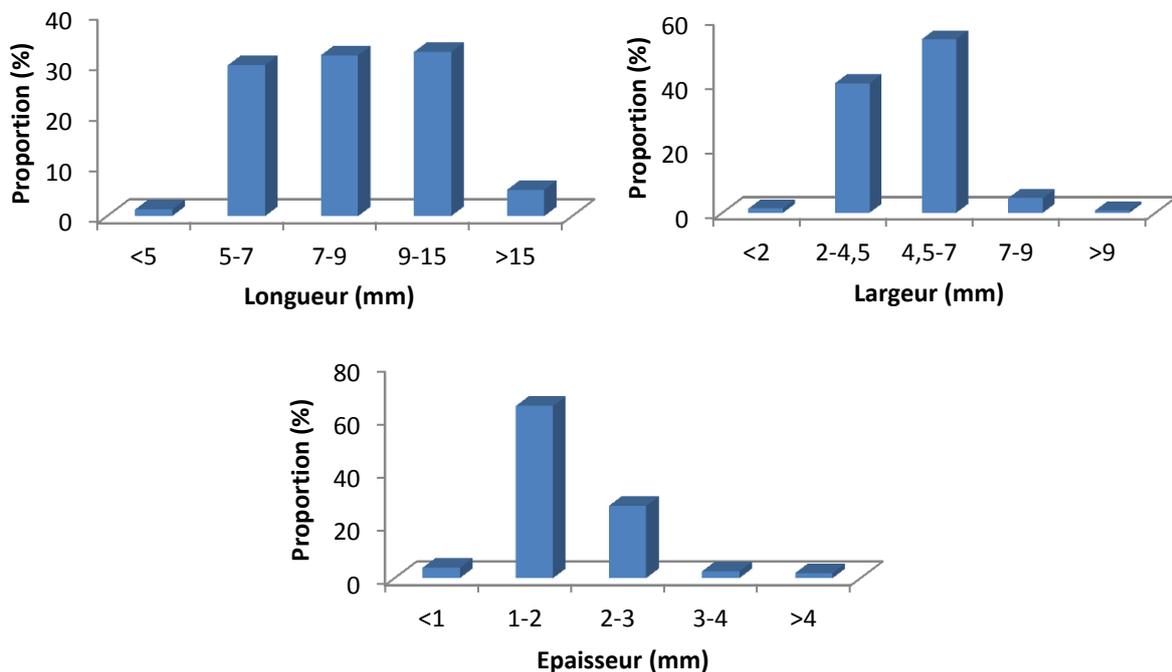


Figure 37 : Répartition des dimensions des plaquettes de hêtre.

Chez le producteur, ces plaquettes sont calibrées et séchées puis livrées en sacs de 25 kg. Ce traitement permet l'obtention d'un produit homogène comme cela est visible sur la

répartition des tailles de particules. Il apparaît que la plus forte dispersion concerne la longueur des particules avec des tailles variant entre 5 et 15 mm.

L'angle de repos dynamique β a été mesuré par analyse d'images lors d'essais d'écoulement en four tournant : des photographies du lit de plaquettes en mouvement ont été réalisées puis traitées avec le logiciel ImageJ® (National Institutes of Health, États-Unis).

Pour mesurer la masse volumique des particules ρ_{part} , celles-ci ont été poncées (pour obtenir des parallélépipèdes), dépoussiérées puis mesurées dans les 3 dimensions et pesées. La forte incertitude sur la valeur obtenue provient du fait que ce protocole est difficile à appliquer à des particules de petite taille. La connaissance de la masse volumique apparente du lit ρ_{lit} permet ensuite de calculer la porosité du lit ε_{lit} suivant l'**Équation 44**.

$$\varepsilon_{lit} = 1 - \frac{\rho_{lit}}{\rho_{part}} \approx 0,6 \quad \text{Équation 44}$$

Ces caractéristiques seront utilisées lors de la modélisation du procédé de torréfaction.

III. Évaluation du dispositif

Dans cette partie, des essais de torréfaction en four tournant seront présentés avec l'objectif d'évaluer les points faibles et les points forts de l'installation.

III.1. Stabilité du traitement

Lors des essais de torréfaction en four tournant, il a été décidé de travailler avec des profils de température isothermes : la même consigne est appliquée aux 5 zones de chauffe. L'évolution de la température de la coquille chauffante au niveau de ces 5 zones est présentée **Figure 38**.

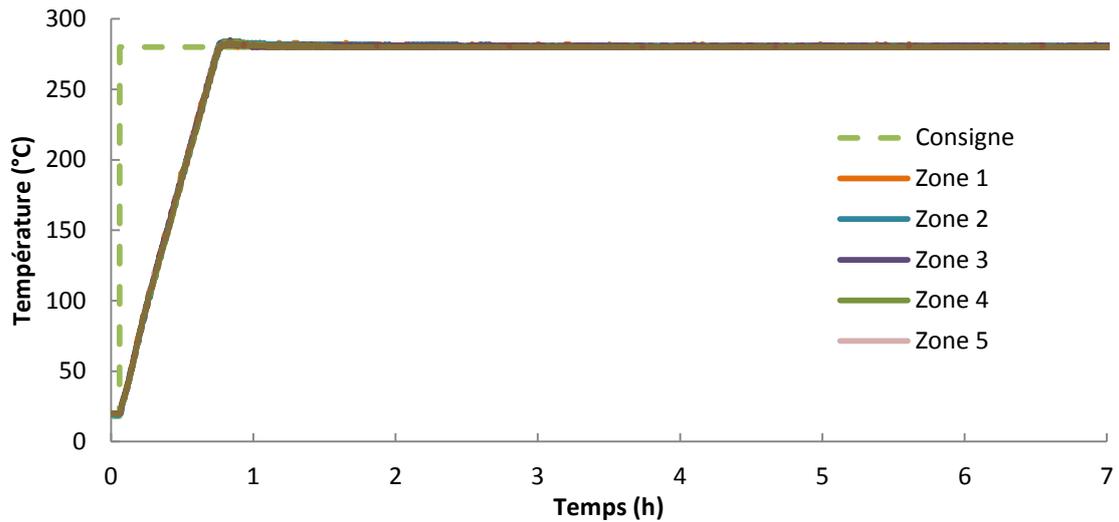


Figure 38 : Évolution de la température de coquille des différentes zones au cours d'un essai à 280 °C, avec $\bar{t}_s=69$ min et $H=9,8$ %.

Lorsque la chauffe est activée, La vitesse de montée en température de la coquille est de 360 °C/h. La température des zones est ensuite stabilisée à la température de consigne à 2 °C près. Pour plus de lisibilité, seule la température de consigne sera représentée dans la suite de ces travaux.

Les températures mesurées au sein du lit de particules sont présentées **Figure 39**. Les thermocouples (TC) correspondent à ceux représentés **Figure 28a** numérotés de 1 à 6 de l'entrée vers la sortie. Il apparait clairement que la température mesurée par les thermocouples 1, 2 et 3 est faible (inférieure à 100 °C), ce qui s'explique par leurs positions en dehors des zones de chauffe.

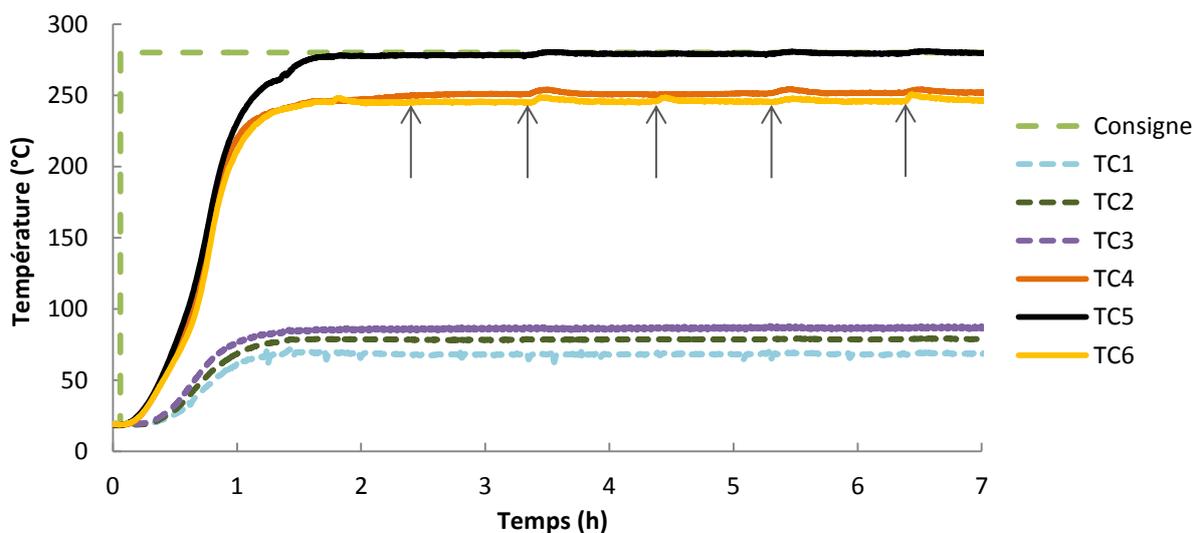


Figure 39 : Évolution de la température du lit au cours d'un essai long à 280 °C, avec $\bar{t}_s=69$ min et $H=9,8$ %.

Les thermocouples 4, 5 et 6 sont disposés dans les zones de chauffe et les températures mesurées sont stables. Les flèches signalent les phases de rechargement de la trémie. Des perturbations sont observées après ces interventions. L'une des hypothèses pour expliquer ces hausses de température serait la réaction exothermique entre l'oxygène (contenu dans l'air admis lors du remplissage) et le bois torréfié.

Mis à part ces légères perturbations, les températures restent stables. La perte de masse a été mesurée sur 4 prélèvements de 1 h chacun. Le résultat est de $15,5 \pm 1,1 \%$.

III.2. Répétabilité des essais

L'**essai long**, présenté précédemment, a été répété à deux mois d'intervalle dans les mêmes conditions en ne réalisant qu'un seul prélèvement d'une heure une fois le régime permanent atteint. Ce nouvel essai est donc qualifié ici d'**essai court**. La perte de masse calculée à partir de ce prélèvement est de 16,4 %. Cette valeur se situe dans l'intervalle de confiance calculé lors de l'essai long, ce qui est très satisfaisant.

La température moyenne mesurée par les thermocouples dans la charge lors des deux essais a été calculée et est représentée **Figure 40**, en fonction de la distance à l'entrée du four.

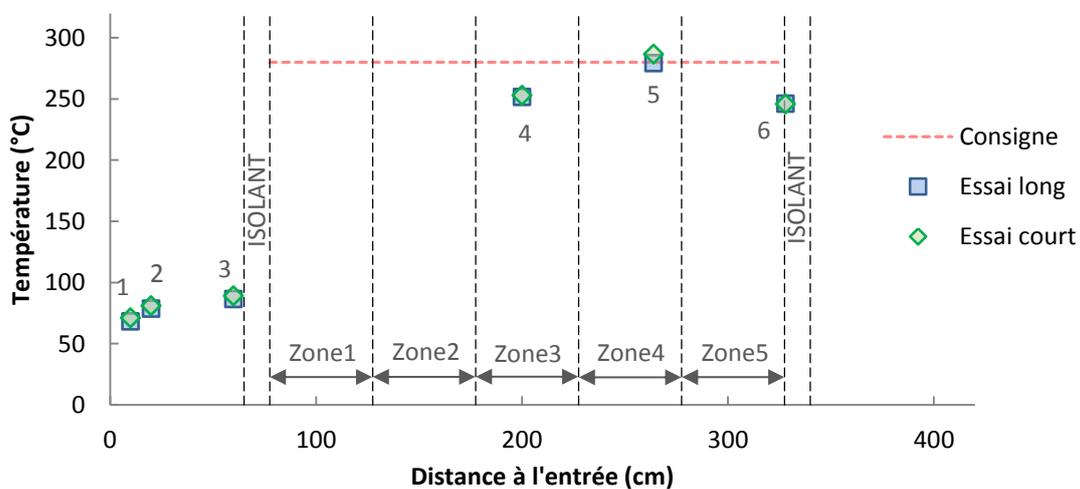


Figure 40 : Comparaison du profil de température le long du four mesuré lors de deux essais dans les mêmes conditions opératoires à deux mois d'intervalle.

Sur ce graphique, les traits verticaux en pointillés représentent les limites des zones isolées et des zones de chauffe. Les températures positionnées avant la première zone d'isolant sont mesurées par les thermocouples 1, 2 et 3. Leur position sur ce graphique est donc approximative. Par la suite, ces thermocouples ne seront plus représentés.

Par observation des valeurs enregistrées par les thermocouples 4, 5 et 6, il apparaît que les deux essais ont mené à des profils de température très similaires. Le décalage maximum, obtenu par le thermocouple 5, est de 7 °C. Ceci prouve donc que les essais de torréfaction menés en four tournant pilote présentent une bonne répétabilité.

IV. Conclusions

L'adaptation du four tournant pilote avait plusieurs objectifs. D'une part, il était nécessaire de rendre l'installation compatible avec le procédé de torréfaction de plaquettes de bois. Ceci a été permis par l'installation d'un système de balayage à l'azote, d'une vanne étanche en sortie du four et par la conception de nouveaux pots de récupération avec possibilité d'inertage. Ensuite, le contrôle de l'installation a été amélioré grâce à la mise en place d'un doseur pondéral et à l'implémentation d'une nouvelle interface de commande.

Le choix de la biomasse d'étude a été fortement conditionné par les capacités de l'installation. Les premiers essais ont été menés avec succès et montrent une bonne stabilité et répétabilité des expériences de torréfaction. L'obtention de tels résultats a été facilitée par l'établissement de protocoles détaillés des différentes phases de fonctionnement de l'installation.

Le principal point faible de ce pilote est sans nul doute le faible nombre de points de mesure de la température de la charge et de la phase gaz. En effet, seuls 3 thermocouples fournissent des informations fiables sur la température du lit de particules. La connaissance du profil de température n'est donc que parcellaire. Il faut également noter que la température mesurée dans le lit correspond à une température intermédiaire entre celle des plaquettes de bois et celle du gaz interstitiel. Enfin, la température et la composition de la phase gaz ne sont pas mesurées.

Il faut cependant noter que l'amélioration de ces problèmes de métrologie se heurte à la nécessité de conserver une installation étanche et à la difficulté que représente l'instrumentation d'un cylindre en rotation.

Chapitre 3 : Modélisation de la torréfaction en four tournant : validation des sous-modèles

Les phénomènes intervenant lors d'un traitement thermique de la biomasse ont été décrits au **Chapitre 1**. La modélisation du procédé de torréfaction en four tournant nécessite donc la prise en compte de l'ensemble de ces phénomènes et leur intégration dans un modèle global. Il est ici proposé de modéliser séparément le transport de la charge, les transferts thermiques, le séchage de la biomasse et les cinétiques de torréfaction. Ces quatre sous-modèles seront établis et validés expérimentalement avant d'être implémentés dans un modèle commun. Le modèle final, à une dimension suivant l'axe du four, a pour objectif de prédire l'évolution de la température des plaquettes de bois et leur perte de masse lors de la torréfaction en régime stationnaire.

I. Modélisation du transport de la charge

Comme expliqué précédemment (**Chapitre 1**, §III.2.3), les principales fonctions d'un modèle de transport sont de prédire le temps de séjour du matériau dans le cylindre et les surfaces d'échange entre les différentes phases.

I.1. Expériences de Distribution des Temps de Séjour

La majorité des modèles d'écoulement en four tournant sont basés sur l'hypothèse d'un écoulement piston dans le cylindre. Cette hypothèse doit être vérifiée en réalisant des expériences de distribution des temps de séjour. Ces expériences permettront également d'évaluer l'influence des paramètres opératoires sur le temps de séjour moyen et le taux de remplissage.

I.1.1. Protocole expérimental

Mesures de DTS

Les expériences de DTS sont réalisées à **température ambiante** car cela facilite la sélection du traceur qui ne doit pas résister aux conditions de la torréfaction. De plus, la conservation d'une atmosphère inerte n'est pas compatible avec un échantillonnage fréquent. Pour les expériences de DTS, l'extrémité du four est donc ouverte, ce qui permet un contrôle visuel du comportement du lit ; une balance est placée sous le caisson de sortie pour mesurer le débit en continu.

Le type de traceur doit ensuite être sélectionné. L'étude d'un solide divisé comme les plaquettes de bois présente l'avantage de permettre l'utilisation de traceurs colorés peu

coûteux et faciles à produire. Dans cette étude, deux traceurs différents présentés **Figure 41a** sont utilisés. L'un est teinté avec du **rouge Congo** et l'autre avec de l'**encre bleue**.

Dans les deux cas, les plaquettes sont tout d'abord séchées à l'étuve, puis immergées dans un mélange d'eau et de colorant pendant deux heures. Elles sont ensuite séparées du liquide excédentaire puis séchées à l'étuve. Enfin, leur stockage pendant quelques semaines dans la même enceinte que la biomasse brute permet de les ramener à la même humidité d'équilibre.

Étant donné les faibles quantités de colorants utilisées (quelques grammes), il est supposé que ceux-ci ne modifient pas la composition ni l'état de surface des plaquettes de bois.

Le principe de l'expérience de DTS est représenté **Figure 41b**.

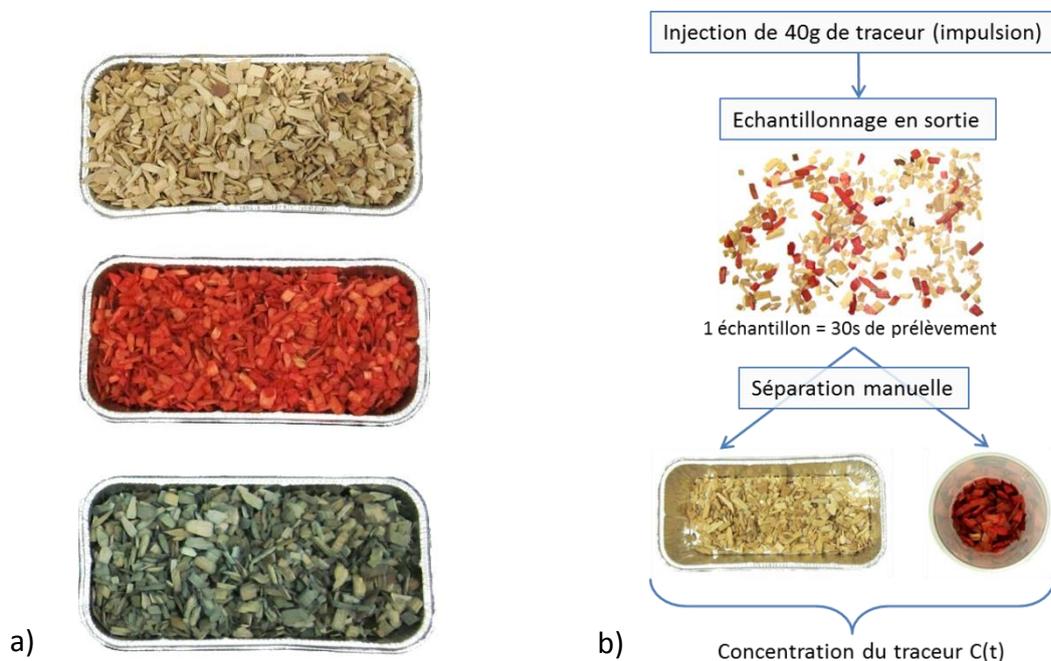


Figure 41 : a) Présentation des traceurs colorés et b) schéma de principe de la DTS.

Les paramètres opératoires du cylindre (inclinaison, vitesse de rotation et débit d'alimentation) sont réglés et l'alimentation en plaquettes de bois débute. Il a été vérifié visuellement que le comportement du lit de plaquettes est du type rolling, ce qui est indispensable pour l'obtention d'un mélange efficace. Une fois le régime permanent atteint, 40 g de chaque traceur sont injectés successivement à la base de la trémie au temps $t=0$. Ceci correspond à des injections de type **impulsion** choisies afin de limiter les quantités de traceurs utilisées.

En sortie de cylindre, les plaquettes de bois sont échantillonnées toutes les 30 s pendant 70 min (toute la masse est conservée). Un tri manuel est ensuite réalisé pour séparer les traceurs du bois brut. La pesée des traceurs et des particules non colorées permet alors le calcul de la concentration en traceur de chaque échantillon.

Pour l'ensemble des expériences, la masse de traceur récupérée atteint $99,8 \pm 0,4$ % de la masse initialement injectée.

Mesure du profil de chargement du cylindre

Une fois les traceurs récupérés, la rotation du cylindre et l'alimentation en biomasse sont stoppées simultanément et des photographies de l'intérieur du cylindre sont prises. La mise au point est réalisée pour avoir des images nettes de l'ensemble du cylindre. Un exemple est donné **Figure 42**.



Figure 42 : Photographie réalisée pour l'identification du profil de chargement du cylindre.

Des marqueurs colorés ont été fixés sur la grille à des positions connues le long de l'axe du cylindre. A chaque position, l'angle de charge θ est mesuré à l'aide du logiciel de **traitement d'images** ImageJ® (National Institutes of Health, USA). Cet angle est utilisé pour calculer le taux de remplissage local en supposant que la surface du lit est plane.

Ceci est une méthode originale de détermination du profil de chargement pour des cylindres dont la longueur rend difficile l'accès à ce type d'information. L'incertitude sur l'angle de charge est estimée à $\pm 3^\circ$ (estimation à partir de déterminations sur plusieurs photographies).

Enfin, le cylindre est entièrement vidé et la masse de bois retenue est pesée afin de calculer le temps de passage et le taux de remplissage moyen.

I.1.2. Paramètres opératoires étudiés

Les paramètres opératoires, dont l'influence sur l'écoulement des plaquettes de bois est étudiée, sont l'inclinaison, la vitesse de rotation et le débit d'alimentation. Le débit de gaz est négligé car il est très faible (l'azote n'est pas utilisé comme fluide caloporteur) et le cylindre n'est pas équipé de relevés.

Les gammes de variation choisies pour ces paramètres sont 1 à 2 ° pour l'inclinaison, 2 à 4 tr/min pour la vitesse de rotation et 4 à 8 kg/h pour le débit d'alimentation. Le domaine de fonctionnement de l'installation pilote ne sera donc pas exploré intégralement mais il a été choisi de rester dans les gammes couramment observées à l'échelle industrielle (1 à 3 ° et 1 à 5 tr/min d'après [128]).

Afin d'optimiser les expériences, un plan d'expériences factoriel complet a été défini. Les expériences sont représentées par les sommets du cube de la **Figure 43**.

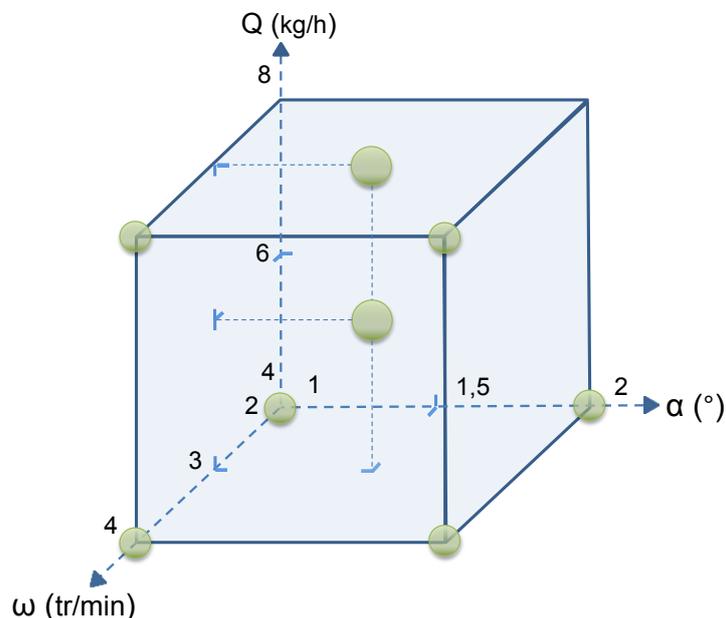


Figure 43 : Représentation spatiale des jeux de paramètres expérimentaux étudiés (les points verts représentent les essais réalisés).

Cependant, les deux essais à fort débit (8 kg/h) et faible vitesse de rotation (2 tr/min) se sont avérés irréalisables car ils mènent à un taux de remplissage supérieur à la capacité du four tournant pilote. Ces deux points ont donc été remplacés par un point au centre du cube et un autre au centre de la face supérieure du cube.

Même si les lois établies pour l'exploitation des plans d'expériences ne seront pas utilisées dans la suite de ces travaux, ce schéma expérimental a pour objectif de fournir un maximum d'informations avec un nombre restreint d'expériences.

I.2. Résultats

I.2.1. Caractérisation de l'écoulement et influence des paramètres opératoires

Pour chaque jeu de paramètres expérimentaux, deux courbes de DTS sont obtenues : une pour le traceur bleu et une pour le traceur rouge.

La **Figure 44** présente les courbes obtenues avec les deux traceurs dans différentes conditions opératoires.

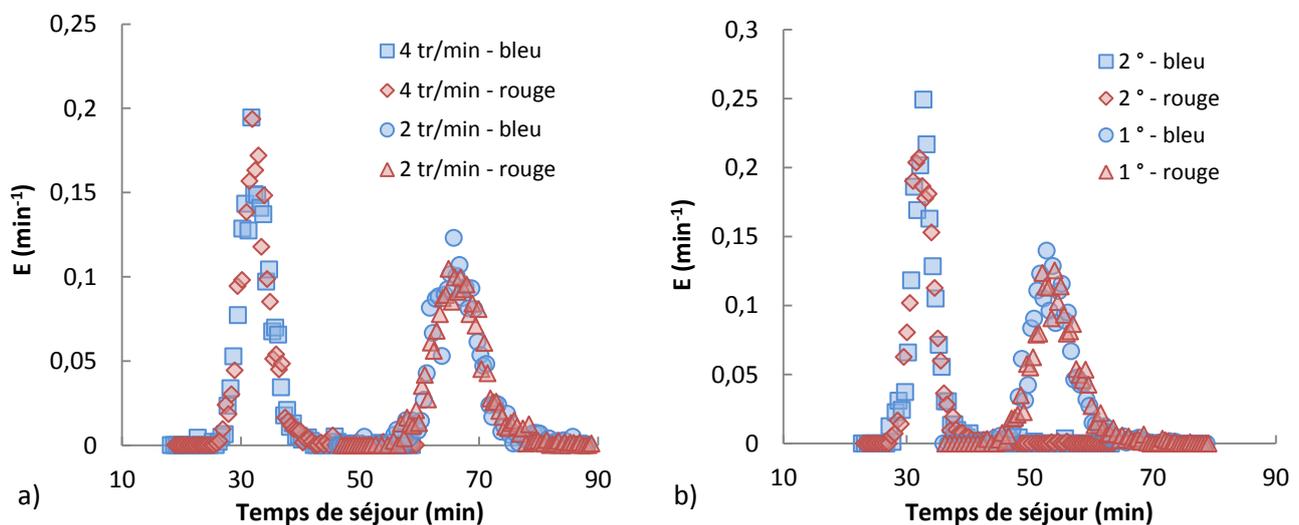


Figure 44 : Courbes de DTS obtenues pour les deux traceurs. Paramètres opératoires : a) $\alpha=2^\circ$; ω =variable ; $Q=4$ kg/h et b) α =variable ; $\omega=4$ tr/min ; $Q=8$ kg/h.

Les courbes de DTS se superposent, ce qui tend à prouver la répétabilité des expériences et l'absence d'influence du type de traceur.

L'influence des deux principaux paramètres opératoires – vitesse de rotation et inclinaison – est également observée sur cette figure. Une diminution de la vitesse de rotation (**Figure 44a**) augmente le temps de séjour des particules dans le cylindre. L'étalement de la courbe augmente également, ce qui traduit une dispersion plus importante des temps de séjour. Une tendance similaire est observée lors d'une diminution de l'inclinaison (**Figure 44b**). Ces résultats sont en accord avec ceux relevés dans la littérature.

Le **Tableau 11** récapitule les principaux résultats expérimentaux (taux de remplissage moyen H , temps de passage τ , temps de séjour moyen \bar{t}_s et écart-type de la distribution σ) obtenus pour l'ensemble des essais. Ces termes ont été définis au **Chapitre 1** (§III.2.3 et §III.3.1).

Tableau 11 : Résultats expérimentaux des essais de DTS et principaux résultats des modèles classiques.

Paramètres des essais				Résultats expérimentaux				Modèles classiques		
Essai	α (°)	ω (rpm)	Q (kg/h)	H (%)	τ (min)	\bar{t}_s (min)	σ (min)	J	Pe	D_{ax} ($\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$)
DTS1	1,5	3	8	18,1	55,4	55,9	4,1	162	525	1,0
DTS2	2	4	8	10,6	32,3	33,0	2,6	172	629	1,4
DTS3	2	4	4	5,2	31,8	32,7	2,9	171	361	2,5
DTS4	2	2	4	10,8	65,9	66,7	4,4	159	583	0,8
DTS5	1	4	4	8,8	53,6	54,6	4,2	164	422	1,3
DTS6	1	4	8	16,6	50,8	54,3	3,8	163	497	1,1
DTS7	1	2	4	17,9	109,4	109,4	8,4	144	411	0,7
DTS8	1,5	3	6	13,0	52,9	54,4	4,0	163	645	0,8

Les valeurs confirment bien les observations graphiques. De plus, il apparaît que l'écart-type augmente linéairement avec le temps de séjour moyen. Cette observation est illustrée **Figure 45**.

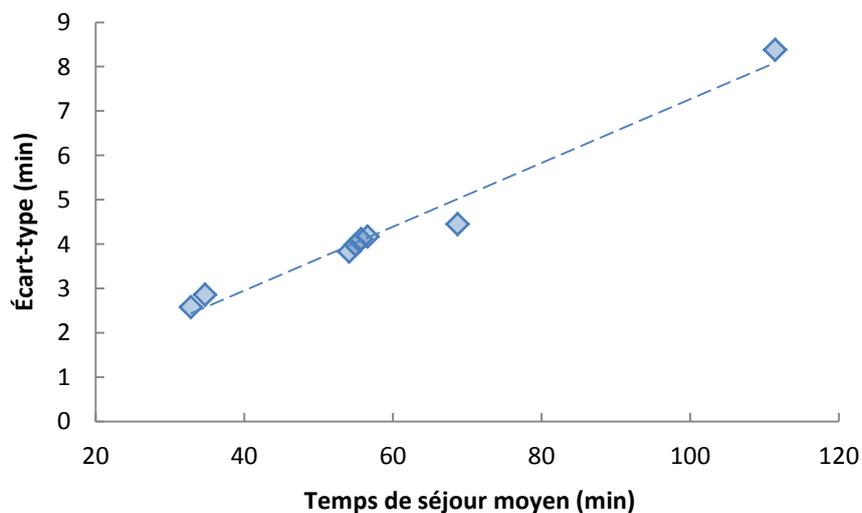


Figure 45 : Relation entre l'écart-type des DTS et le temps de séjour moyen.

La comparaison des essais DTS2 et DTS3, et des essais DTS5 et DTS6 montre que le débit d'alimentation en solide n'a pas d'influence significative sur la distribution des temps de séjour. En effet, malgré un rapport 2 entre les débits de ces deux essais, les temps de séjour moyens et les écarts-types sont sensiblement équivalents. De ce fait, le débit d'alimentation a un fort impact sur le taux de remplissage moyen. Le fait que les taux de remplissage

restent faibles (inférieurs à 20 %) peut être attribué à l'absence de diaphragme en sortie du cylindre.

Les valeurs de la fonction de distribution des temps de séjour de tous ces essais ont été adimensionnalisées. Les résultats sont présentés **Figure 46**.

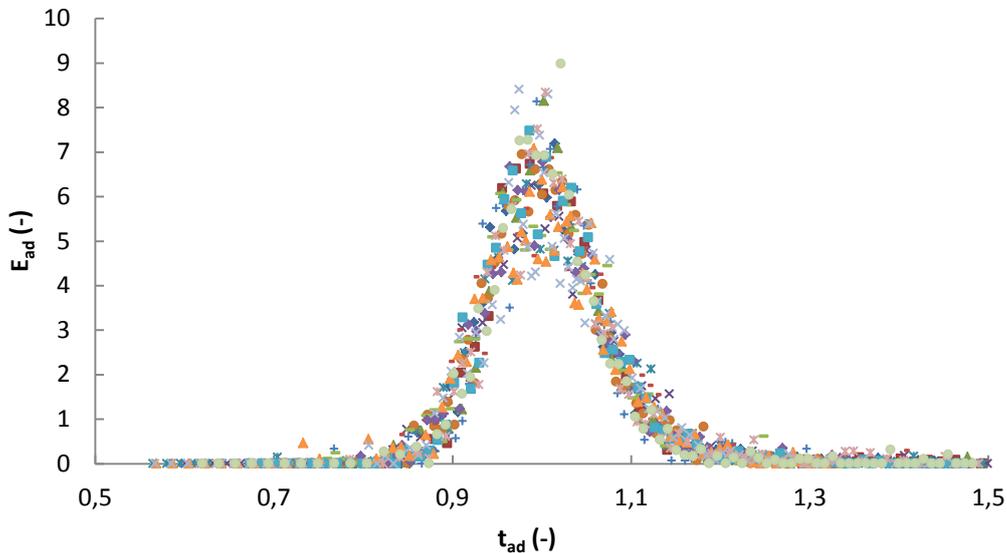


Figure 46 : Représentation graphique des fonctions de distribution des temps de séjour adimensionnalisées pour l'ensemble des essais.

Toutes les courbes sont proches et parfaitement symétriques. Ceci met en évidence que l'écoulement est régi par les mêmes mécanismes quels que soient les paramètres opératoires, mais également qu'il n'y a pas de défaut d'écoulement dans le cylindre.

Ceci est confirmé par la comparaison du temps de passage et du temps de séjour moyen : l'écart moyen entre ces deux valeurs sur l'ensemble des essais est de 2,3 %.

Ces observations s'avèrent primordiales pour l'obtention d'un traitement homogène des particules lors de la torréfaction.

I.2.2. Ajustement des modèles classiques de DTS

Les modèles d'écoulement piston avec dispersion axiale et de mélangeurs en cascade ont fait l'objet d'une procédure d'ajustement. Les fonctions représentant l'écart entre ces modèles et les résultats expérimentaux sont présentées **Équation 45** et **Équation 46**.

$$f_p = \sum_{i=1}^n \left(E(t_i) - E_p(t_i) \right)^2 \quad \text{Équation 45}$$

$$f_m = \sum_{i=1}^n (E(t_i) - E_m(t_i))^2 \quad \text{Équation 46}$$

Où n est le nombre de points expérimentaux et E la fonction de distribution des temps de séjour expérimentale. E_p et E_m ont été définis **Équation 16** et **Équation 17** respectivement.

Chaque modèle possède un paramètre d'ajustement : le nombre de Péclet Pe pour l'écoulement piston avec dispersion axiale et le nombre de mélangeurs en cascade J pour les mélangeurs en cascade. Ces paramètres ont été déterminés pour chaque jeu de conditions opératoires avec l'objectif de minimiser les fonctions f_p et f_m .

Les résultats de ces ajustements sont illustrés **Figure 47** pour deux cas extrêmes : temps de séjour faibles (Essai DTS3) et temps de séjour élevés (Essai DTS7). Les deux modèles sont donc pertinents pour représenter la distribution des temps de séjour des plaquettes de bois dans le four tournant. Cependant, il faut noter que lorsque les temps de séjours sont élevés, le modèle de mélangeurs en cascade sous-estime l'amplitude de la courbe de DTS. Même si ce décalage reste faible, le modèle de dispersion axiale semble plus adapté quels que soient les temps de séjour considérés.

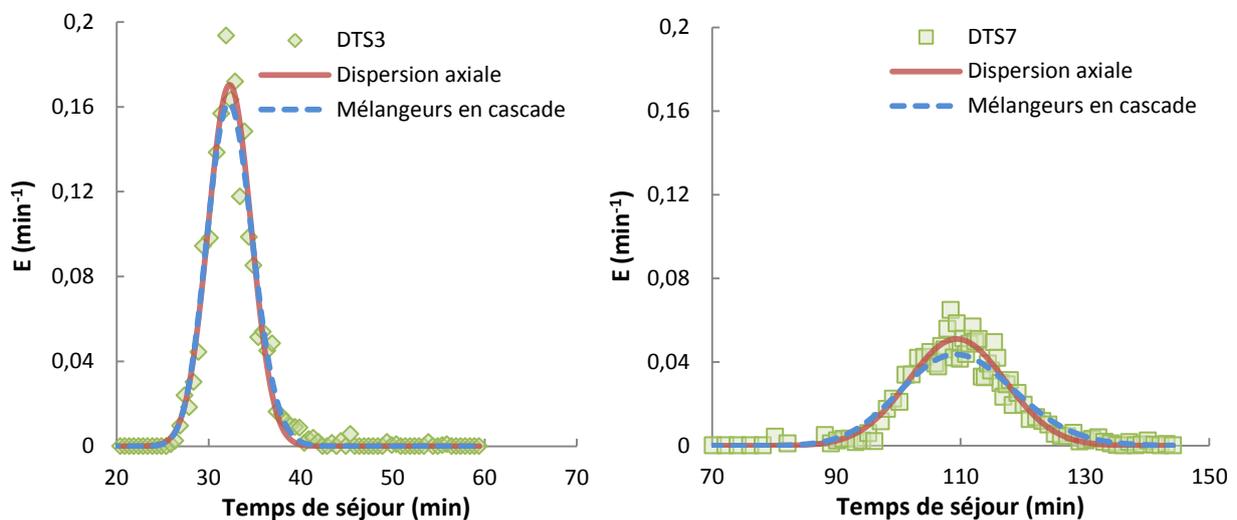


Figure 47 : Résultats de la procédure d'ajustement des modèles de Dispersion axiale et de Mélangeurs en cascade pour un essai à faibles temps de séjour (DTS3) et un essai à temps de séjour élevés (DTS7).

Les paramètres optimaux obtenus lors de l'ajustement de ces modèles sont présentés dans le **Tableau 11**. Comme attendu, Pe et J sont élevés (supérieurs à 50 et 25 respectivement) pour tous les essais. Ceci confirme que la dispersion axiale dans le four tournant est faible. Il faut également noter que l'égalité $Pe=2J$ couramment observée [174,175] n'est pas

vérifiée. Ceci est dû au choix d'une méthode de détermination des paramètres par ajustement et non par application des formules théoriques (**Équation 18** et **Équation 19** du **Chapitre 1**).

Bien qu'il soit difficile de comparer les valeurs obtenues à celles de la littérature, certaines tendances peuvent être observées. Tout d'abord, il faut noter que le nombre Pe est fortement dépendant du débit d'alimentation ce qui rend son exploitation difficile. Par contre, le calcul du coefficient de dispersion axiale D_{ax} permet la comparaison avec les travaux de Sherritt *et al.* [140]. Ils ont montré que D_{ax} augmente quand la vitesse de rotation augmente ou quand le taux de remplissage diminue, ce qui est en accord avec les résultats du **Tableau 11**.

Au **Chapitre 1**, il avait été signalé que le nombre J pouvait être utilisé pour calculer la longueur moyenne d'un mélangeur. Classiquement, cette longueur correspond à 10 % du diamètre du cylindre [140]. Ici, le calcul de cette longueur moyenne varie entre 2,4 et 2,9 cm pour un diamètre de cylindre de 21 cm. Ces résultats sont donc en accord avec la littérature.

En conclusion, il apparaît que, dans un premier temps, la dispersion axiale des plaquettes de bois le long du cylindre peut être négligée. Cependant, les observations n'ont jusqu'alors été effectuées qu'avec du bois brut. L'impact des modifications dues à la torréfaction sur l'écoulement des plaquettes n'est donc pas connu. Pour lever cette incertitude, des expériences de DTS ont été réalisées avec du bois torréfié afin de quantifier l'écart de comportement entre les matériaux traité et non-traité.

I.2.3. Comparaison bois brut – bois torréfié

Le bois utilisé pour cette comparaison a été torréfié dans le four tournant pilote avec une température de consigne de 270 °C, un temps de passage de 56 min et un taux de remplissage moyen de 16,4 %. La perte de masse sèche calculée sur 4 prélèvements d'une heure chacun est de $9,1 \pm 2,7$ %. Ce bois torréfié a ensuite été stocké dans la même enceinte que le bois brut jusqu'à stabilisation de sa masse. Son humidité d'équilibre est alors de 6 %, soit moitié moins élevée que celle de la biomasse brute.

Les particules ont des dimensions identiques à celles de la biomasse brute et les masses volumiques apparentes de ces deux matériaux sont similaires (270 ± 10 kg/m³ pour les plaquettes torréfiées contre 280 ± 10 kg/m³ pour les plaquettes de bois brut). Ceci peut

s'expliquer par l'effet conjugué de la perte de masse et du retrait volumique qui accompagnent la torréfaction. Enfin, l'angle de repos dynamique du bois torréfié est identique à celui du bois brut (42 °). L'humidité et l'état de surface des particules sont donc les seules propriétés pouvant modifier le comportement en écoulement des plaquettes torréfiées.

Deux expériences – essais DTS9 et DTS10 – ont été menées avec les plaquettes torréfiées. Les paramètres opératoires sont identiques à ceux de l'essai DTS3 et le protocole opératoire est le même que celui utilisé pour la biomasse brute. Le cylindre est alimenté par de la biomasse torréfiée et, une fois le régime permanent atteint, deux traceurs sont injectés à la base de la trémie :

- Pour l'essai DTS9, le premier traceur est composé de particules brutes colorées (au rouge Congo) et le second de particules torréfiées colorées (à l'éosine),
- Pour l'essai DTS10, les deux traceurs sont composés de particules brutes colorées (en rouge et en bleu).

Les courbes de DTS obtenues avec les deux traceurs de l'essai DTS9 sont comparées aux courbes de l'essai DTS3 sur la **Figure 48**.

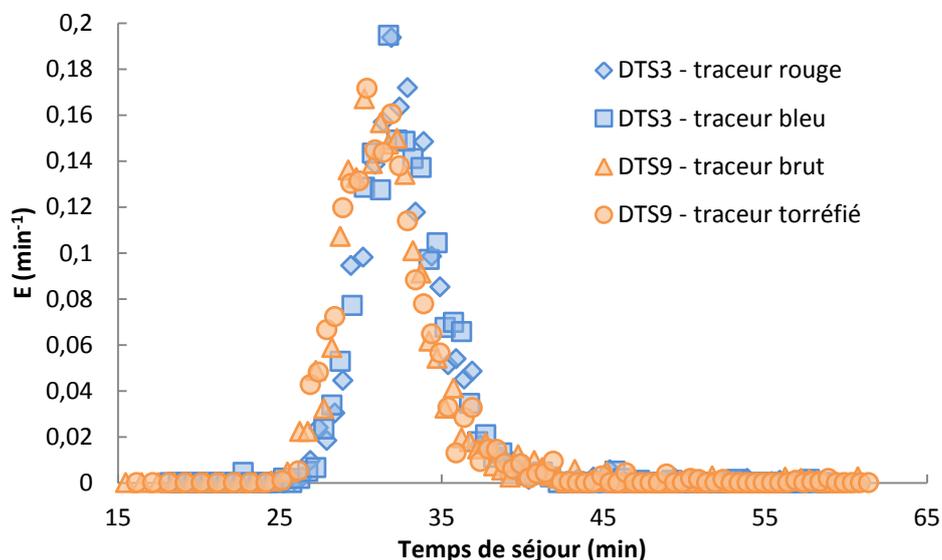


Figure 48 : Comparaison des courbes DTS du bois brut (essai DTS3) et du bois torréfié (essai DTS9) obtenues avec différents traceurs.

Tout d'abord, dans le cas de l'essai DTS9, la nature du traceur n'influence pas le résultat. De plus, les courbes obtenues sont très proches de celles de l'essai DTS3 réalisé avec du bois brut : seul un léger décalage est visible. Afin d'évaluer plus précisément l'influence de la torréfaction sur l'écoulement, les résultats des trois essais sont résumés dans le **Tableau 12**.

Tableau 12 : Comparaison des résultats de DTS avec du bois brut et du bois torréfié.

Essai	Biomasse	Traceur	H (%)	τ (min)	\bar{t}_s (min)	σ (min)
DTS3	Brute	Particules rouges	5,2	31,8	32,7	2,9
		Particules bleues			32,7	2,9
DTS9	Torréfiée	Particules rouges	5,2	30,9	31,2	3,6
		Particules torréfiées			31,1	3,4
DTS10	Torréfiée	Particules rouges	5,3	31,1	31,5	3,2
		Particules bleues			31,6	3,2

La comparaison des essais DTS9 et DTS10 démontre la bonne reproductibilité des essais. De plus, les résultats obtenus pour ces deux essais en termes de taux de remplissage, de temps de passage, de temps de séjour moyen et d'écart-type ne sont pas significativement différents de ceux obtenus lors de l'essai DTS3.

Il peut donc être conclu de ces observations que la torréfaction n'affecte pas les propriétés d'écoulement des plaquettes de bois dans le four tournant.

I.2.4. Mise en évidence de phénomènes de ségrégation

Les expériences de DTS ont également permis l'étude de l'influence de la taille des particules. En effet, lors du tri manuel des échantillons en sortie du cylindre, les particules composant chaque échantillon de traceur ont été comptées. En divisant la masse totale de ces particules par leur nombre, une **masse moyenne par particule** peut être calculée. La **Figure 49** présente l'évolution de cette masse moyenne en fonction du temps de séjour pour deux essais représentatifs de l'ensemble des expériences.

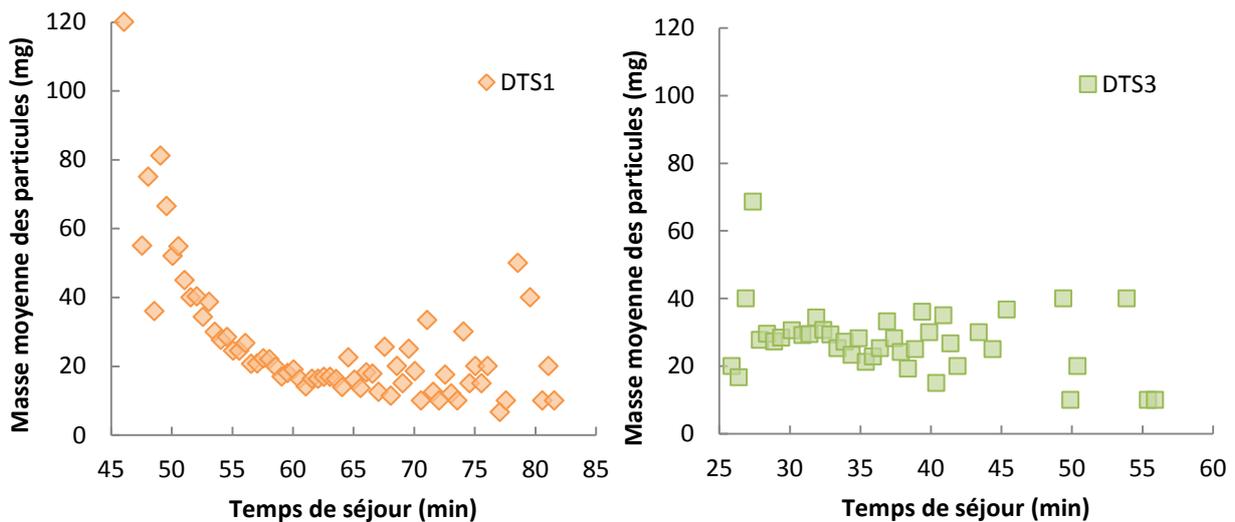


Figure 49 : Évolution de la masse moyenne des particules avec le temps de séjour pour deux essais.

L'essai **DTS1** est représentatif des essais ayant un **fort taux de remplissage**. Il est notable que les particules de grande taille atteignent la sortie du cylindre avant les petites. Il y a ainsi une diminution de la masse moyenne des particules collectées à la sortie du cylindre pour $45 < t_s < 65$ min. Au-delà de 65 min, les mesures sont bruitées car les échantillons sont composés d'un faible nombre de particules, ce qui ne permet pas l'obtention d'une masse moyenne représentative.

L'essai **DTS3** est représentatif des essais à **faible taux de remplissage** : aucune tendance n'est mise en évidence. Les faibles taux de remplissage seraient donc moins propices aux phénomènes de ségrégation.

Les facteurs influençant la ségrégation, présentés au **Chapitre 1**, n'ont pas pu être identifiés ici. Cependant, un moyen simple d'identifier ce phénomène a été proposé. Enfin, il faut noter que, contrairement aux travaux disponibles dans la littérature menés généralement sur des mélanges binaires, le solide divisé utilisé ici est un milieu présentant une réelle dispersion granulométrique, plus proche des réalités industrielles.

I.3. Élaboration du modèle d'écoulement

L'écoulement des plaquettes de bois dans le four tournant vient d'être étudié expérimentalement et de nombreuses informations ont été collectées et analysées. Ces résultats peuvent désormais servir de base à la validation d'un modèle d'écoulement qui sera intégré dans le modèle de torréfaction en four tournant.

I.3.1. Modifications et méthode d'ajustement

Le modèle de Saeman, exposé **Équation 10**, a été retenu. Il se présente sous la forme d'une équation différentielle du premier ordre. Le profil de chargement du cylindre est calculé en résolvant cette équation. Le taux de remplissage moyen peut alors être déduit par intégration du profil de chargement. Connaissant le débit d'alimentation, le temps de passage (assimilé au temps de séjour moyen) peut être calculé.

La **Figure 50** propose une comparaison entre les temps de séjour et taux de remplissage moyens mesurés expérimentalement et ceux prédits par le modèle original de Saeman. Les capacités prédictives du modèle apparaissent insuffisantes car l'écart modèle-expérience atteint 20 % dans le cas du temps de séjour et 25 % dans le cas du taux de remplissage.

Parmi les paramètres pris en compte dans le modèle, l'angle de repos dynamique est celui dont l'incertitude de mesure est la plus élevée. Une étude de sensibilité a permis de montrer que les résultats du modèle sont assez peu sensibles à ce paramètre qui ne peut donc expliquer à lui seul les écarts observés.

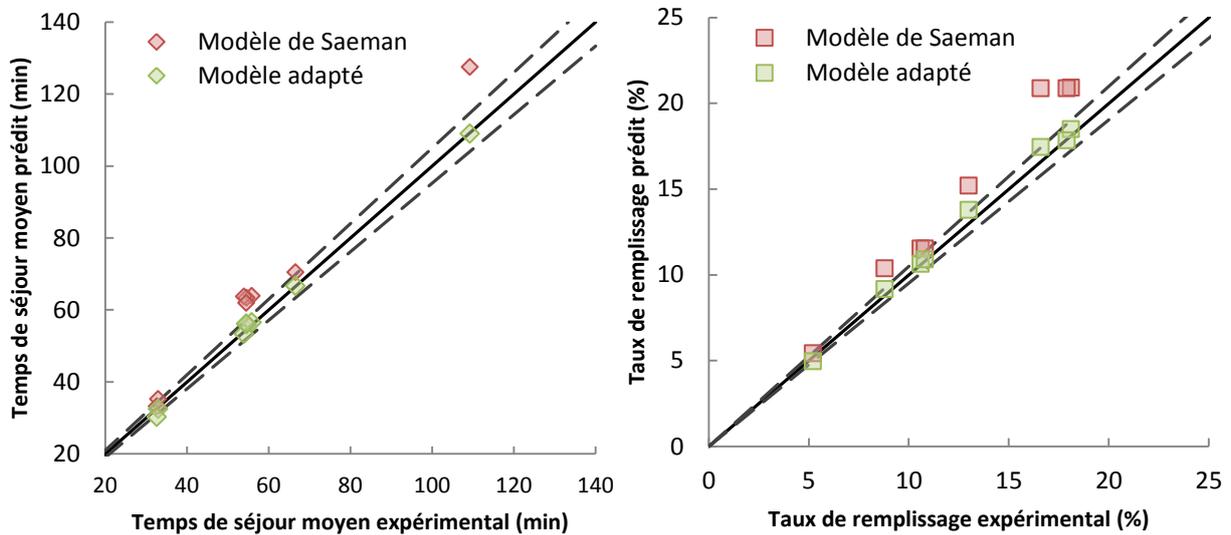


Figure 50 : Comparaison du modèle de Saeman et du modèle adapté avec les résultats expérimentaux (les lignes en pointillés représentent une déviation de 5 %).

Afin d'adapter ce modèle aux plaquettes de bois, 3 coefficients ont été ajoutés au modèle original. Ces coefficients – C_Q , C_α et C_ω – permettent d'ajuster les effets respectifs du débit d'alimentation, de l'inclinaison et de la vitesse de rotation. L'ajout de ces paramètres a pour objectif d'améliorer la réponse du modèle aux variations des paramètres de fonctionnement du cylindre. Le modèle proposé prend la forme suivante :

$$\frac{dh(z)}{dz} = \frac{3\dot{Q}_v C_Q \tan(\beta)}{4\pi\omega C_\omega R^3} \left(\frac{2h}{R} - \frac{h^2}{R^2} \right)^{-3/2} - \frac{\tan^{C_\alpha}(\alpha)}{\cos(\beta)} \quad \text{Équation 47}$$

Ces paramètres ont été déterminés par régression non linéaire pour minimiser l'écart entre le temps de séjour prédit et le temps de séjour expérimental pour l'ensemble des essais menés sur le bois brut.

I.3.2. Résultats de l'ajustement

Les valeurs optimisées de C_Q , C_α et C_ω sont 1,09, 1,19 et 1,11 respectivement. Le temps de séjour et le taux de remplissage moyens calculés avec ces valeurs sont représentés **Figure 50**. Les résultats numériques présentent une déviation inférieure à 5 % avec les

résultats expérimentaux. L'amélioration est particulièrement importante pour les temps de séjour et les taux de remplissage élevés.

La **Figure 51** permet d'évaluer l'apport des modifications sur la prédiction du profil de chargement le long du cylindre. Les résultats sont exprimés en termes de taux de remplissage local.

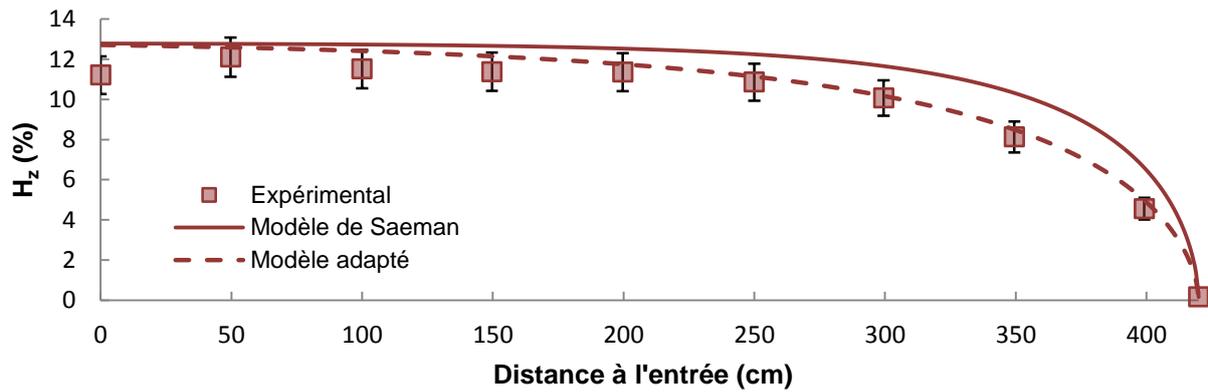


Figure 51 : Profils de chargement calculés par le modèle de Saeman et le modèle ajusté et comparaison avec les résultats expérimentaux pour l'essai DTS2.

Les barres d'erreur ont été calculées en considérant une mesure de l'angle de charge à $\pm 3^\circ$ près. L'écart entre le modèle adapté et les relevés expérimentaux est inférieur aux incertitudes de mesure, ce qui n'est pas le cas du modèle original. L'amélioration des capacités prédictives est particulièrement importante à la sortie du cylindre. En effet, dans cette zone, le modèle de Saeman prédit une diminution du taux de remplissage plus soudaine qu'elle ne l'est en réalité.

La **Figure 52** présente les résultats pour plusieurs essais avec des taux de remplissage variés.

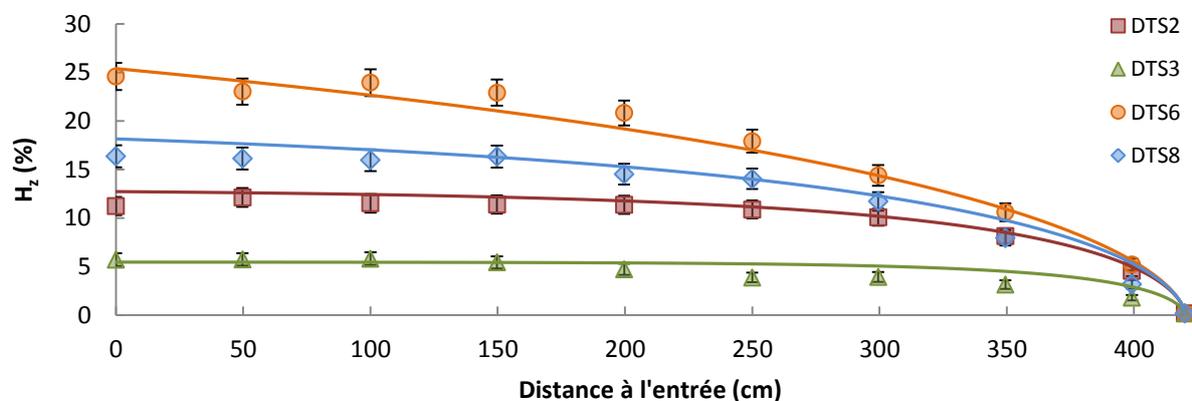


Figure 52 : Comparaison entre les résultats expérimentaux et le modèle adapté pour différents taux de remplissage.

Le modèle proposé représente bien les valeurs expérimentales, même si un léger décalage subsiste au niveau de la sortie du cylindre pour les taux de remplissage faibles (essai DTS3 par exemple).

I.4. Conclusions sur le modèle de transport

Les expériences de Distribution des Temps de Séjour ont montré que l'écoulement des plaquettes de bois dans le four tournant est assimilable à un écoulement piston avec faible dispersion axiale. La comparaison des résultats obtenus avec du bois brut et du bois torréfié n'a pas mis en évidence de différence significative entre les écoulements de ces deux matériaux. Un modèle unique a donc été développé pour représenter la progression de la charge le long du four tournant. Ce modèle, dérivé d'un modèle existant, prédit efficacement le temps de séjour et le taux de remplissage moyens en fonction des paramètres opératoires. Les profils de chargement du cylindre, déterminés par une méthode d'analyse d'images originale, ont également été comparés avec succès aux résultats du modèle. Enfin, des phénomènes de ségrégation ont été détectés lorsque le taux de remplissage du cylindre est élevé. Leur prise en compte dans le modèle pourrait faire l'objet de développements futurs.

II. Modélisation des transferts thermiques

Le modèle thermique a pour objectif de calculer les températures du lit de plaquettes de bois, de la phase gaz et de la paroi du cylindre. Des bilans énergétiques vont être réalisés sur ces différentes phases puis couplés avec le modèle de transport.

II.1. Hypothèses

Le modèle développé est un modèle à une seule dimension. Dans un volume de contrôle de longueur Δz , **chaque phase est donc supposée isotherme**. Ainsi, la température de la paroi T_p , la température de la phase gaz T_g et la température du solide T_s ne varient que suivant l'axe du four z . Une telle hypothèse implique donc que le mélange transversal de la charge soit efficace et qu'il n'y ait pas de phénomènes de ségrégation trop importants.

Les principaux transferts thermiques intervenant dans un four tournant ont été décrits au **Chapitre 1**. Cependant, aux flux représentés **Figure 25** viennent s'ajouter des termes propres au four tournant pilote étudié. En effet, le chauffage étant indirect, les termes d'apport/perte de chaleur à la paroi doivent être pris en compte :

- Au niveau des **zones chauffées** : un terme de convection ϕ_{pe}^{cv} représente l'échange entre l'air (situé entre la coquille et le cylindre) et la paroi externe du cylindre. Cet air est supposé être à la température de la coquille T_{coq} . Un terme de rayonnement ϕ_{coq}^r représente l'échange direct entre la coquille et la paroi du cylindre.
- Au niveau des **zones non chauffées** (entrée et sortie du cylindre) : le terme ϕ_{pe}^{cv} représente l'échange par convection entre la paroi du cylindre et l'air ambiant à la température T_{amb} . Le terme ϕ_{pertes}^r représente l'échange par rayonnement entre la paroi du cylindre et l'air ambiant.

La chauffe indirecte implique que l'apport de chaleur vers la charge est principalement réalisé par contact avec la paroi. De plus, aux températures de torréfaction (inférieures à 400 °C), le rayonnement est classiquement considéré comme limité. Il a donc été choisi de sélectionner les coefficients de convection et de rayonnement les plus couramment utilisés dans la littérature. Le choix du coefficient d'échange paroi-lit sera ensuite effectué afin de représenter au mieux les résultats expérimentaux. L'emploi d'une telle démarche est également motivé par le faible nombre de points de mesure de la température qui ne permettent pas l'acquisition de données suffisantes pour quantifier précisément l'ensemble des termes de transfert de chaleur.

II.2. Bilans thermiques sur les différentes phases

En **régime permanent**, l'équation de conservation de l'énergie pour une phase i s'écrit sous la forme suivante (l'établissement de cette expression est présenté dans l'**Annexe §II**) :

$$\rho_i C_{p,i} \left(\pm V_i \frac{dT_i}{dz} \right) = \frac{d}{dz} \left(\lambda_i \frac{dT_i}{dz} \right) + \frac{\Phi_i}{\Omega_i} + \dot{\theta}_i \quad \text{Équation 48}$$

Où V_i est la vitesse axiale de la phase en m/s (le signe \pm permet la prise en compte du sens de circulation), Φ_i la somme des flux échangés en W, Ω_i le volume de la phase en m^3 et $\dot{\theta}_i$ le terme source énergétique dû aux réactions chimiques et au séchage en W/m^3 .

Dans cette partie, seuls les transferts thermiques sont considérés donc $\dot{\theta}_i = 0$.

II.2.1. Bilan sur la phase solide

L'**Équation 49** décrit la conservation de l'énergie pour le lit de plaquettes de bois :

$$\rho_s C_{p,s} V_s \frac{dT_s}{dz} = \lambda_s \frac{d^2 T_s}{dz^2} + \frac{\Phi_s}{\Omega_s} \quad \text{Équation 49}$$

La conductivité thermique du lit de plaquettes est ici considérée comme une constante et la vitesse du solide est égale au rapport entre le débit volumique d'alimentation et la surface S_s calculée d'après l'Équation 4.

La résolution numérique de cette équation différentielle nécessite deux conditions aux limites présentées Équation 50, pour $z = 0$ (entrée du cylindre) et $z = L$ (sortie du cylindre).

$$\begin{cases} T_s(z = 0) = T_s^E = T_{amb} \\ \left. \frac{dT_s}{dz} \right|_{z=L} = 0 \end{cases} \quad \text{Équation 50}$$

La température du solide en entrée du four T_s^E est connue et son évolution en sortie du four est considérée comme négligeable.

La somme des flux échangés est explicitée Équation 51.

$$\Phi_s = \phi_s^r + h_{gs}^{cv} S_l (T_g - T_s) + h_{ps}^c S_{pc} (T_p - T_s) \quad \text{Équation 51}$$

Le terme de rayonnement ϕ_s^r a été présenté Équation 37 et le coefficient de convection h_{gs}^{cv} est celui proposé par Tscheng et Watkinson calculé par l'Équation 28.

II.2.2. Bilan sur la phase gaz

Le balayage d'azote est réalisé à co-courant. La conservation de l'énergie de la phase gaz s'écrit alors sous la forme suivante :

$$\rho_g C_{p,g} V_g \frac{dT_g}{dz} = \frac{\Phi_g}{\Omega_g} \quad \text{Équation 52}$$

La conduction dans la direction axiale est ici négligée, l'équation différentielle est donc du premier ordre et sa résolution ne nécessite qu'une seule condition aux limites :

$$T_g(z = 0) = T_g^E = T_{amb} \quad \text{Équation 53}$$

La somme des flux échangés avec le gaz prend la forme suivante :

$$\Phi_g = \phi_g^r + h_{gs}^{cv} S_l (T_s - T_g) + h_{gp}^{cv} S_{pd} (T_p - T_g) \quad \text{Équation 54}$$

Le rayonnement est calculé suivant la méthode des radiosités (Équation 38) et le coefficient de convection h_{gp}^{cv} est déterminé à partir du nombre de Nusselt de Seghir-Ouali *et al.* [163] présenté Équation 27.

II.2.3. Bilan sur la paroi

L'équation de conservation de l'énergie pour la paroi s'écrit :

$$-\lambda_p \frac{d^2 T_p}{dz^2} = \frac{\Phi_p}{\Omega_p} \quad \text{Équation 55}$$

Là encore, deux conditions aux limites sont nécessaires. Ne connaissant pas la température de la paroi aux extrémités du cylindre, le flux axial de chaleur y est supposé nul :

$$\begin{cases} \left. \frac{dT_p}{dz} \right|_{z=0} = 0 \\ \left. \frac{dT_p}{dz} \right|_{z=L} = 0 \end{cases} \quad \text{Équation 56}$$

Les flux échangés dépendent de la position suivant l'axe du cylindre :

- Au niveau des **zones chauffées** :

$$\Phi_p = \Phi_p^r + h_{ps}^c S_{pc} (T_s - T_p) + h_{gp}^{cv} S_{pd} (T_g - T_p) + h_{pe}^{cv} S_{pe} (T_{coq} - T_p) + \Phi_{coq}^r \quad \text{Équation 57}$$

- Au niveau des **zones non chauffées** :

$$\Phi_p = \Phi_p^r + h_{ps}^c S_{pc} (T_s - T_p) + h_{gp}^{cv} S_{pd} (T_g - T_p) + h_{pe}^{cv} S_{pe} (T_{amb} - T_p) + \Phi_{pertes}^r \quad \text{Équation 58}$$

Le coefficient de convection h_{pe}^{cv} utilisé est calculé à partir du nombre de Nusselt Nu_{pe} proposé par Sacadura [168] pour la convection naturelle sur un cylindre horizontal immobile :

$$\begin{cases} Nu_{pe} = 0,53Ra^{0,25} & \text{si } 10^4 < Ra < 10^9 \\ Nu_{pe} = 0,13Ra^{0,33} & \text{si } 10^9 < Ra < 10^{13} \end{cases} \quad \text{Équation 59}$$

L'influence de la rotation du cylindre est négligée étant donné les faibles vitesses mises en jeu.

Sacadura propose également une relation pour estimer le flux radiatif entre deux cylindres coaxiaux de longueurs infinies :

$$\Phi_{coq}^r = \frac{S_{pe} \sigma (T_{coq}^4 - T_p^4)}{\frac{1}{\varepsilon_p} + \frac{S_{pe}}{S_{coq}} \left(\frac{1}{\varepsilon_{coq}} - 1 \right)} \quad \text{Équation 60}$$

S_{pe} et S_{coq} sont la surface extérieure du cylindre et la surface intérieure de la coquille chauffante. En considérant une épaisseur de 2 mm pour le cylindre et un rayon interne de la

coquille $R_{coq}=0,147$ m, ces deux surfaces sont calculées suivant l'Équation 61 pour un volume de contrôle de longueur Δz .

$$\begin{cases} S_{pe} = 2\pi(R + 0,002)\Delta z \\ S_{coq} = 2\pi R_{coq}\Delta z \end{cases} \quad \text{Équation 61}$$

Enfin, le flux radiatif échangé entre le cylindre et l'ambiance peut être modélisé par la relation suivante [134,167]:

$$\Phi_{pertes}^r = \varepsilon_p S_{pe} \sigma (T_{amb}^4 - T_p^4) \quad \text{Équation 62}$$

Les équations-bilan ont ainsi été établies et les principaux coefficients de transfert ont été présentés. Le modèle peut désormais être implémenté et servir de base au choix d'un coefficient de transfert paroi-solide.

II.3. Implémentation du modèle

II.3.1. Résolution simultanée des équations de transferts thermiques et du modèle de transport

Les entrées du modèle sont :

- Le débit d'alimentation en solide,
- Le débit d'alimentation en azote,
- L'inclinaison du cylindre,
- La vitesse de rotation du cylindre,
- La température de consigne.

Le profil de la température de consigne utilisé comme entrée du modèle pour un essai à 280 °C est représenté **Figure 53**.

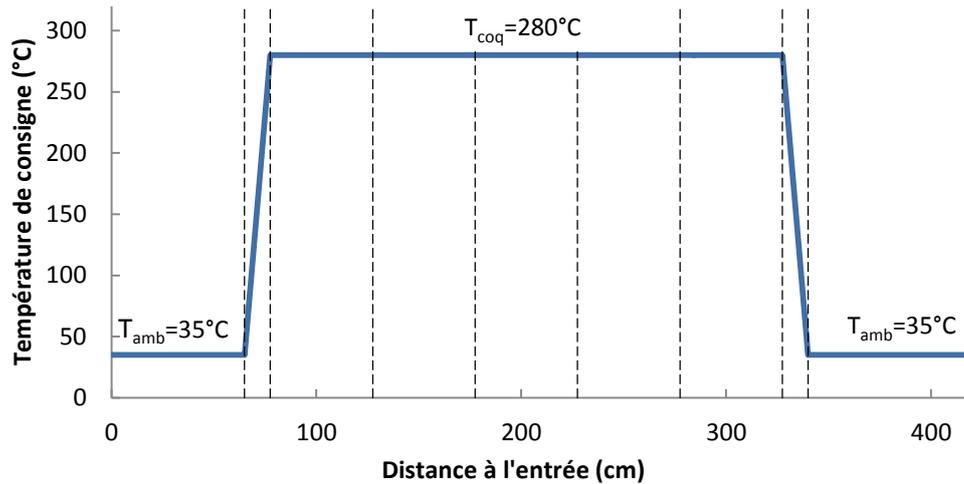


Figure 53 : Profil de température de consigne utilisé dans le modèle pour un essai à 280 °C.

Les échanges de la paroi du cylindre sont réalisés avec le milieu à température ambiante en dehors des zones de chauffe et avec la coquille à la température de consigne dans les zones de chauffe. Au niveau des zones isolées, la température est considérée comme évoluant linéairement entre T_{coq} et T_{amb} .

Le système d'équations différentielles à résoudre est le suivant :

$$\begin{cases} \frac{dh(z)}{dz} = \frac{3\dot{Q}_v^{CQ} \tan(\beta)}{4\pi\omega^{C\omega} R^3} \left(\frac{2h}{R} - \frac{h^2}{R^2} \right)^{-3/2} - \frac{\tan^{C\alpha}(\alpha)}{\cos(\beta)} \\ \rho_s C_{p,s} V_s \frac{dT_s}{dz} = \lambda_s \frac{d^2 T_s}{dz^2} + \frac{\Phi_s}{\Omega_s} \\ \rho_g C_{p,g} V_g \frac{dT_g}{dz} = \frac{\Phi_g}{\Omega_g} \\ -\lambda_p \frac{d^2 T_p}{dz^2} = \frac{\Phi_p}{\Omega_p} \end{cases} \quad \text{Équation 63}$$

V_s est défini **Équation 64**.

$$V_s = \frac{\dot{Q}_v}{R^2} \left[\frac{2}{\cos(\beta)} \cos^{-1}(1 - h/R) - \sin(2\cos^{-1}(1 - h/R)) \right] \quad \text{Équation 64}$$

Les conditions aux limites sont connues pour partie à l'entrée du cylindre et pour partie à la sortie. Le problème est donc un problème aux deux bouts sur le domaine $I_z = [0 ; 4,2 \text{ m}]$. La résolution de ce système a été effectuée avec la fonction BVP4C (BVP= [Two Points] Boundary Value Problem) implémentée dans MATLAB®. Cette résolution nécessite également d'initialiser la résolution pour chaque variable sur l'ensemble du domaine I_z .

II.3.2. Propriétés des différentes phases

Les propriétés des gaz (ici N₂) sont fortement dépendantes de la température. La capacité thermique massique est donc calculée suivant l'Équation 65 [127].

$$C_{p,N_2} (\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}) = A_{N_2} + B_{N_2} \cdot T + C_{N_2} \cdot T^2 + D_{N_2} \cdot T^3 + E_{N_2} \cdot T^4 \quad \text{Équation 65}$$

Avec les coefficients présentés dans le **Tableau 13**.

Tableau 13 : Coefficients utilisés pour le calcul de la capacité thermique du diazote.

A _{N₂}	B _{N₂}	C _{N₂}	D _{N₂}	E _{N₂}
9,790.10 ²	4,179.10 ⁻¹	-1,176.10 ⁻³	1,674.10 ⁻⁶	-7,256.10 ⁻¹⁰

Les formules utilisées pour le calcul de la conductivité thermique et de la viscosité dynamique du gaz sont présentées Équation 66 [176].

$$\begin{cases} \lambda_{N_2} (\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}) = \frac{AA_{N_2} \cdot T^{BB_{N_2}}}{1 + \frac{CC_{N_2}}{T} + \frac{DD_{N_2}}{T^2}} \\ \mu_{N_2} (\text{Pa} \cdot \text{s}) = \frac{AAA_{N_2} \cdot T^{BBB_{N_2}}}{1 + \frac{CCC_{N_2}}{T} + \frac{DDD_{N_2}}{T^2}} \end{cases} \quad \text{Équation 66}$$

Les coefficients de ces expressions sont :

Tableau 14 : Coefficients utilisés pour le calcul de la conductivité thermique et de la viscosité dynamique du diazote.

AA _{N₂}	BB _{N₂}	CC _{N₂}	DD _{N₂}
3,314.10 ⁻⁴	7,722.10 ⁻¹	1,632.10 ¹	3,737.10 ²
AAA _{N₂}	BBB _{N₂}	CCC _{N₂}	DDD _{N₂}
6,560.10 ⁻⁷	6,081.10 ⁻¹	5,471.10 ¹	0

Les propriétés des plaquettes de bois, de la paroi du cylindre et de la coquille chauffante nécessaires aux simulations ont également été tirées de la littérature et sont synthétisées dans le **Tableau 15**.

Tableau 15 : Propriétés des différents éléments étudiés et valeurs utilisées pour les simulations.

	Propriété	Valeur	Unité	Source
Gaz	ε _g	0,09	-	[177]
	ε _s	0,9	-	[178]
Bois	λ _s	0,18	W/m/K	[179]
	C _{p,s}	103,1+3,867.T _s	J/kg/K	[179]
	ε _p	0,7	-	[178]
Paroi du cylindre	λ _p	23	W/m/K	[134]
	ρ _p	8900	kg/m ³	[134]
	C _{p,p}	444	J/kg/K	[134]
	ε _{coq}	0,4	-	[134]

Cependant, il faut tenir compte de la porosité du lit, notamment dans l'expression de la conductivité thermique. Descoins [134] propose d'utiliser la relation suivante :

$$\lambda_{lit} = \lambda_c + \lambda_r \quad \text{Équation 67}$$

La conductivité du lit λ_{lit} est donc composée d'une conductivité due au contact entre les particules λ_c et d'une conductivité due aux échanges radiatifs entre ces particules λ_r . Ces termes sont explicités **Équation 68** et **Équation 69**.

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\lambda_c}{\lambda_g} = [1 - \sqrt{1 - \varepsilon_{lit}}] + \sqrt{1 - \varepsilon_{lit}} \frac{2}{\left(1 - \frac{B}{x}\right)} \left[\frac{(1 - x^{-1})B}{\left(1 - \frac{B}{x}\right)^2} \ln\left(\frac{x}{B}\right) - \frac{B+1}{2} - \frac{B-1}{\left(1 - \frac{B}{x}\right)} \right] \\ x = \lambda_s / \lambda_g \\ B = C \left(\frac{1 - \varepsilon_{lit}}{\varepsilon_{lit}} \right)^{10/9} \\ C = \begin{cases} 1,25 & \text{si particules sphériques} \\ 2,5 & \text{si particules cylindriques} \end{cases} \end{array} \right. \quad \text{Équation 68}$$

Les plaquettes de bois sont assimilées à des cylindres.

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\lambda_r}{\lambda_g} = [1 - \sqrt{1 - \varepsilon_{lit}}] fr + \frac{\sqrt{1 - \varepsilon_{lit}}}{\left(\frac{1}{fr} + \frac{\lambda_g}{\lambda_s}\right)} \\ fr = \frac{4\sigma T_s^3 d_p}{\left(\frac{2}{\varepsilon_s} - 1\right) \lambda_g} \end{array} \right. \quad \text{Équation 69}$$

La dernière étape dans l'élaboration du modèle de transferts thermiques est la sélection du coefficient d'échange paroi-solide.

II.4. Sélection du coefficient d'échange paroi-solide et comparaison aux résultats expérimentaux

II.4.1. Présentation de l'étude expérimentale des transferts thermiques

L'objectif de cette étude expérimentale est de fournir des données qui pourront être comparées aux résultats du modèle. Afin d'identifier au mieux la contribution des termes de transferts thermiques, toute l'énergie fournie à la charge doit être utilisée uniquement pour élever sa température. Ceci implique que le séchage et les réactions de dégradation de la biomasse doivent être évités.

Les plaquettes utilisées lors de ces essais ont donc été préalablement séchées puis stockées dans des pots de récupération fermés hermétiquement. Aucune reprise d’humidité n’est donc intervenue pendant la phase de refroidissement. Lors des essais, des prélèvements ont été réalisés à chaque rechargement de trémie afin de mesurer l’humidité de la biomasse à l’entrée du cylindre. Cette humidité est de $1,1 \pm 0,2$ % sur l’ensemble des essais et sera négligée par la suite.

La température de traitement doit répondre à deux critères :

- être suffisamment basse pour éviter l’apparition de réactions chimiques,
- être suffisamment élevée pour être représentative des conditions de torréfaction.

La température de consigne choisie est 160 °C , et trois essais – dont les conditions opératoires sont présentées **Tableau 16** – ont été réalisés. Cette température implique que ces essais ne permettront pas d’identifier la contribution des phénomènes radiatifs.

Tableau 16 : Conditions opératoires des essais de chauffe de plaquettes sèches.

Essai	α (°)	ω (tr/min)	\dot{Q} (kg/h)	\bar{t}_s (min)	H (%)
TH1	2	4	4	32,7	5,2
TH2	2	2	4	66,7	10,8
TH3	2	4	8	33,0	10,6

Ces essais doivent permettre d’évaluer l’influence du temps de séjour et du taux de remplissage sur le profil de température de la charge le long du four. Le débit de balayage d’azote (\dot{Q}_{v,N_2}) est fixé à $0,8\text{ Nm}^3/\text{h}$.

Les profils de température du lit de plaquettes de bois mesurés pendant ces essais sont présentés **Figure 54**.

Durant l’essai **TH1**, la température mesurée maximale (145 °C) est située à environ 260 cm de l’entrée. La température de la charge diminue ensuite à l’approche de la zone de refroidissement. La température à la sortie de la cinquième zone de chauffe est alors de 130 °C . Il est donc probable que la température de la coquille n’est pas constante dans les zones de chauffe 1 et 5 comme il a été supposé jusqu’ici. Malgré la présence des zones isolées, les pertes aux extrémités du four seraient donc non négligeables. Cependant, en l’absence de mesures concrètes il est impossible d’estimer précisément le profil de température réel de la coquille dans ces zones.

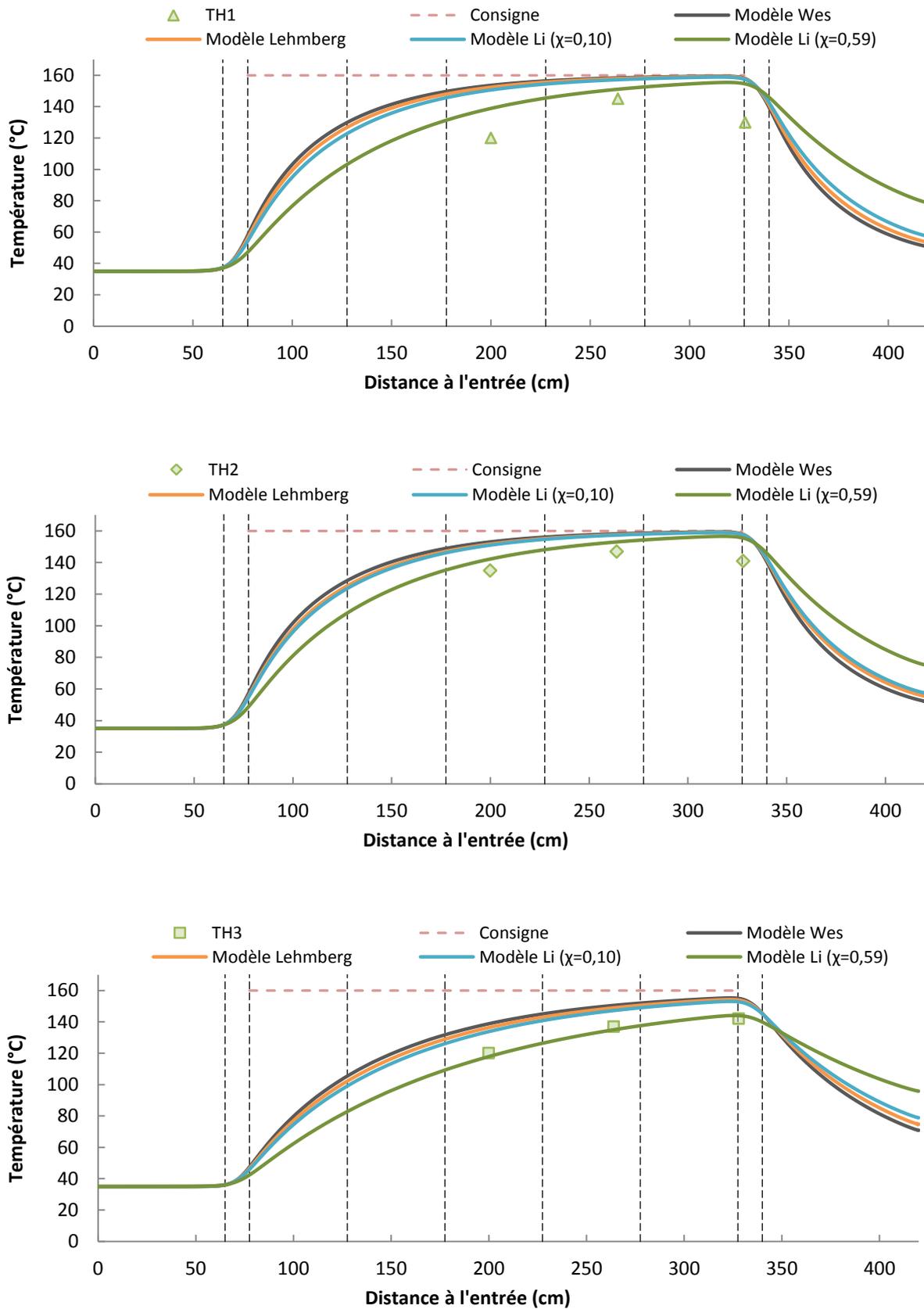


Figure 54 : Évolution de la température de la charge lors des essais de chauffe de bois sec et comparaison avec les résultats du modèle obtenus pour différents coefficients d'échange paroi-lit.

L'essai **TH2** présente un temps de séjour et un taux de remplissage moyens deux fois supérieurs à ceux de l'essai TH1. Le temps passé dans les zones de chauffe étant plus important, la température atteinte à 200 cm de l'entrée est plus importante que pendant l'essai TH1 (135 contre 120 °C). Le refroidissement plus lent s'explique par le taux de remplissage plus important qui augmente l'inertie thermique du lit de particules.

Enfin, l'essai **TH3** a un temps de séjour court (similaire à TH1) et un taux de remplissage élevé (similaire à TH2). La température à 200 cm est identique à celle de TH1 alors que la température à 260 cm est légèrement inférieure (137 °C). En effet, lorsque le taux de remplissage augmente, le volume de matière à chauffer augmente plus fortement que la surface de contact du lit avec la paroi. Ainsi, à temps de séjour égaux, un fort taux de remplissage limite la vitesse de montée en température.

II.4.2. Sélection du coefficient d'échange paroi-lit

Les coefficients d'échange paroi-lit présentés lors de l'état de l'art ont été testés tour à tour dans le modèle. La température de la charge calculée est comparée aux valeurs expérimentales **Figure 54**. Il apparaît que la température calculée est bien supérieure à la température mesurée lorsque les modèles proposés par Wes ou par Lehmborg sont utilisés. Ces modèles surestiment donc nettement le coefficient d'échange.

Le coefficient proposé par Li *et al.* [170], prenant en compte une couche de gaz entre le lit de particules et la paroi, intègre un paramètre adimensionnel χ qui correspond à l'épaisseur de cette couche. Leurs travaux concluent à une valeur optimale de 0,10 pour χ . Cette valeur a été établie pour leurs matériaux d'étude (sable et soude) ayant un diamètre de particules d_p compris entre 157,5 et 1038 μm . Lorsque cette valeur est utilisée dans le cas des plaquettes de bois, l'estimation de la température montre peu de différence avec les résultats des corrélations précédentes (**Figure 54**).

Cependant, Li *et al.* ont également investigué l'influence du diamètre des particules sur χ par ajustement modèle/expérience. Les résultats obtenus sont représentés **Figure 55**.

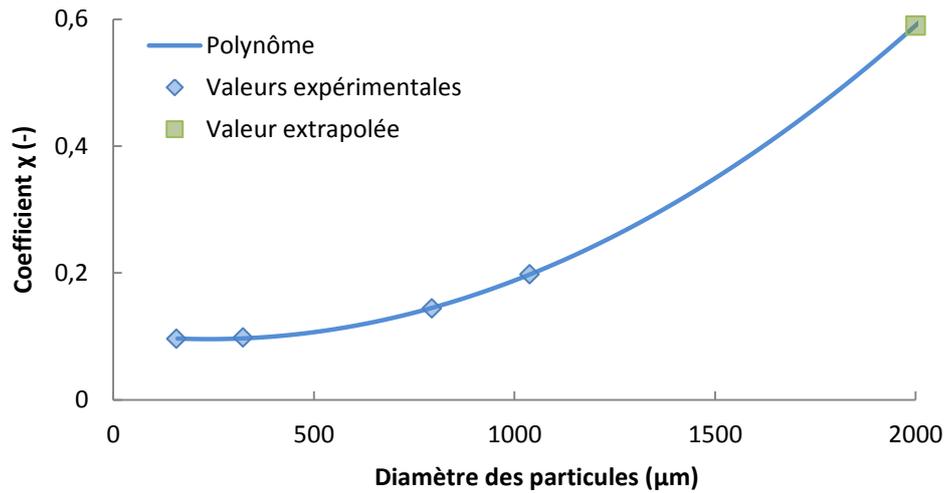


Figure 55 : Représentation graphique de l'influence du diamètre des particules sur le coefficient χ (valeurs expérimentales tirées de [170]).

Afin d'adapter le modèle aux plaquettes de bois, la relation entre χ et d_p a été modélisée par un polynôme du second degré :

$$\chi = 1,59 \cdot 10^{-7} d_p^2 - 7,58 \cdot 10^{-5} d_p + 1,05 \cdot 10^{-1} \quad \text{Équation 70}$$

Considérant un diamètre moyen des plaquettes de bois de 2 mm (épaisseur moyenne des plaquettes), la valeur de χ est alors 0,59. Les résultats du modèle de transferts en four tournant utilisant cette valeur sont également présentés **Figure 54**, et montrent une réelle amélioration sur la prédiction de la température.

L'écart modèle/expérience le plus important est observé dans le cas de l'**essai TH1**. A 200 cm de l'entrée, 17 °C séparent les valeurs prédite et mesurée. Cet écart est réduit à 6 °C pour le point à 260 cm et est maximal (24 °C) à la sortie des zones de chauffe. Le refroidissement est également mal représenté pour l'**essai TH2**. La raison de cette divergence a été évoquée précédemment, et provient vraisemblablement de la mauvaise connaissance de la température de coquille aux extrémités du four. Enfin, pour l'**essai TH3**, la prédiction est parfaitement en accord avec les mesures expérimentales.

Le coefficient d'échange paroi-lit proposé par Li *et al.* (avec $\chi = 0,59$) sera donc utilisé dans la suite de ces travaux car il est le plus approprié pour représenter la réalité expérimentale. Ce coefficient (h_{ps}^c) vaut alors environ $30 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$.

II.4.3. Résultats du modèle de transferts thermiques

La **Figure 56** présente les résultats du modèle pour les différentes phases.

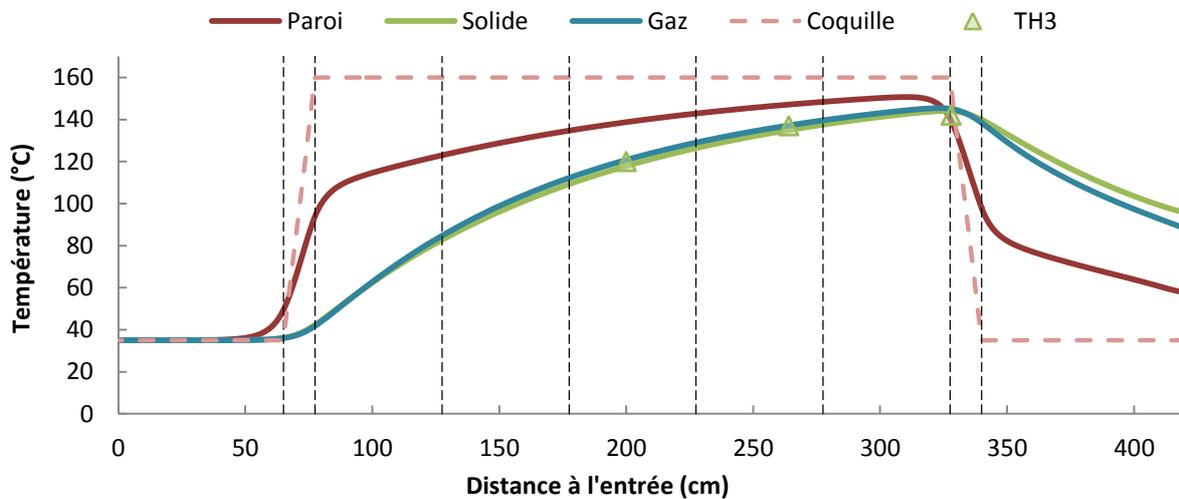


Figure 56 : Profils de température des différentes phases calculés par le modèle de transferts thermiques pour l'essai TH3.

Pour cet essai, la température du gaz est très proche de celle du solide. La température de paroi augmente légèrement avant l'entrée dans la première zone d'isolant, ce qui est dû au phénomène de conduction axiale interne à la paroi. La chauffe de la paroi est ensuite principalement réalisée dans la zone isolée et son refroidissement est très rapide en sortie du four où la température devient inférieure à celles du solide et du gaz. Il est à noter qu'aucune phase n'atteint la température de la coquille. Les tendances semblent réalistes mais l'instrumentation du four ne permet pas la validation de l'ensemble des valeurs calculées par le modèle.

Les contributions des différents modes d'échange thermique sont représentées **Figure 57**.

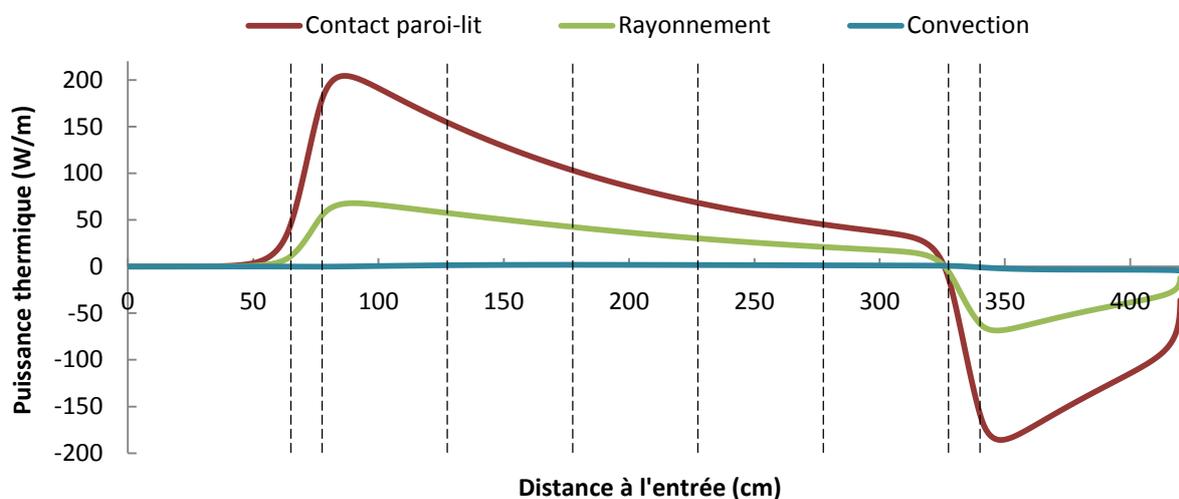


Figure 57 : Puissances thermiques échangées avec le lit de particules le long du four pour l'essai TH3.

Les transferts paroi-lit constituent bien le principal mode de transfert de chaleur entre 77 et 327 cm. Cependant, l'apport de chaleur par rayonnement n'est pas négligeable, même si la température est ici faible (inférieure à 160 °C). Enfin, étant donné le faible débit de gaz de balayage (et sa température proche de celle du solide), la convection a une contribution quasiment nulle. En sortie des zones de chauffe, le solide a une température plus élevée que le gaz et la paroi : il cède donc de la chaleur.

A des fins de comparaison, le modèle thermique a été utilisé pour simuler un essai présentant les mêmes conditions d'écoulement que l'essai TH3 mais avec une température de consigne de 280 °C. Le bois est toujours considéré inerte. Le profil de température et la répartition des modes de transfert obtenus sont présentés **Figure 58**.

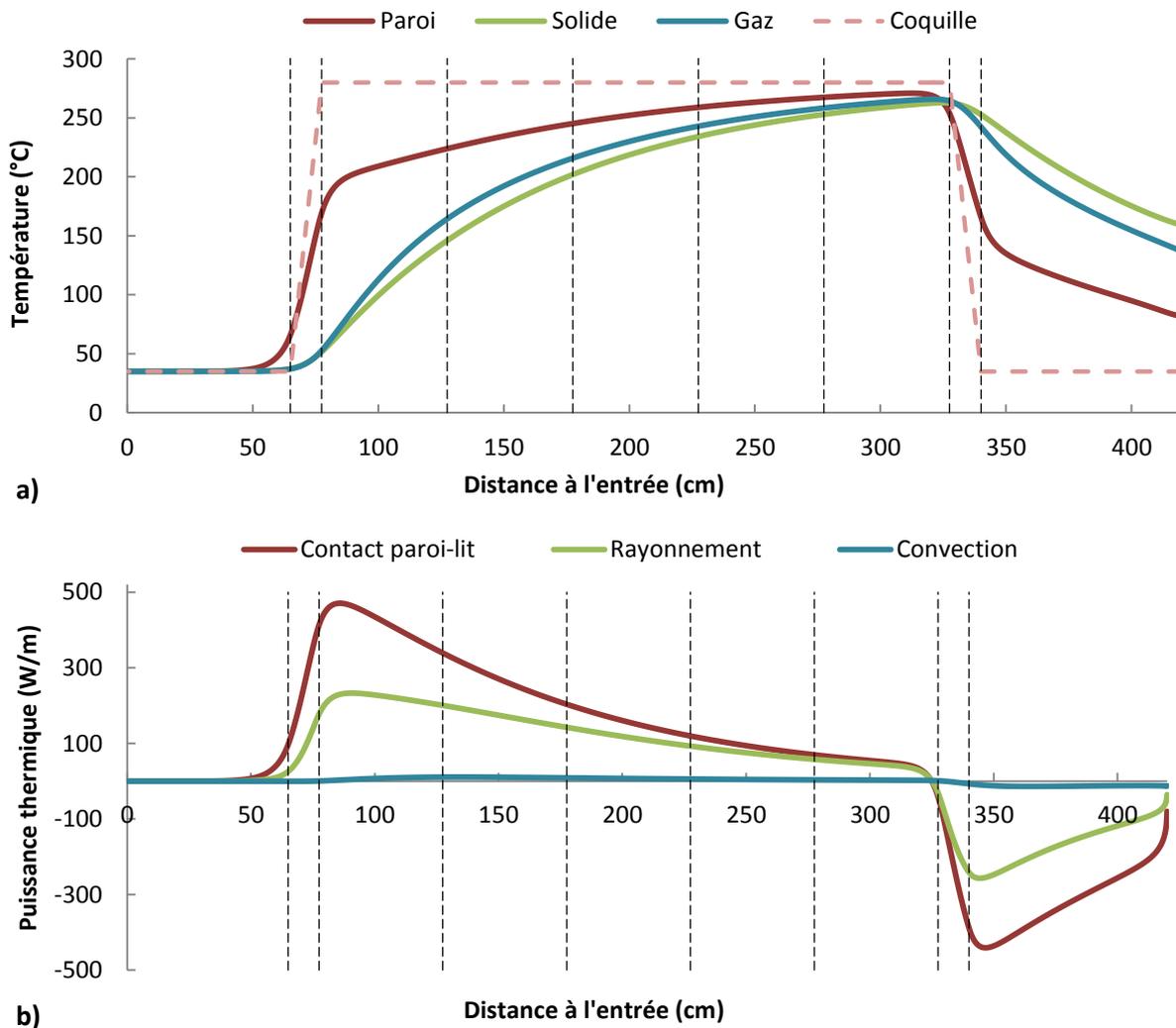


Figure 58 : a) Profils de température des différentes phases et b) puissances thermiques échangées avec le lit de particules, calculés par le modèle lors d'une simulation avec une température de consigne de 280 °C.

L'allure du profil de température de la phase solide est similaire à celle obtenue pour l'essai TH3. L'écart entre les températures de la phase solide et de la phase gaz est légèrement plus important, ce qui entraîne une faible augmentation de la puissance échangée par convection. Là encore, les températures n'atteignent jamais la consigne. Il faut noter que le terme de rayonnement prend une place plus importante dans les transferts, ce qui est cohérent avec l'augmentation de la température.

Afin de simplifier la comparaison entre ces deux essais, la puissance thermique totale apportée à la charge sur l'ensemble des zones de chauffe a été calculée par intégration des courbes précédentes. La répartition des trois modes de transferts peut alors être calculée :

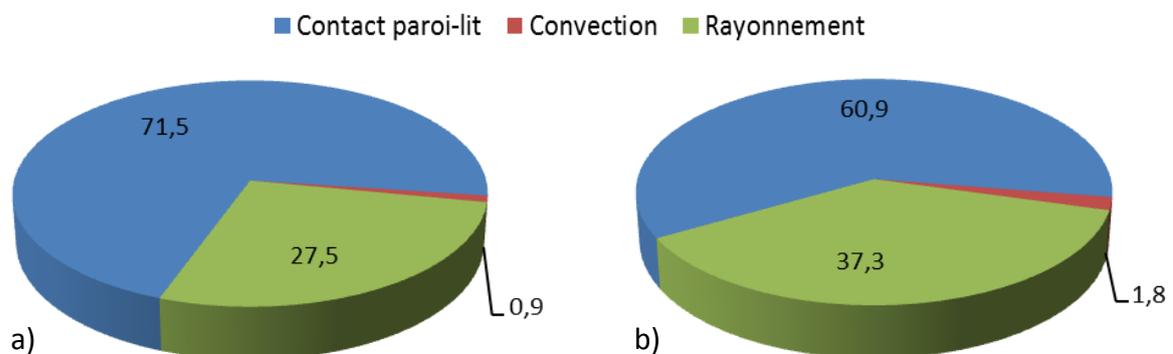


Figure 59 : Répartition (en %) de la puissance totale apportée aux plaquettes de bois. a) conditions de l'essai TH3 et b) simulation à 280 °C.

La part de la convection, bien que doublée entre les simulations à 160 et 280 °C, reste négligeable. Par contre, la contribution du rayonnement augmente significativement jusqu'à représenter plus d'un tiers de l'apport d'énergie lors du traitement à 280 °C.

II.5. Conclusions modèle de transferts thermiques

Les différents types de transferts thermiques impliqués dans la chauffe de la charge du four tournant pilote ont été modélisés par des relations issues de la littérature. Des essais de chauffe de biomasse sèche à basse température ont permis l'acquisition de données expérimentales qui ont servi de base à la sélection d'un coefficient d'échange paroi-lit adapté aux plaquettes de bois. La température du lit de plaquettes de bois calculée par le modèle est alors en accord avec les mesures disponibles. Les températures de la paroi et du gaz sont également prédites par le modèle mais n'ont pu être validées expérimentalement. L'étude de la contribution des différents modes de transferts a mis en évidence que le rayonnement représente un apport de chaleur conséquent alors que la convection reste négligeable.

III. Modélisation du séchage de la biomasse

Le séchage de la biomasse est un processus endothermique. Sa prise en compte est donc indispensable afin d'éviter une surestimation de la montée en température de la matière sèche. Industriellement, une étape de pré-séchage est réalisée avant l'introduction de la matière dans le réacteur de torréfaction [180]. La faible humidité de la biomasse étudiée ici (environ 12 %) est donc représentative de l'humidité en entrée d'un réacteur de torréfaction industriel. Dans la littérature, des approches de modélisation du séchage en four tournant ont précédemment été développées [181–183]. S'il existe des manières simples de mettre en équation un tel procédé, la détermination des cinétiques de séchage du produit est plus complexe [184–188]. Ces deux aspects vont ici être traités successivement.

III.1. Mise en équation du séchage et intégration au modèle de four tournant

La modélisation du séchage fait appel à des équations de conservation de la matière et de l'énergie. Ces bilans doivent être réalisés simultanément sur la phase solide et sur la phase gaz.

L'évolution de la teneur en eau du solide X (en $\text{kg}_{\text{eau}}/\text{kg}_{\text{bois sec}}$) le long du four peut être décrite par l'Équation 71.

$$V_s \frac{dX}{dz} = -R_w \quad \text{Équation 71}$$

Avec R_w la vitesse de séchage (en $\text{kg}_{\text{eau}}/\text{kg}_{\text{bois sec}}/\text{s}$). La résolution de cette équation nécessite la connaissance de l'expression de R_w et de la teneur en eau du bois brut en entrée.

L'évolution de la teneur en eau du gaz Y (en $\text{kg}_{\text{eau}}/\text{kg}_{\text{gaz sec}}$) est calculée suivant l'Équation 72.

$$\dot{m}_{\text{gaz}} \frac{dY}{dz} = \rho_s S_s R_w \quad \text{Équation 72}$$

Où \dot{m}_{gaz} est le débit massique de gaz sec (en kg/s), ρ_s la masse volumique du bois sec et S_s la section de passage du solide.

L'équation de conservation de l'énergie de la phase solide (Équation 49) est ensuite modifiée afin de tenir compte de la montée en température simultanée de la biomasse sèche et de l'eau qu'elle contient, mais également de l'énergie nécessaire à l'évaporation de l'eau :

$$\rho_s(C_{p,s} + XC_{p,eau})V_s \frac{dT_s}{dz} = \lambda_s \frac{d^2T_s}{dz^2} + \frac{\Phi_s}{\Omega_s} - L_v R_w \rho_s \quad \text{Équation 73}$$

$C_{p,eau}$ et L_v sont respectivement la capacité thermique et la chaleur latente de vaporisation de l'eau. L'humidité de la biomasse étant inférieure au point de saturation des fibres, la chaleur latente de vaporisation de l'eau devrait être additionnée d'une chaleur nette isostérique de sorption. En l'absence de données dans la littérature sur la biomasse utilisée ici, la chaleur de désorption sera négligée dans la suite de ce travail. La chaleur latente de vaporisation (en kJ/kg) est calculée suivant l'Équation 74 qui traduit sa diminution lors d'une augmentation de la température.

$$L_v = 2968,7 - 1,1986 \cdot T - 0,0019 \cdot T^2 \quad T \in [273 - 433 \text{ K}] \quad \text{Équation 74}$$

L'eau est supposée s'évaporer à la température du lit de plaquettes de bois. La vapeur est ensuite mise à la température du gaz, ce qui est représenté par un terme $C_{p,vap} R_w \rho_s \frac{S_s}{S_g} (T_s - T_g)$. Ce terme intervient dans l'équation de conservation de l'énergie de la phase gaz (Équation 75) qui tient compte de la montée en température simultanée du gaz de balayage et de la vapeur d'eau :

$$\rho_g(C_{p,g} + YC_{p,vap})V_g \frac{dT_g}{dz} = \frac{\Phi_g}{\Omega_g} + C_{p,vap} R_w \rho_s \frac{S_s}{S_g} (T_s - T_g) \quad \text{Équation 75}$$

$C_{p,vap}$ est la capacité thermique de la vapeur d'eau.

Toutes ces équations nécessitent l'estimation de la vitesse de séchage R_w .

III.2. La méthode des courbes caractéristiques

III.2.1. Présentation de la méthode

Les phénomènes de séchage sont complexes et leur modélisation nécessite la connaissance de données difficiles à évaluer. C'est pourquoi une démarche empirique a été établie afin de déterminer les cinétiques de séchage à partir d'un nombre limité d'expériences. Cette approche a été développée pour la première fois par Van Meel en 1958 [189].

Les expériences doivent être réalisées afin de couvrir un large domaine de conditions opératoires (classiquement vitesse, température et humidité de l'air dans le cas de séchage convectif). Ces expériences permettent l'acquisition de cinétiques de séchage : évolution de la teneur en eau du solide X au cours du temps t . De ces cinétiques peuvent être déduites

les courbes de séchage du matériau : évolution de la vitesse de séchage R_w en fonction de la teneur en eau du produit. A titre d'exemple, la **Figure 60a** présente une courbe de séchage pour un matériau modèle (non déformable à surface constante).

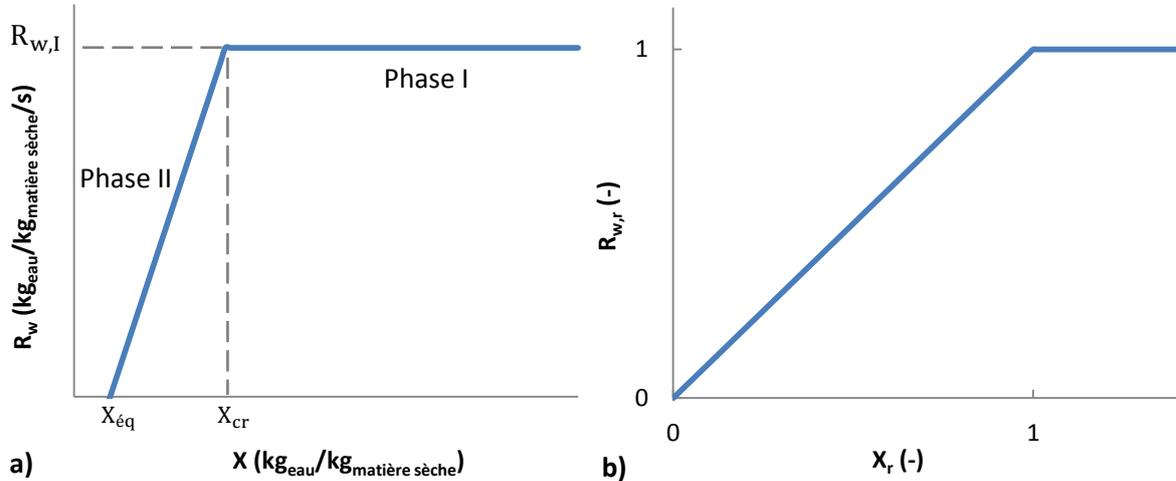


Figure 60 : Représentations schématiques a) d'une courbe de séchage et b) d'une courbe caractéristique.

Deux phases distinctes peuvent être identifiées :

- **Phase I** : la teneur en eau est supérieure à la teneur en eau critique X_{cr} . Lors de cette phase, la surface du produit est saturée en eau ce qui implique que les transferts de l'eau à l'intérieur du matériau ne sont pas limitants. La vitesse de séchage est alors constante et notée $R_{w,I}$.
- **Phase II** : lorsque la teneur en eau devient inférieure à la teneur en eau critique, les transferts internes deviennent limitants ce qui provoque une diminution progressive de la vitesse de séchage. Cette évolution n'est pas nécessairement linéaire comme représenté **Figure 60a**. La vitesse de séchage devient nulle lorsque la teneur en eau d'équilibre $X_{\text{éq}}$ est atteinte.

La méthode des courbes caractéristiques propose ensuite d'exprimer la vitesse de séchage réduite $R_{w,r}$ en fonction de la teneur en eau réduite X_r . Ces termes sont définis **Équation 76** et **Équation 77**.

$$R_{w,r} = R_w / R_{w,I} \quad \text{Équation 76}$$

$$X_r = \frac{X - X_{\text{éq}}}{X_{\text{cr}} - X_{\text{éq}}} \quad \text{Équation 77}$$

Ceci permet l'obtention d'une courbe caractéristique normalisée, comme présenté **Figure 60b**. Cette courbe est caractéristique du matériau étudié et indépendante des conditions opératoires. L'utilisation de cette courbe doit cependant être réalisée en respectant des critères de similitude avec les expériences qui ont permis son élaboration.

III.2.2. Protocole de détermination des cinétiques de séchage

Afin d'être compatibles avec l'unité pilote, les cinétiques de séchage doivent être établies dans des conditions similaires. Cependant, aucune unité batch disponible au laboratoire ne permettait de reproduire simultanément l'apport de chaleur par une paroi chaude et le brassage de la charge en réalisant les pesées nécessaires à la détermination de l'humidité. Il a donc été décidé de réaliser directement cette étude dans le four tournant.

Pour ce faire, une canne de prélèvement a été conçue. Un tube en aluminium de 4 m de long a été gradué et équipé à son extrémité d'une boîte métallique de dimensions 4,5 x 5,5 x 10,5 cm (profondeur x largeur x longueur). Lors des essais de séchage, la bride qui ferme hermétiquement l'extrémité du four est remplacée par une plaque facilement amovible. Pour effectuer un prélèvement, cette plaque est retirée et la canne de prélèvement est insérée dans le cylindre. Les graduations de la canne sont utilisées pour placer la boîte de prélèvement à la position souhaitée et un mouvement de rotation de la canne permet de prélever une partie du lit. La canne est alors retirée rapidement et le prélèvement est réparti dans des pots étanches de masses connues. Après refroidissement, ces pots sont pesés puis placés à l'étuve à 105 °C. Une dernière pesée après stabilisation de leur masse permet le calcul de la teneur en eau de l'échantillon au moment du prélèvement.

L'inconvénient de cette méthode est que le support des thermocouples permettant habituellement la mesure de la température de la charge a été supprimé. Pendant les essais de séchage, aucune mesure de température du lit n'est donc possible. Par conséquent, les paramètres d'influence retenus sont la température de consigne de la coquille chauffante, le débit de balayage d'azote et le taux de remplissage. Les paramètres de l'ensemble des essais sont résumés dans le **Tableau 17**.

Tableau 17 : Paramètres des essais de séchage en four tournant.

Essai	SEC1	SEC2	SEC3	SEC4	SEC5	SEC6	SEC7	SEC8
Température (°C)	140	160	160	160	250	250	250	250
Débit azote (Nm ³ /h)	1,9	1,9	3,2	6,2	0,8	3,2	0,8	0,8
Temps de séjour (min)	32,7	32,7	32,7	32,7	32,7	32,7	54,4	55,9
Taux de remplissage (%)	5,2	5,2	5,2	5,2	5,2	5,2	13,0	18,1

Afin d'éviter l'apparition de réactions de dégradation thermique, les essais ont dans un premier temps été réalisés à des températures inférieures à 160 °C (essais SEC1 à SEC4). Ceci semblait d'autant plus important que ces essais nécessitent l'ouverture du four ce qui peut s'avérer dangereux si des matières volatiles sont produites. Par la suite, des essais ont tout de même été réalisés à 250 °C pour obtenir des données plus facilement extrapolables aux températures de torréfaction (essais SEC5 à SEC8). Lors de ces essais, seules les deux premières zones de chauffe ont pour consigne 250 °C. La consigne de la troisième zone est de 150 °C et celle des deux dernières zones de 100 °C. Là encore, l'objectif est d'éviter la dégradation du bois sec. Pour s'assurer que le séchage soit réalisé dans les deux premières zones, le temps de séjour de la biomasse lors des essais SEC7 et SEC8 est plus élevé que lors des autres essais.

Pour chaque essai, une fois le régime permanent atteint, 4 prélèvements sont réalisés à différentes positions du four. Chaque prélèvement est réparti dans 3 pots afin d'évaluer l'incertitude liée à l'échantillonnage. Cette incertitude est inférieure à 0,01 kg_{eau}/kg_{bois sec} pour l'ensemble des essais. Les prélèvements pouvant perturber légèrement le procédé (entrée d'air + prélèvements dans le lit), deux séries de 4 prélèvements sont séparées par une période de re-stabilisation des températures (30 à 60 min).

III.2.3. Résultats expérimentaux et détermination de la courbe caractéristique

Les prélèvements ont été réalisés sur l'ensemble des zones de chauffe. Les résultats de profils d'humidité le long du four sont présentés **Figure 61**.

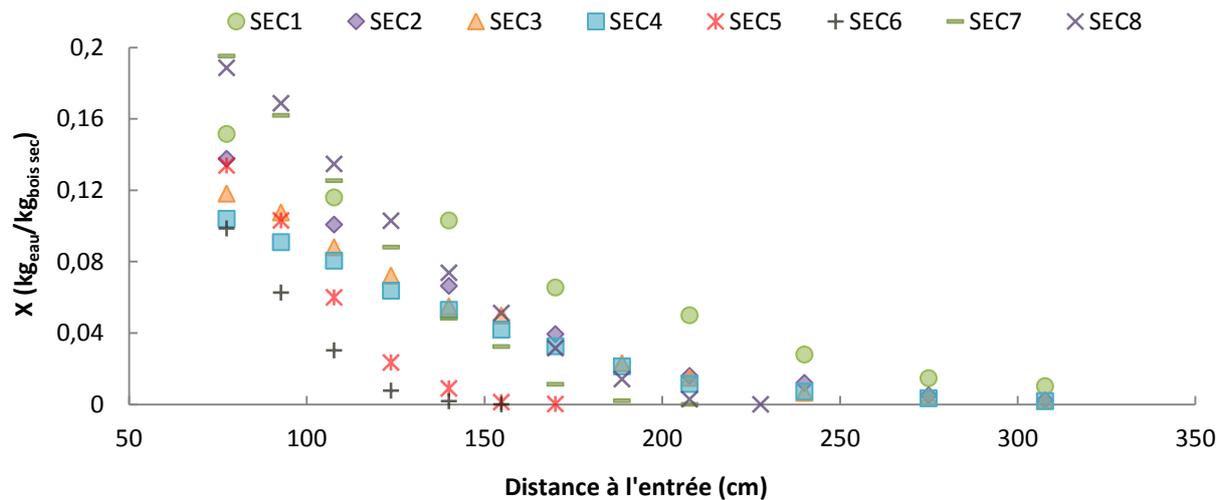


Figure 61 : Profils d'humidité mesurés le long du four pour l'ensemble des essais.

Il apparait que la teneur en eau de la biomasse à l'entrée des zones de chauffe varie suivant les essais et qu'elle est supérieure à la teneur en eau de la biomasse brute ($0,12 \text{ kg}_{\text{eau}}/\text{kg}_{\text{bois sec}}$) dans de nombreux cas. La teneur en eau initiale augmente quand la température ou le débit d'azote diminuent et quand le taux de remplissage augmente. Cette observation est une conséquence de phénomènes de recondensation de l'eau évaporée. En effet, les débits de gaz utilisés ne sont pas suffisants pour éviter la formation de mouvements de convection qui transportent le gaz chaud vers les zones froides (ici l'entrée) où la vapeur d'eau condense.

Connaissant le profil de chargement lors des essais, la vitesse axiale du lit peut être calculée à chaque position de prélèvement. Cette vitesse permet ensuite de calculer le temps passé dans la zone chauffée. Les cinétiques de séchage ainsi calculées sont présentées **Figure 62**.

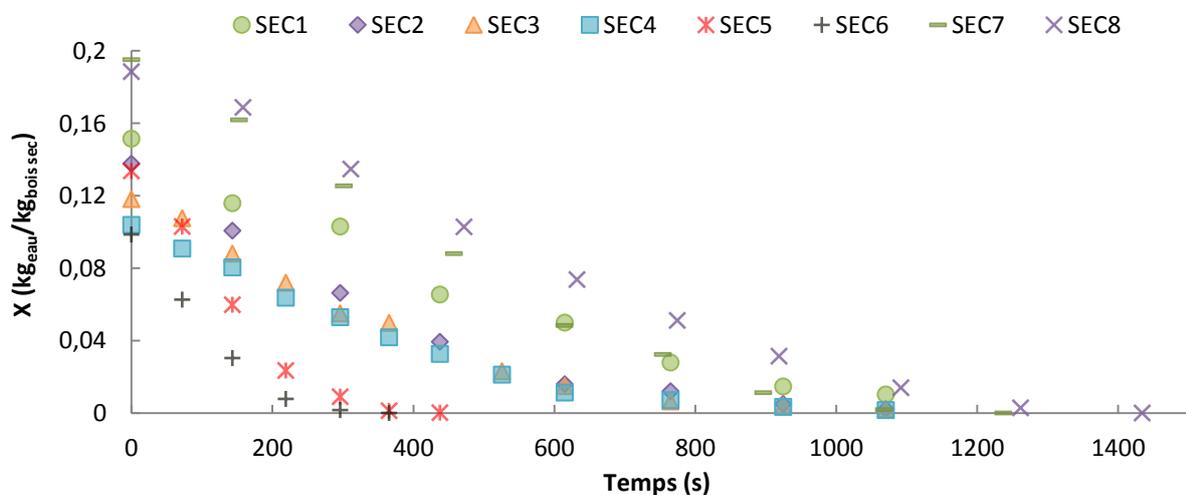


Figure 62 : Cinétiques de séchage déterminées pour les différents essais.

Ces courbes ont été modélisées dans un premier temps par des polynômes du second degré. En dérivant ces polynômes, il est possible de calculer la vitesse de séchage en chaque point.

La **Figure 63** présente l'évolution de ces vitesses de séchage avec la teneur en eau.

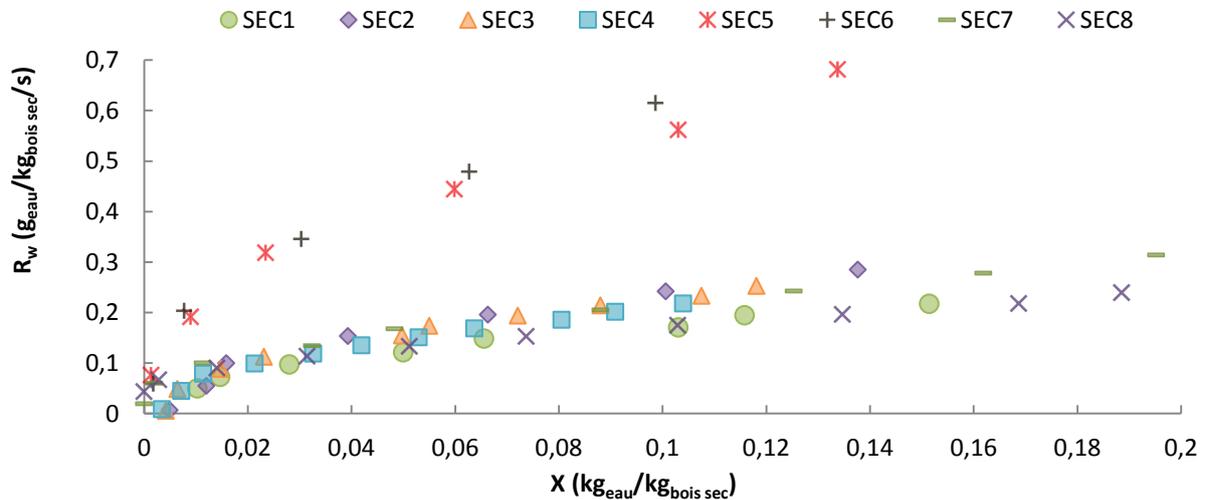


Figure 63 : Évolution de la vitesse de séchage avec la teneur en eau.

Comme attendu, il n'existe pas de phase I où la vitesse de séchage est constante. Ceci s'explique par la faible humidité initiale de la biomasse utilisée. Il faut également noter que les essais SEC5 et SEC6 montrent des vitesses de séchage 2 à 3 fois plus importantes que les autres. Ces essais ont été menés à 250 °C avec un faible taux de remplissage (5,2 %) et des débits d'azote respectivement de 0,8 et 3,2 Nm³/h. Ce débit d'azote affecte peu la vitesse de séchage pour une teneur en eau donnée. A la même température, mais pour des taux de remplissages plus importants (13,0 et 18,1 %), les essais SEC7 et SEC8 présentent des vitesses de séchage beaucoup plus faibles. Ceci est dû à une saturation plus rapide du gaz étant donné les quantités d'eau plus importantes à évaporer. Cette saturation est confirmée par la forte teneur en eau en entrée des zones de chauffe pour ces deux essais (voir **Figure 61**). Les vitesses de séchage lors des autres essais, menés à des températures plus faibles et avec divers débits de gaz, sont similaires à celles des essais SEC7 et SEC8.

Connaissant la vitesse de séchage à chaque instant, il est désormais possible de calculer la vitesse de séchage réduite. En l'absence de phase I, les données sont adimensionnées par la vitesse de séchage initiale $R_{w,ini}$ comme dans la référence [190]. De même, pour calculer la teneur en eau réduite, la teneur en eau critique est prise égale à celle constatée en entrée des zones de chauffe. La teneur en eau à l'équilibre est quant à elle supposée égale à 0.

Après calcul des termes réduits, il est possible de représenter graphiquement la caractéristique de séchage des plaquettes de bois dans le four tournant pilote.

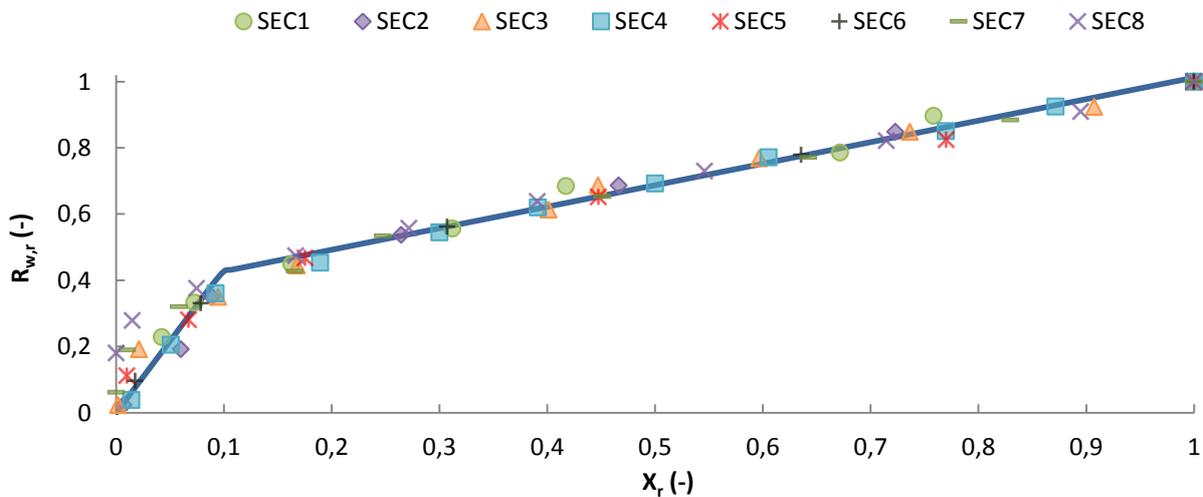


Figure 64 : Courbe caractéristique du séchage des plaquettes de bois.

Comme attendu, toutes les courbes se superposent. La rupture de pente pour $X_r \approx 0,1$ est caractéristique de la difficulté à évaporer l'eau fortement liée aux fibres de la biomasse. Par simplicité, il a été décidé de représenter cette courbe par deux droites. L'équation de ces droites est donnée **Équation 78**.

$$\begin{cases} R_{w,r} = aX_r & \text{pour } X_r \leq X_{r,rupture} \\ R_{w,r} = bX_r + c & \text{pour } X_r > X_{r,rupture} \end{cases} \quad \text{Équation 78}$$

La rupture de pente intervient à la teneur en eau réduite $X_{r,rupture}$ qui vérifie l'**Équation 79**.

$$X_{r,rupture} = \frac{c}{a - b} \quad \text{Équation 79}$$

Les coefficients a , b et c ont été déterminés par ajustement pour minimiser l'écart modèle/expérience. Les valeurs obtenues sont $a=4,339$, $b=0,650$ et $c=0,362$ ce qui mène à $X_{r,rupture}=0,098$. La courbe obtenue est représentée en bleu sur la **Figure 64**.

Pour $X_r < X_{r,rupture}$ d'autres lois de comportement auraient pu être utilisées mais il semble difficile de représenter correctement l'ensemble des données expérimentales. De plus, cette partie de la courbe correspond à des humidités très faibles qui n'auront que peu d'influence sur les résultats du modèle final.

A ce stade, la vitesse de séchage n'est pas encore reliée aux paramètres opératoires des essais. Par définition, celle-ci sera calculée de la manière suivante :

$$R_w = R_{w,r} \times R_{w,l} = R_{w,r} \times R_{w,ini} \quad \text{Équation 80}$$

La vitesse initiale $R_{w,ini}$ est corrélée aux paramètres opératoires suivant l'Équation 81.

$$R_{w,ini} = \alpha_{ini} \times T_{coq}^{\beta_{ini}} \times \dot{Q}_{v,N2}^{\gamma_{ini}} \times H^{\delta_{ini}} \quad \text{Équation 81}$$

Où T_{coq} est la température de consigne en °C, $\dot{Q}_{v,N2}$ le débit d'azote en Nm³/h et H le taux de remplissage moyen en %. Les constantes de cette équation, déterminées par minimisation de l'écart modèle/expérience, sont regroupées dans le **Tableau 18**.

Tableau 18 : Constantes de l'Équation 81.

α_{ini}	β_{ini}	γ_{ini}	δ_{ini}
$6,673.10^{-6}$	1,924	$-9,248.10^{-2}$	$-8,513.10^{-1}$

La faible valeur de γ_{ini} démontre que le débit de gaz n'a que peu d'influence sur la vitesse initiale de séchage. Cependant, ce débit impacte fortement l'intensité des phénomènes de recondensation. Les paramètres les plus importants sont donc la température de traitement et le taux de remplissage.

La **Figure 65** compare les valeurs de vitesses initiales prédites aux valeurs mesurées expérimentalement.

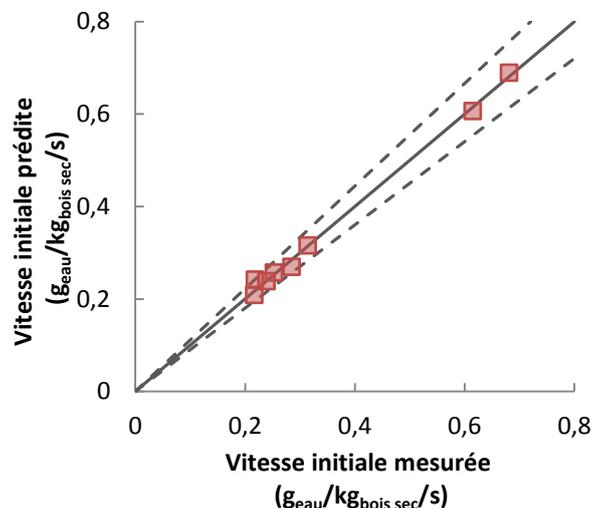


Figure 65 : Évaluation de l'adéquation modèle/expérience pour la vitesse initiale de séchage (les traits pointillés représentent une déviation de 10 %).

L'écart modèle/expérience est inférieur à 10 % pour tous les essais. La vitesse initiale de séchage sera donc calculée efficacement pour les paramètres opératoires situés dans les gammes de variation étudiées.

III.2.4. Résultats du modèle

Connaissant la vitesse de séchage à chaque instant, le modèle peut calculer les profils de teneur en eau et les profils de température des différentes phases le long du four. Deux exemples sont proposés **Figure 66** : l'exemple **a)** correspond à un essai de séchage à basse température (SEC2) et l'exemple **b)** à un essai à 250 °C plus représentatif des températures de torréfaction (SEC5).

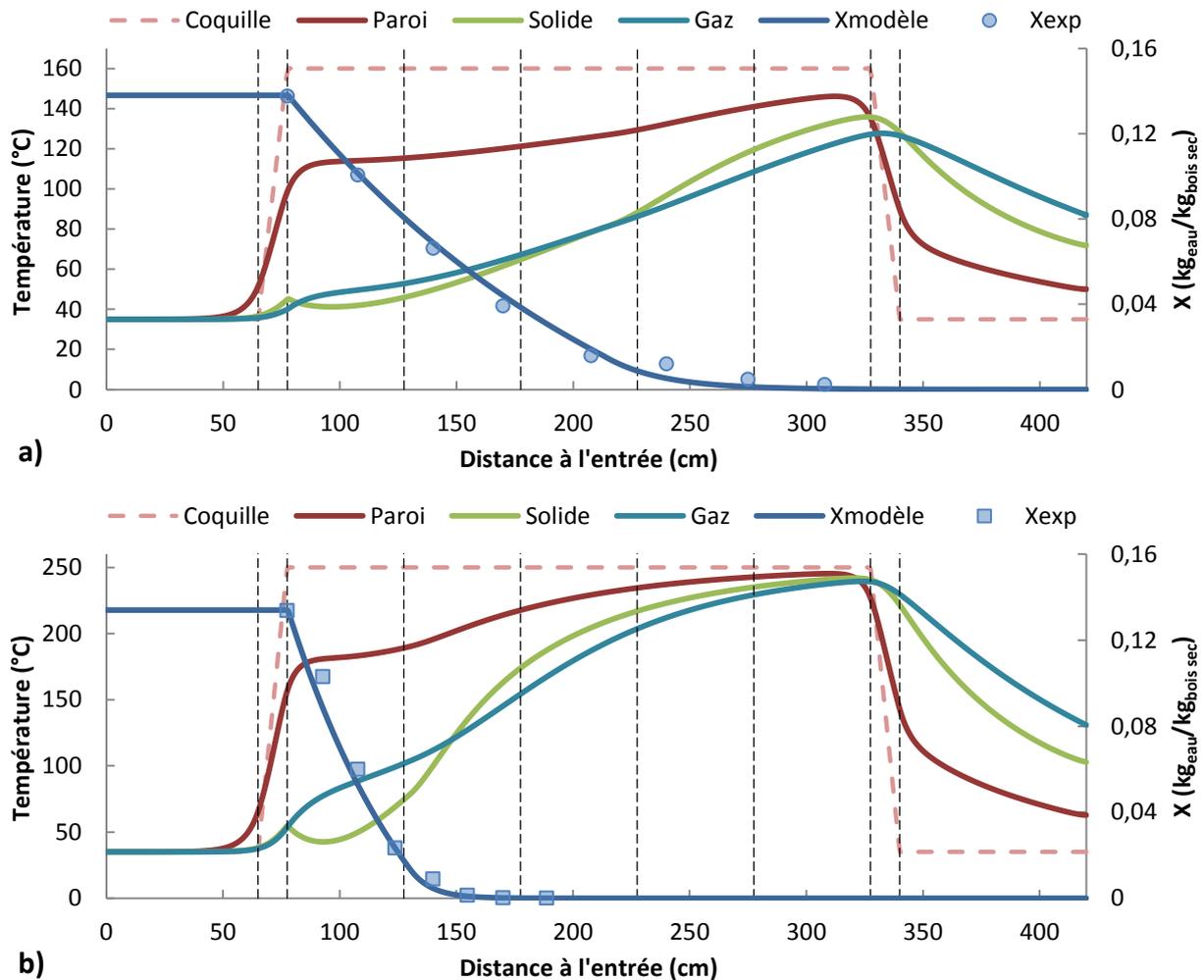


Figure 66 : Profils de température et de teneur en eau calculés par le modèle et teneur en eau mesurée expérimentalement lors des essais a) SEC2 et b) SEC5.

Le premier constat est que la résolution numérique permet de décrire parfaitement le profil de teneur en eau le long du four, quelle que soit la température de traitement. Le profil de température de la phase solide est affecté par le séchage pris en compte à partir de l'entrée des zones de chauffe. Afin de comprendre l'allure de ces profils, la **Figure 67** présente le bilan des puissances reçue par le lit de plaquettes et utilisée pour le séchage lors de la simulation de l'essai SEC5.

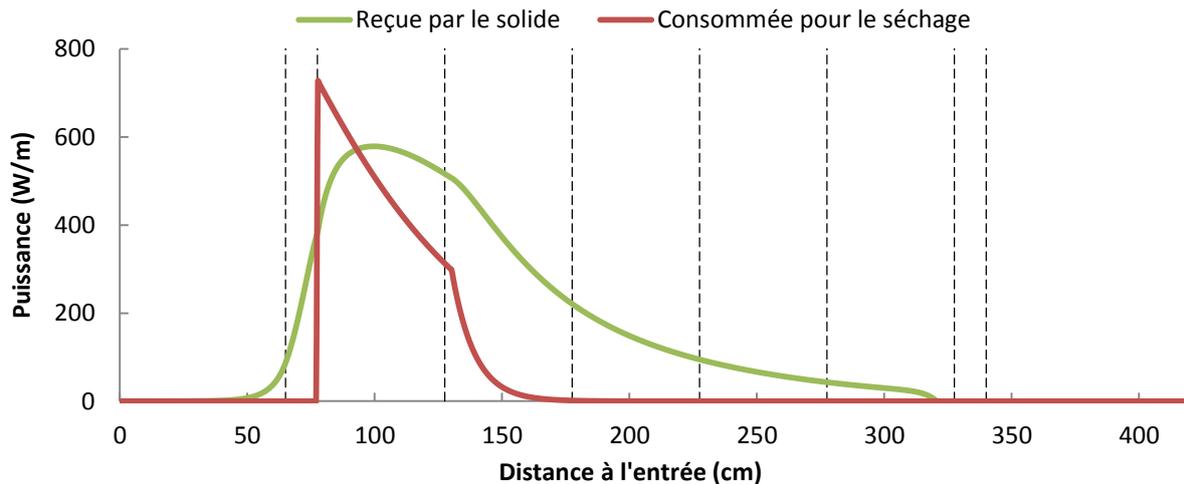


Figure 67 : Puissances reçue par le solide et consommée par le séchage, calculées par le modèle lors de la simulation de l'essai SEC5.

A l'entrée des zones de chauffe, la puissance nécessaire au séchage est légèrement supérieure à la puissance apportée au lit de plaquettes. La puissance consommée pour le séchage ne pouvant être utilisée pour chauffer la charge, un tel bilan énergétique mène nécessairement à une diminution de la température de la charge solide. Ces tendances sont probablement le résultat de l'accumulation des incertitudes lors de l'assemblage des différents sous-modèles.

Néanmoins, en l'absence d'un dispositif plus fiable pour l'évaluation des transferts couplés de chaleur et de matière lors du séchage en four tournant, ce modèle sera conservé. Cela met en effet en évidence la forte influence du séchage lors du traitement de la biomasse, y compris lorsque l'humidité initiale est faible. Il apparaît par conséquent préférable de conserver le modèle de séchage actuel plutôt que de négliger l'influence de cette étape sur la montée en température du produit.

III.3. Conclusions modèle de séchage

Un système de prélèvement des plaquettes de bois lors du séchage dans le four tournant pilote a été développé et a permis l'acquisition de données indispensables à l'implémentation d'un modèle de séchage. Ce modèle, basé sur la méthode de la courbe caractéristique de séchage, représente parfaitement l'évolution de la teneur en eau observée expérimentalement le long du four. Il est simple à mettre en œuvre et permettra ici de minimiser les incertitudes sur le bilan énergétique du traitement thermique.

Les limites de ce modèle ont cependant été identifiées. Tout d'abord, la méthode des courbes caractéristiques est empirique et donc difficilement extrapolable à d'autres biomasses. De plus, l'absence de relevés de température dans le lit lors des essais de séchage a nécessité l'emploi de la température de consigne comme température de référence. Cette démarche est acceptable en première approche mais devra faire l'objet d'une révision pour l'application à une autre configuration de four tournant.

Par ailleurs, des phénomènes de recondensation ont été mis en évidence pour de faibles débits de balayage et/ou de forts taux de remplissage. Sous sa forme actuelle, le modèle à une dimension ne permet pas la prise en compte de ces phénomènes qui seront donc négligés par la suite. Une autre possibilité aurait été de considérer que la biomasse entre dans le procédé à la teneur en eau constatée expérimentalement en entrée des zones de chauffe. Cependant, cela impliquerait de prendre en compte l'énergie nécessaire à la chauffe de ce surplus d'eau fictif, ce qui n'est pas cohérent. Enfin, le bilan énergétique d'une évaporation-recondensation étant quasiment nul, les effets de la recondensation n'impactent pas nécessairement de manière conséquente le bilan global sur le procédé.

IV. Modélisation des cinétiques de torréfaction

Le modèle de torréfaction en four tournant a pour objectif de prédire la perte de masse des plaquettes de bois au cours du traitement ce qui rend nécessaire l'évaluation des cinétiques de décomposition thermique du matériau. Pour cela, des expériences de torréfaction en thermo-balance ont été réalisées et les résultats obtenus ont permis l'identification des constantes cinétiques du modèle de Di-Blasi & Lanzetta présenté dans l'état de l'art.

IV.1. Etude thermogravimétrique

L'objectif de l'étude thermogravimétrique est d'évaluer l'impact de la température et de la durée de torréfaction sur la perte de masse d'un échantillon.

IV.1.1. Matériel et méthode utilisés

Le matériau utilisé pour cette étude est constitué de plaquettes séchées en étuve à 105 °C puis broyées finement à l'aide d'un cryobroyeur.

La thermo-balance (ou ATG) utilisée est une TG-ATD 92 (Setaram®, Caluire, France). Une masse de $30,6 \pm 1,0$ mg (pesée à 0,01 mg près) de bois est introduite dans un creuset en platine. Ce creuset est placé dans l'ATG qui, une fois fermée, est balayée avec de l'azote (2 NL/h) pour maintenir une atmosphère inerte et évacuer les matières volatiles. Un profil de température, présenté **Figure 68**, est alors imposé à l'échantillon et l'évolution de la masse du creuset est mesurée.

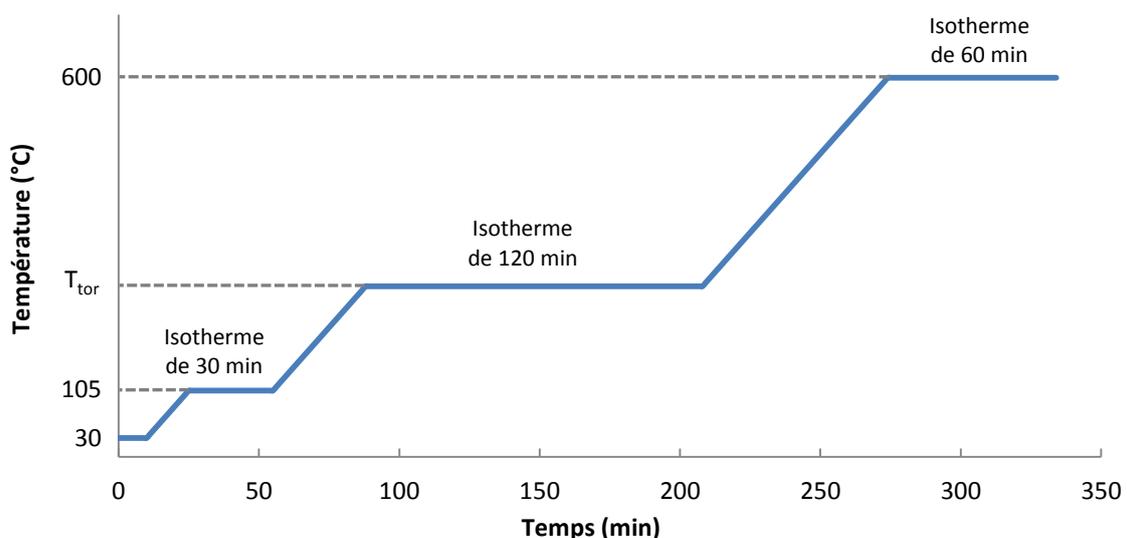


Figure 68 : Profil de température appliqué à la biomasse lors des essais en ATG.

Après stabilisation à 30 °C, la température augmente jusqu'à 105 °C. Un palier de 30 min à cette température permet l'évaporation de l'humidité résiduelle de la biomasse. Une nouvelle rampe de température est alors appliquée jusqu'à la température de torréfaction T_{tor} . A cette température, un nouveau palier est réalisé pendant 120 min. Pour finir, l'échantillon est porté à 600 °C avant d'être ramené à température ambiante.

Les paramètres de l'ensemble des essais sont rassemblés dans le **Tableau 19**.

Tableau 19 : Paramètres des essais ATG.

Essai	CIN1	CIN2	CIN3	CIN4	CIN5	CIN6	CIN7
Température T_{tor} (°C)	250	250	270	270	290	290	310
Vitesse de chauffe (°C/min)	5	5	5	5	5	15	5
Masse initiale (mg)	30,62	29,05	9,55	31,45	30,19	31,84	31,84

Quatre températures T_{tor} ont été étudiées afin de couvrir le domaine de la torréfaction. Les essais CIN1 et CIN2, réalisés dans des conditions identiques, seront utilisés pour évaluer la répétabilité. Les essais CIN3 et CIN4 permettront l'étude de l'influence de la masse initiale, et les essais CIN5 et CIN6 l'effet de la vitesse de chauffe. Pour chaque essai, un blanc (sans échantillon) a été réalisé pour prendre en compte l'influence de la montée en température de l'installation sur la masse mesurée. Les valeurs présentées sont les valeurs corrigées.

Le résultat brut obtenu pour l'essai CIN3 est présenté **Figure 69**.

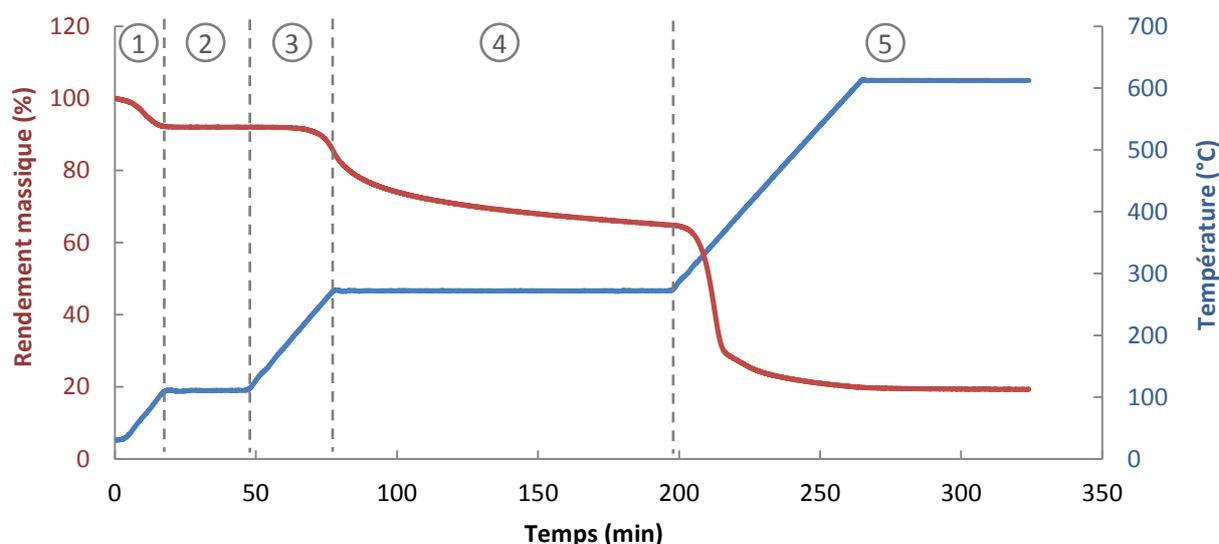


Figure 69 : Évolution de la température de l'échantillon et du rendement massique au cours de l'essai CIN3.

Le séchage semble achevé à la fin de la première montée en température (**zone 1**) ; l'évolution du rendement massique est très limitée lors du palier à 105 °C (**zone 2**). Le rendement massique à la fin de ce palier est appelé $\eta_{séchage}$ et vaut en moyenne $91,3 \pm 0,4 \%$ sur l'ensemble des essais. La perte de masse due à la dégradation thermique commence ensuite dans la **zone 3** mais ne devient significative que lorsque la température atteint environ 200 °C. La dégradation se poursuit dans la **zone 4** et la perte de masse est encore significative à la fin des 120 min de palier. La **zone 5** correspond à une phase de pyrolyse de la biomasse torréfiée ; la perte de masse a lieu principalement au cours de la montée en température.

Pour l'étude des cinétiques de torréfaction, seules les zones 1 à 4 sont conservées. Le rendement massique sur sec η (en %) est calculé suivant l'**Équation 82**.

$$\begin{cases} \eta = 100 \% & \text{pour les zones 1 et 2} \\ \eta = \frac{\eta_{brut}}{\eta_{séchage}} \times 100 & \text{pour les zones 3 et 4} \end{cases} \quad \text{Équation 82}$$

Où η_{brut} est le rendement sur base humide mesuré expérimentalement (en %).

IV.1.2. Résultats expérimentaux

Les résultats des essais CIN1, CIN2, CIN3 et CIN4 sont représentés **Figure 70**.

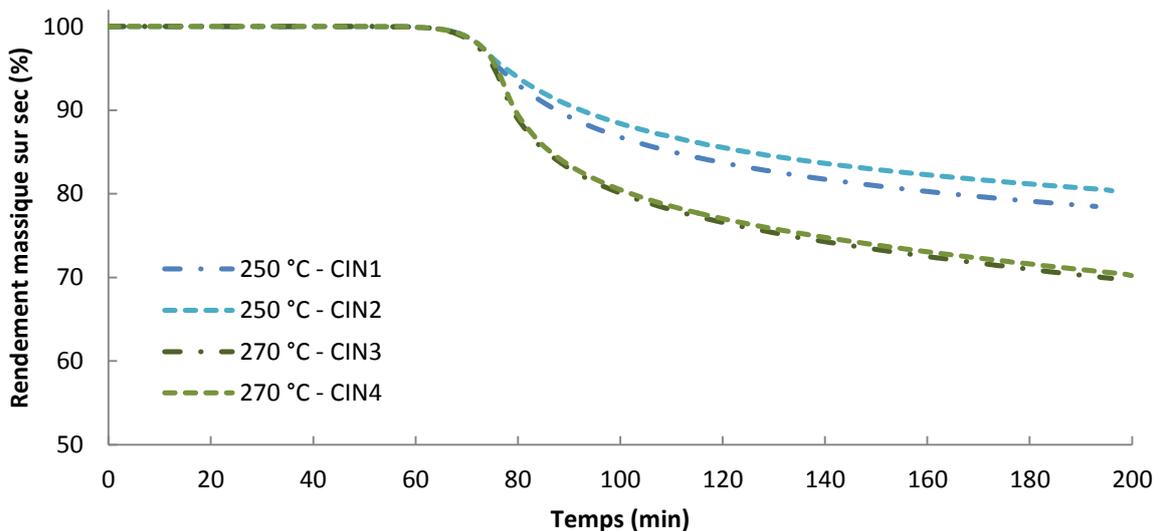


Figure 70 : Évaluation de la répétabilité des expériences et validation du régime cinétique.

Les deux échantillons traités à 250 °C (CIN1 et CIN2) présentent en fin de palier une différence de rendement de 2 %, ce qui correspond à une incertitude relative de 2,5 %. La répétabilité des essais est donc bonne.

Pour les deux essais à 270 °C (CIN3 et CIN4), les rendements diffèrent seulement de 0,7 % en fin de palier, soit une erreur relative de 1 %. La masse initialement introduite dans le creuset (9,55 et 31,45 mg pour les essais CIN3 et CIN4 respectivement) n'a donc pas d'influence significative sur les courbes de perte de masse. Il peut en être conclu que les transferts de chaleur et de masse au sein de la matière contenue dans le creuset ne sont pas limitants. Les courbes obtenues correspondent donc bien à une évolution de la matière en régime chimique intrinsèque.

Les résultats des autres essais sont regroupés **Figure 71**.

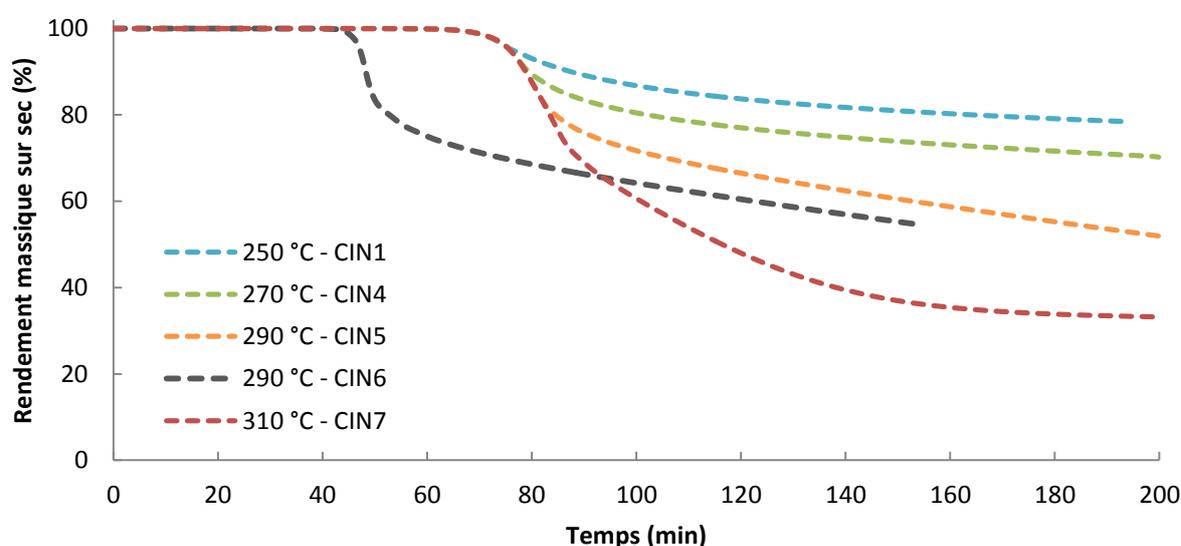


Figure 71 : Évolution du rendement massique sur sec lors de la torréfaction à différentes températures et avec différentes vitesses de chauffe.

La perte de masse pendant la montée en température est identique pour tous les échantillons. La vitesse de perte de masse diminue ensuite une fois les paliers de température atteints. Aucun échantillon n'a achevé sa dégradation en fin de palier et il apparaît que pour les échantillons traités à 250, 270 et 290 °C, la vitesse de dégradation en fin de palier augmente avec la température de traitement.

Le décalage entre les essais CIN5 et CIN6 est dû à la vitesse de montée en température qui modifie le temps nécessaire pour atteindre le palier. La cinétique est peu affectée par cette différence et les rendements en fin de palier sont sensiblement identiques.

L'échantillon traité à 310 °C montre un comportement plus singulier. Alors que les courbes obtenues lors des autres essais présentaient un seul point d'inflexion (en début de palier), la courbe de l'essai CIN7 en présente deux : un en début de palier et l'autre environ 1 h plus

tard. Ce comportement différent tend à prouver que pour les plus hautes températures de torréfaction, de nouvelles réactions apparaissent. De plus, la dégradation étant plus importante que lors des autres essais, la vitesse de perte de masse en fin de palier est quasiment nulle car la plupart des matières volatiles ont été extraites.

IV.2. Ajustement des paramètres du modèle de Di Blasi & Lanzetta

Différents comportements ont donc été observés lors des essais de torréfaction en thermobalance. L'objectif est désormais de mettre en équations les cinétiques de perte de masse afin de représenter au mieux les résultats expérimentaux. Lors de l'état de l'art, le modèle de Di Blasi & Lanzetta était apparu comme l'un des plus adaptés, de par sa simplicité et la qualité des résultats obtenus. Il a donc été décidé d'adapter ce modèle au bois de hêtre étudié ici.

IV.2.1. Mise en équation et méthode d'ajustement

Pour rappel, le modèle de Di Blasi et Lanzetta est présenté **Figure 72**.

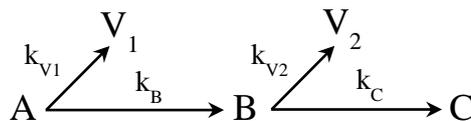


Figure 72 : Schéma cinétique de Di Blasi & Lanzetta.

Lors de la première étape, la biomasse brute A est décomposée en solide intermédiaire B et en matières volatiles V_1 . Le solide B est transformé en solide C et en matières volatiles V_2 lors de la deuxième étape. L'évolution de la masse des différents composés est régie par le système d'équations différentielles du premier ordre présenté **Équation 83**.

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dm_A}{dt} = -K_1 m_A \\ \frac{dm_B}{dt} = k_B m_A - K_2 m_B \\ \frac{dm_{V1}}{dt} = k_{V1} m_A \\ \frac{dm_C}{dt} = k_C m_B \\ \frac{dm_{V2}}{dt} = k_{V2} m_B \end{array} \right. \quad \text{Équation 83}$$

Avec m_i la masse du composé i et K_1 et K_2 les constantes définies **Équation 84**.

$$\left\{ \begin{array}{l} K_1 = k_{V1} + k_B \\ K_2 = k_{V2} + k_C \end{array} \right. \quad \text{Équation 84}$$

Les constantes de vitesse k_{V1} , k_B , k_{V2} et k_C suivent une loi d'Arrhenius ce qui implique que 8 paramètres cinétiques (4 facteurs pré-exponentiels et 4 énergies d'activation) doivent être déterminés. Afin de mener à bien cette détermination, une démarche en deux temps, dont le concept est présenté **Figure 73**, a été choisie.

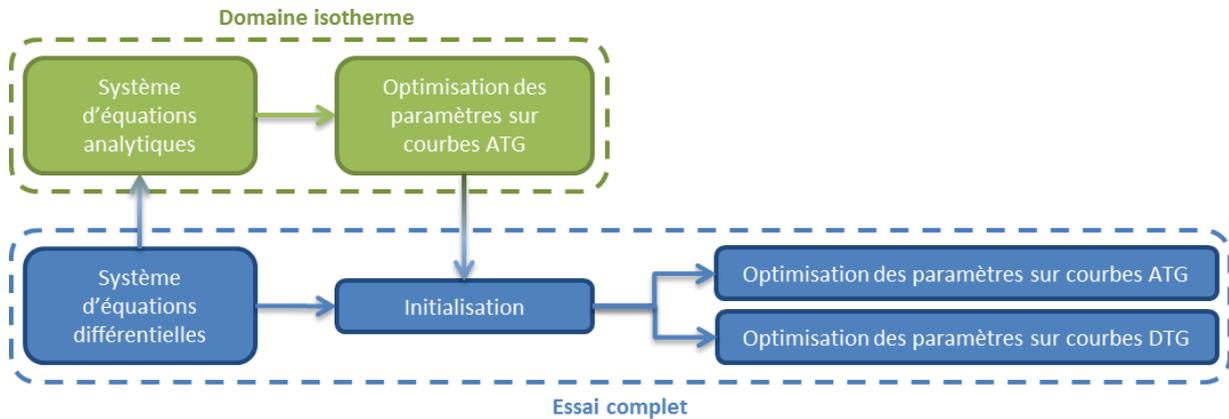


Figure 73 : Démarche adoptée pour la détermination des paramètres cinétiques.

Les paramètres sont dans un premier temps identifiés dans le domaine isotherme. En effet, lorsque la température ne varie pas, il est possible de résoudre le système présenté précédemment de manière analytique. Il prend alors la forme suivante :

$$\begin{cases} m_A(t) = m_0 e^{-K_1 t} \\ m_B(t) = \frac{k_B m_0}{K_1 - K_2} (e^{-K_2 t} - e^{-K_1 t}) \\ m_{V1}(t) = \frac{k_{V1} m_0}{K_1} (1 - e^{-K_1 t}) \\ m_C(t) = \frac{k_C k_B m_0}{(K_1 - K_2) K_1 K_2} (K_1 - K_2 - K_1 e^{-K_2 t} + K_2 e^{-K_1 t}) \\ m_{V2}(t) = \frac{k_{V2} k_B m_0}{(K_1 - K_2) K_1 K_2} (K_1 - K_2 - K_1 e^{-K_2 t} + K_2 e^{-K_1 t}) \end{cases} \quad \text{Équation 85}$$

Où m_0 est la masse initiale de solide. Le rendement massique est alors calculé à partir de la somme des masses des pseudo-composés solides A, B et C :

$$\eta(t) = \frac{m_A(t) + m_B(t) + m_C(t)}{m_0} \quad \text{Équation 86}$$

Les paramètres cinétiques sont déterminés pour minimiser l'écart entre le rendement massique expérimental et le rendement calculé sur l'ensemble des essais. Les résultats, présentés **Tableau 20**, sont alors utilisés comme valeurs d'initialisation pour une autre identification. Celle-ci prend en compte la totalité des essais, montées en température comprises. Deux types d'identification ont été testés lors de cette étape :

- L'un basé sur la minimisation de l'écart entre les rendements expérimentaux et calculés (courbes ATG),
- L'autre basé sur la minimisation de l'écart entre les dérivées de perte de masse expérimentales et calculées (courbes DTG).

Dans les deux cas, une stratégie de reparamétrisation a été appliquée. En effet, le rapport A_0/E_a est souvent supérieur à 1000, ce qui pose des problèmes numériques lors de la détermination simultanée de ces deux paramètres. La reparamétrisation proposée par Reverte [191] permet de pallier cette difficulté. A_r et E_r sont respectivement le facteur pré-exponentiel et l'énergie d'activation reparamétrisés suivant l'Équation 87.

$$\begin{cases} A_r = \ln(A_0) \\ E_r = \frac{E_a}{R_{GP}} \end{cases} \quad \text{Équation 87}$$

Les constantes de vitesse sont alors calculées de la manière suivante :

$$k = \exp(A_r) \cdot \exp\left(\frac{-E_r}{T}\right) \quad \text{Équation 88}$$

Par la suite, seules les valeurs « réelles » de A_0 et E_a seront présentées.

IV.2.2. Résultats de l'ajustement

Les paramètres déterminés lors des trois séries d'identifications paramétriques sont rassemblés dans le **Tableau 20**.

Tableau 20 : Paramètres cinétiques obtenus lors des trois identifications paramétriques.

Identification	Constante	k_{v1}	k_B	k_{v2}	k_C
Sur domaine isotherme	A_0 (s^{-1})	$2,22 \cdot 10^6$	$1,20 \cdot 10^9$	$1,38 \cdot 10^8$	1,09
	E_a ($kJ \cdot mol^{-1}$)	104	124	132	43
Sur résultats ATG	A_0 (s^{-1})	$2,76 \cdot 10^6$	$1,55 \cdot 10^9$	$2,04 \cdot 10^8$	1,15
	E_a ($kJ \cdot mol^{-1}$)	103	123	132	43
Sur résultats DTG	A_0 (s^{-1})	$3,23 \cdot 10^6$	$6,23 \cdot 10^8$	$8,93 \cdot 10^7$	1,05
	E_a ($kJ \cdot mol^{-1}$)	104	123	129	41

Pour simplifier l'analyse de ces résultats, les constantes de vitesse ont été tracées sur le graphique d'Arrhenius **Figure 74**.

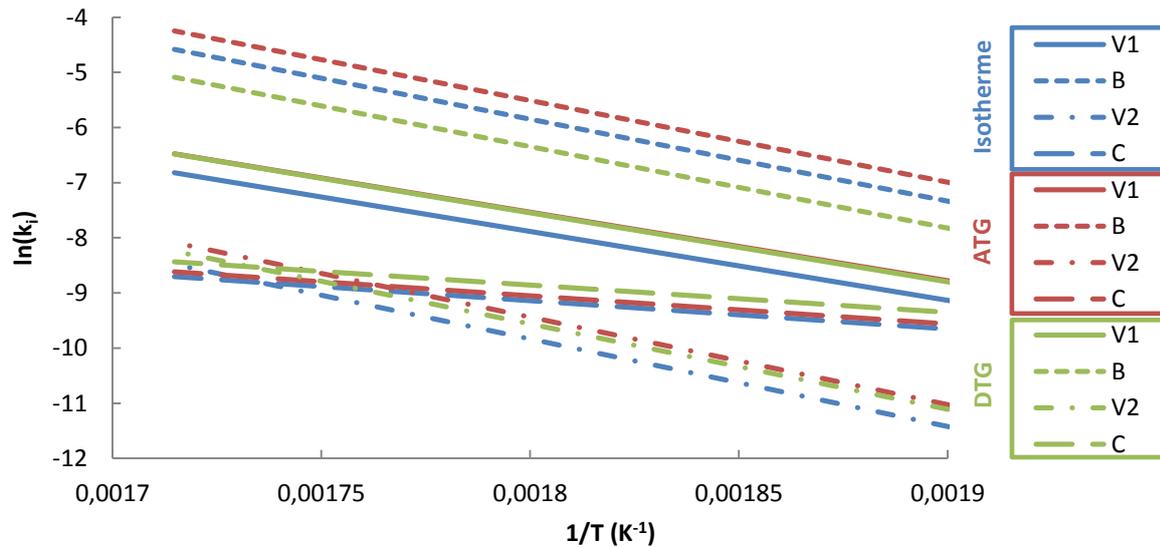


Figure 74 : Graphique d'Arrhenius pour les quatre constantes de vitesse dans le domaine 250-310 °C pour les trois identifications.

Pour chaque constante de vitesse, les droites correspondant aux trois identifications sont quasiment parallèles ce qui traduit que les énergies d'activation sont très proches. Les principales différences résident donc dans les valeurs des facteurs pré-exponentiels qui conditionnent l'ordonnée à l'origine des droites.

Dans les 3 cas, les deux réactions de la première étape du schéma cinétique sont les plus rapides sur le domaine de température considéré. De plus, comme $k_B > k_{V1}$, la réaction menant à la formation de solide est prépondérante par rapport à celle produisant des matières volatiles. Enfin, les droites correspondant aux réactions de la deuxième étape se croisent en un point situé entre 294 et 303 °C suivant le type d'identification considéré. Au-delà de cette température, la deuxième étape produit donc plus de matières volatiles que de solide.

L'objectif du modèle cinétique est de décrire la perte de masse dans le four. La majeure partie du cylindre étant utilisée pour la montée en température de la charge, le domaine de torréfaction isotherme est restreint, voire inexistant. Un choix doit donc être réalisé entre les deux jeux de paramètres établis sur les domaines de température complets.

Les courbes de rendements massiques obtenues avec les deux jeux de paramètres sont comparées aux résultats expérimentaux **Figure 75**.

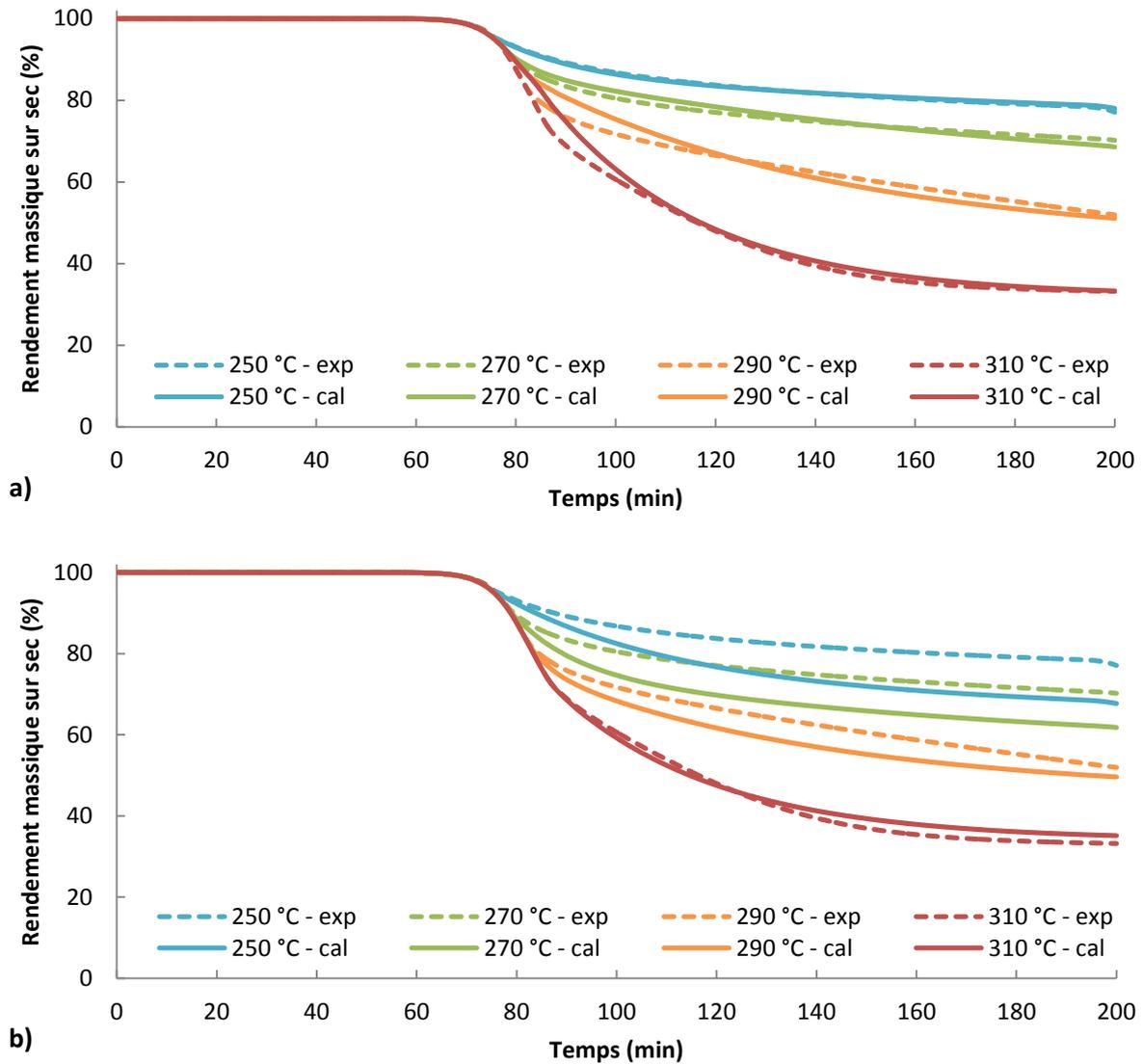


Figure 75 : Comparaison des rendements expérimentaux avec les rendements calculés après identification a) sur les courbes ATG et b) sur les courbes DTG.

Lorsque l'**identification des paramètres a été réalisée sur les courbes ATG**, le rendement calculé par le modèle représente très bien les résultats expérimentaux. Ceci est confirmé par les valeurs d'écart moyens et maximaux entre expérience et modèle présentés **Tableau 21**.

Tableau 21 : Écart absolu moyen et maximaux entre les résultats expérimentaux et les résultats du modèle pour les deux jeux de paramètres déterminés.

		CIN1	CIN2	CIN3	CIN4	CIN5	CIN6	CIN7
Identification ATG	Ecart moyen (%)	0,2	1,1	0,7	0,6	1,3	1,8	0,9
	Ecart maximal (%)	0,9	2,0	2,2	1,8	4,8	6,7	6,6
Identification DTG	Ecart moyen (%)	4,5	5,5	3,9	4,3	2,4	2,3	1,0
	Ecart maximal (%)	9,9	11,9	7,8	8,5	5,4	4,5	2,5

L'écart moyen est inférieur à 2 % pour l'ensemble des essais, ce qui est tout à fait acceptable étant donné que la répétabilité observée précédemment était également de 2 %. L'écart maximal est également faible aux plus basses températures de torréfaction (250 et 270 °C lors des essais CIN1 à CIN4) mais devient plus important pour les températures élevées (290 et 310 °C). Une hypothèse pour expliquer cette légère divergence est que ce modèle a été établi initialement pour représenter la perte de masse lors de la dégradation des hémicelluloses. Or, aux températures les plus élevées, les autres composants de la biomasse commencent à se décomposer.

Les résultats des dérivées du rendement sont également présentés **Figure 76**.

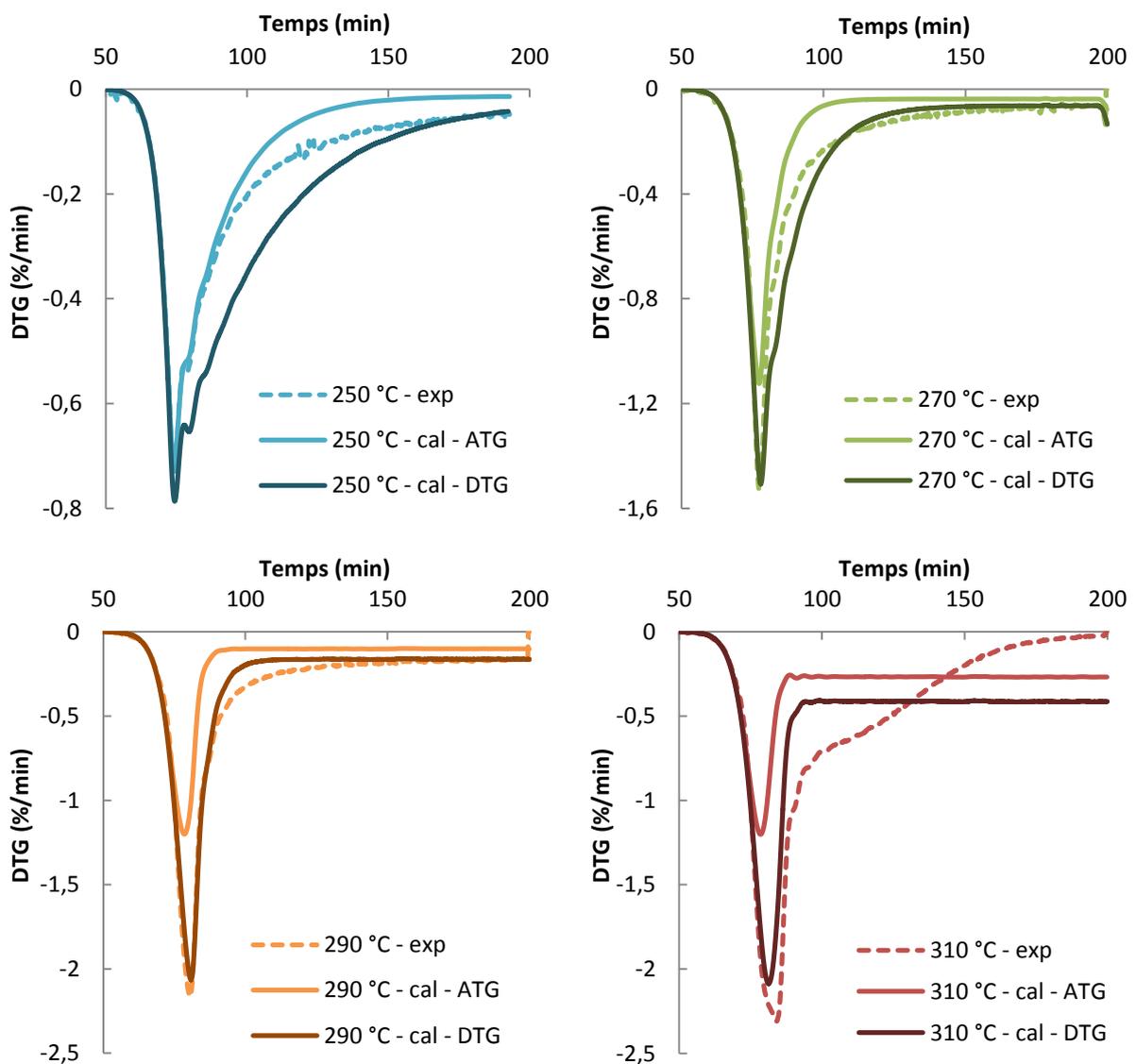


Figure 76 : Comparaison des courbes DTG obtenues expérimentalement et par calcul avec les deux jeux de paramètres.

Avec le jeu de paramètres déterminé sur les courbes ATG, les résultats expérimentaux sont représentés correctement pendant les 75 premières minutes mais le ralentissement prédit est bien plus brusque que celui observé expérimentalement. L'allure des courbes reste cependant acceptable aux basses températures. Pour l'essai à 310 °C, l'épaulement intervenant à environ 100 min (correspondant probablement au début de dégradation de la cellulose) n'est pas du tout représenté.

Lorsque l'**identification des paramètres a été réalisée sur les courbes DTG**, l'écart entre le rendement calculé et les valeurs expérimentales est très important (**Figure 75b**). Le modèle ne présente une légère amélioration de son pouvoir prédictif que pour l'essai à 310 °C. Pour les températures les plus faibles, l'écart expérience/modèle se creuse avec des écarts moyens 5 fois plus grands que ceux obtenus par l'identification sur les courbes ATG. L'amélioration est, par contre, conséquente sur la prévision des dérivées du rendement, ce qui paraît cohérent. Cependant, l'objectif du modèle étant de prédire avec précision la perte de masse, les résultats de cette identification ne seront pas utilisés par la suite. Il faut également noter qu'une identification ayant pour objectif de minimiser simultanément l'écart entre les résultats ATG et les résultats DTG a été testée. Le résultat final n'étant pas concluant, il ne sera pas présenté ici.

Pour finir, l'évolution des fractions massiques des différents pseudo-composés du modèle de Di Blasi & Lanzetta est présentée **Figure 77**, pour les 4 températures de torréfaction étudiées. Par définition, le solide brut est initialement composé uniquement de solide A qui est rapidement dégradé lors de la montée en température. Plus la température de traitement est élevée, plus la dégradation est rapide. Cette dégradation se traduit par une production massive de l'intermédiaire solide B et d'une production plus restreinte de volatiles V_1 . La température influence peu la répartition entre ces deux espèces. Peu avant la disparition totale du composé A, le composé B entame sa décomposition pour former le composé solide C et les volatiles V_2 . Pour les températures inférieures à 290 °C, la production de C est supérieure à celle de V_2 , ce qui explique le plus fort rendement massique total de la torréfaction. A 290 °C, ces deux productions sont équivalentes, ce qui correspond au croisement des courbes de la **Figure 74** avec $k_c = k_{V_2}$. A 310 °C, la production de V_2 est majoritaire. Enfin, le rendement en B en fin d'expérience est d'autant plus faible que la température de torréfaction est élevée.

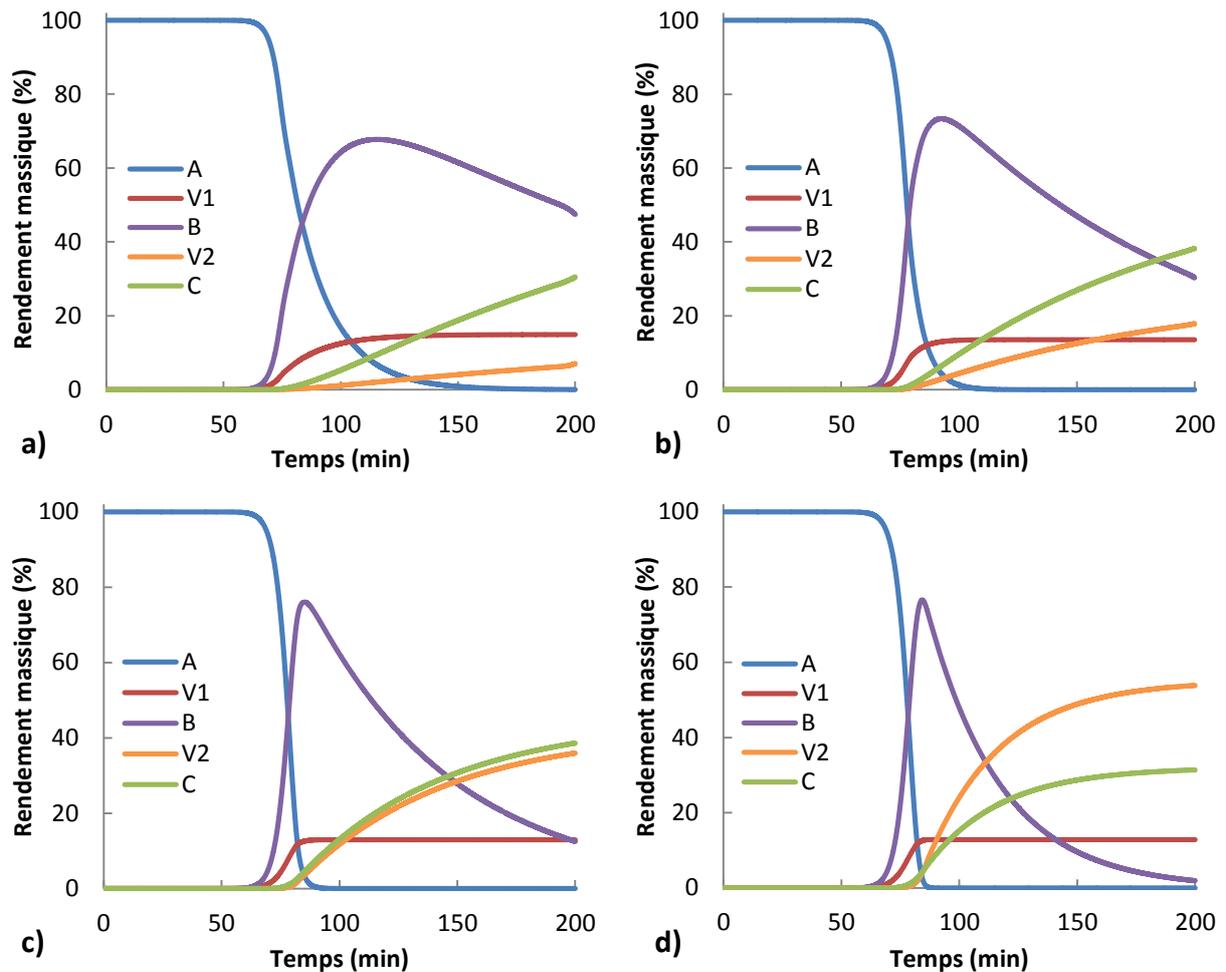


Figure 77 : Évolution des rendements des différents pseudo-composants lors de la torréfaction à a) 250 °C, b) 270 °C, c) 290 °C et d) 310 °C.

Ces évolutions sont cohérentes et devraient permettre de représenter efficacement la perte de masse du bois quelle que soit la température de torréfaction.

IV.3. Intégration au modèle de four tournant

Bien que les cinétiques de torréfaction aient été établies en régime chimique intrinsèque, il a été décidé de les utiliser directement dans le modèle de torréfaction en four tournant. Il est donc considéré que les transferts de chaleur et de masse au sein des particules ne sont pas limitants. Cette hypothèse forte est appuyée sur le fait que les particules sont de petites tailles et que les vitesses de chauffe mises en œuvre dans le four tournant sont faibles (Voir l'étude par temps caractéristiques, **Annexe 5**).

Le modèle cinétique présenté précédemment est réécrit sous la forme proposée par Descoins [134] pour être intégré au modèle de four tournant :

$$\left\{ \begin{array}{l} V_s \frac{d\rho_A}{dz} = \dot{r}_A \\ V_s \frac{d\rho_B}{dz} = \dot{r}_B \\ V_s \frac{d\rho_C}{dz} = \dot{r}_C \\ \frac{d\dot{m}_{V1}}{dz} = \dot{R}_{V1} \\ \frac{d\dot{m}_{V2}}{dz} = \dot{R}_{V2} \end{array} \right. \quad \text{Équation 89}$$

Les vitesses de réaction \dot{r} sont exprimées en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$. Dans le cas des espèces volatiles, il apparait plus commode d'exprimer ces vitesses en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. Les vitesses sont alors nommées \dot{R} et permettent le calcul des débits massiques de matières volatiles dégagées \dot{m}_V (en $\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$). Les expressions des différentes vitesses sont proposées **Équation 90**.

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{r}_A = -(k_{V1} + k_B)\rho_A \\ \dot{r}_B = k_B\rho_A - (k_{V2} + k_C)\rho_B \\ \dot{r}_C = k_C\rho_B \\ \dot{R}_{V1} = k_{V1}\rho_A S_s \\ \dot{R}_{V2} = k_{V2}\rho_B S_s \end{array} \right. \quad \text{Équation 90}$$

Les réactions de torréfaction ont également un impact sur la température des différentes phases. En effet, en affectant une chaleur de réaction ΔH_i (en J/kg) à chaque réaction i , le terme source de la phase solide $\dot{\theta}_S$ (en W/m^3) est calculé suivant l'**Équation 91**.

$$\dot{\theta}_S = \rho_A k_{V1} \Delta H_{V1} + \rho_A k_B \Delta H_B + \rho_B k_{V2} \Delta H_{V2} + \rho_B k_C \Delta H_C \quad \text{Équation 91}$$

Les valeurs des chaleurs de réaction seront discutées au chapitre suivant.

Enfin, le dégagement des matières volatiles (à la température du solide) implique un apport de chaleur à la phase gaz. Le terme source correspondant est $\dot{\theta}_g^{mv}$.

$$\dot{\theta}_g^{mv} = \frac{(\dot{R}_{V1} + \dot{R}_{V2}) C_{p,mv} (T_s - T_g)}{S_g} \quad \text{Équation 92}$$

$C_{p,mv}$ est la capacité thermique des matières volatiles dont le calcul sera présenté **Chapitre 4** et S_g est la section de passage du gaz.

IV.4. Conclusions du modèle cinétique

Les analyses thermogravimétriques ont permis l'étude de l'influence de la température et de la durée de torréfaction sur le rendement massique du hêtre. Les données expérimentales ainsi obtenues ont été utilisées pour déterminer les constantes cinétiques du modèle de Di

Blasi & Lanzetta. Une démarche en deux temps a été adoptée pour approcher le plus efficacement possible ces constantes cinétiques :

- Les constantes ont tout d'abord été déterminées dans le **domaine isotherme** : les rendements des différents pseudo-composés peuvent ainsi être exprimés de manière analytique ce qui facilite la détermination des constantes.
- Les résultats obtenus ont ensuite été utilisés pour initialiser l'identification dans le **domaine complet** de dégradation : les expressions des rendements sont alors sous forme différentielle. Deux voies ont été testées pour mener à bien cette résolution : l'une consistait à minimiser l'écart entre les courbes de pertes de masse expérimentales et calculées alors que l'autre était basée sur l'écart entre les courbes de vitesses de pertes de masse.

En conclusion, le jeu de paramètres optimaux a été obtenu lors de l'utilisation des courbes de perte de masse, et représente les résultats expérimentaux avec une précision du même ordre de grandeur que l'incertitude expérimentale. Les résultats sont donc tout à fait satisfaisants et seront utilisés pour alimenter le modèle de torréfaction en four tournant.

V. Conclusions générales de la modélisation

La méthode adoptée pour l'établissement du modèle de torréfaction en four tournant est la décomposition en sous-modèles représentant les différents phénomènes intervenant dans le procédé.

L'**écoulement** des plaquettes de bois a été étudié par la réalisation d'essais de distribution des temps de séjour. Ces essais ont montré que l'écoulement est de type piston avec faible dispersion axiale, malgré la mise en évidence de phénomènes de ségrégation dans certaines conditions opératoires. Des essais similaires ont été menés avec des plaquettes de bois torréfié et la comparaison de l'écoulement de ces deux types de biomasses n'a pas fait ressortir de différence significative. Un modèle tiré de la littérature a ensuite été modifié afin de représenter fidèlement les résultats de temps de séjour moyen obtenus dans le four tournant pilote. Un dispositif expérimental basé sur l'analyse d'images a également permis d'identifier les profils de chargement du cylindre qui ont été comparés avec succès aux résultats du modèle. Le modèle d'écoulement permet le calcul des surfaces d'échange entre les différentes phases et des profils de vitesse du solide et du gaz le long du four.

Le **modèle de transferts thermiques** a été établi par assemblage de coefficients de transferts disponibles dans la littérature. Le coefficient d'échange paroi-lit, prépondérant lorsque la chauffe du solide est indirecte, a été sélectionné afin de représenter au mieux les profils de température de la charge lors d'essais de chauffe de biomasse sèche. Ces essais ont été menés à des températures où les réactions de décomposition sont inexistantes. Le modèle obtenu montre notamment que le rayonnement n'est pas négligeable dans cette configuration de four tournant.

L'approche choisie pour l'élaboration du **modèle de séchage** est expérimentale. Des essais ont été menés dans le four tournant pilote et un dispositif a été développé pour réaliser des prélèvements à différentes positions le long du four. Des profils d'humidité de la biomasse ont ainsi été obtenus pour différentes conditions opératoires. La méthode de la courbe caractéristique de séchage a ensuite été appliquée et permet de calculer le profil d'humidité le long du four en fonction des conditions opératoires.

Le **modèle cinétique** de la torréfaction a été déterminé par ajustement d'un modèle « classique » sur des courbes de perte de masse obtenues par analyse thermogravimétrique. Une méthode originale a été proposée pour obtenir une bonne représentation des résultats expérimentaux. Deux approches ont été testées : l'une consistait à minimiser l'écart entre les courbes d'ATG et l'autre à minimiser l'écart entre les courbes de DTG. Les résultats optimaux ont été obtenus avec les courbes ATG. La perte de masse est alors correctement représentée pour des profils de température anisothermes dans le domaine 250 – 310 °C.

Chapitre 4 : Implémentation et validation expérimentale du modèle global

Après avoir été identifiés, les différents phénomènes intervenant lors de la torréfaction en four tournant ont été modélisés séparément (voir **Chapitre 3**). L'objectif de ce chapitre est donc de présenter les modalités d'assemblage des sous-modèles dans un modèle global. Des essais de torréfaction en four tournant pilote, dont les résultats sont présentés ici, ont également été menés. Dans un premier temps, ces essais ont permis d'identifier l'influence des principaux paramètres opératoires sur la température du lit et sur le rendement du procédé. Ils ont ensuite été utilisés comme référence pour la validation du modèle. Cette confrontation modèle/expérience met en évidence les points forts mais également les limites du modèle développé dans ces travaux. Enfin, une étude de sensibilité du modèle aux différents paramètres ainsi qu'un bilan énergétique basé sur les résultats des simulations ont été réalisés.

I. Implémentation du modèle global de torréfaction en four tournant

I.1. Résumé de la structure du modèle

La structure générale du modèle de torréfaction en four tournant est schématisée **Figure 78**.

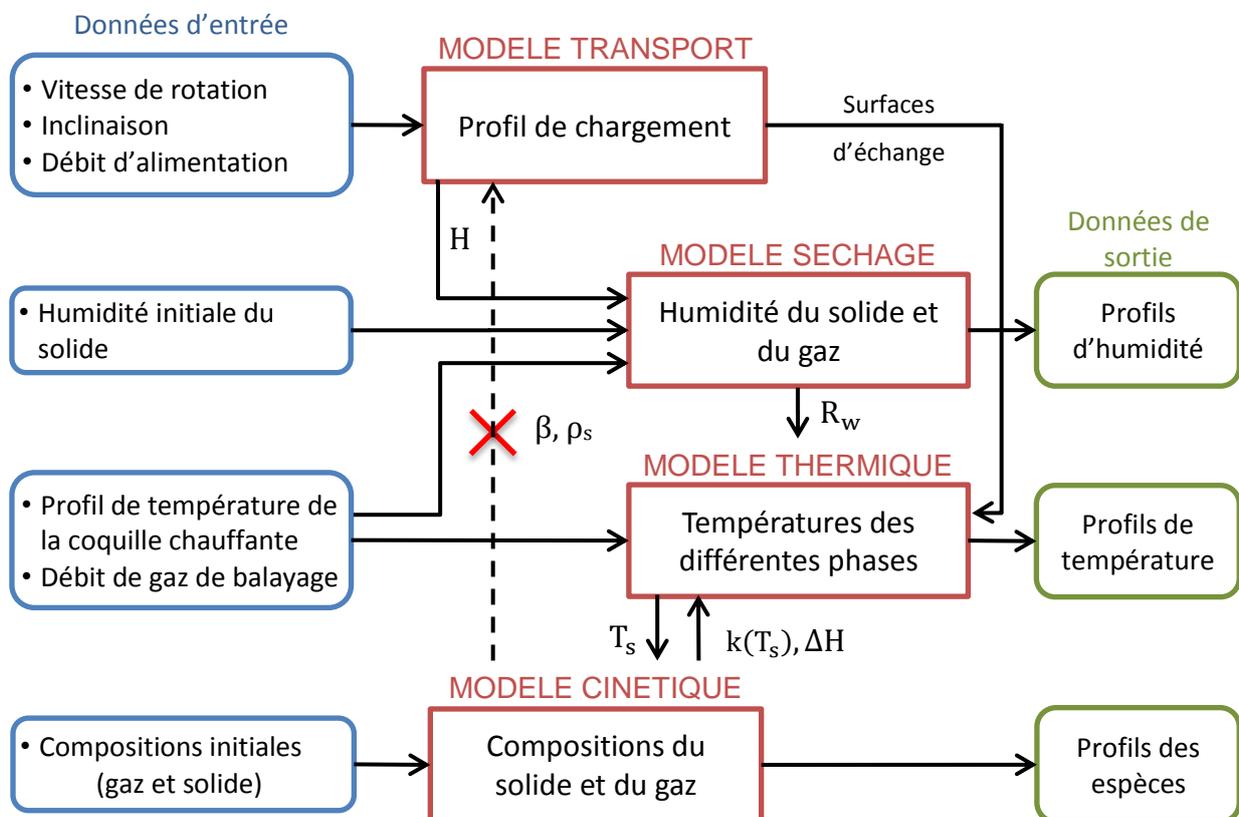


Figure 78 : Représentation schématique du modèle de torréfaction en four tournant.

Les données d'entrée du modèle sont les paramètres opératoires du four (vitesse de rotation, inclinaison et débit d'alimentation), le profil de température estimé de la coquille chauffante, le débit de gaz de balayage et les compositions initiales de la biomasse et du gaz.

Le modèle de transport permet le calcul du profil de chargement du cylindre, à partir duquel sont déduites les surfaces d'échange entre les différentes phases. Ces surfaces alimentent le modèle de transferts thermiques qui calcule les températures de la paroi, du lit de plaquettes et du gaz. Ces températures sont également influencées par la vitesse de séchage calculée indépendamment. Enfin, la température du solide est utilisée pour le calcul des constantes cinétiques qui déterminent la vitesse de dégradation de la biomasse. L'énergie dégagée ou consommée par les réactions influence également la température de la phase solide.

Il existe théoriquement une interaction entre le modèle cinétique et le modèle de transport *via* les modifications de la masse volumique apparente et de l'angle de repos dynamique du lit de plaquettes. Comme aucune différence significative n'a été observée à ce niveau entre le bois brut et le bois torréfié, cette interaction est ici inexistante. Le retrait volumique dû au séchage est également négligé.

Les grandeurs de sortie du modèle sont :

- Le profil de chargement du cylindre (évolution de la hauteur du lit de plaquettes),
- Les profils d'humidité du solide et du gaz le long du four,
- Les profils de température de la charge solide, de la paroi et du gaz,
- Les profils de masse volumique des espèces solides et de débit massique des espèces gazeuses.

Les résultats qui pourront être comparés aux valeurs expérimentales sont le rendement massique en bois torréfié en sortie du four, calculé à partir des masses volumiques des espèces solides, et la température du lit de plaquettes en 3 points.

Les équations prenant en compte l'ensemble de ces phénomènes sont synthétisées dans le **Tableau 22** (le détail de la mise en équations est présenté en **Annexe §II**). Les conditions aux limites sont également données.

Tableau 22 : Résumé des équations constitutives du modèle de torréfaction en four tournant.

Équation de transport	Lit de particules	$\begin{cases} \frac{dh(z)}{dz} = \frac{3\dot{Q}_v^{C_Q} \tan(\beta)}{4\pi\omega^{C_\omega} R^3} \left(\frac{2h}{R} - \frac{h^2}{R^2} \right)^{-3/2} - \frac{\tan^{C_\alpha}(\alpha)}{\cos(\beta)} \\ h(z=L) = d_p \end{cases}$
	Solide	$\begin{cases} \rho_s(C_{p,s} + XC_{p,eau})V_s \frac{dT_s}{dz} = \lambda_s \frac{d^2T_s}{dz^2} + \frac{\Phi_s}{\Omega_s} - L_v R_w \rho_s - \dot{\theta}_s \\ T_s(z=0) = T_{amb} \\ \left. \frac{dT_s}{dz} \right _{z=L} = 0 \end{cases}$
Équations de conservation de l'énergie	Gaz	$\begin{cases} \rho_g(C_{p,g} + YC_{p,vap})V_g \frac{dT_g}{dz} = \frac{\Phi_g}{\Omega_g} + C_{p,vap} R_w \rho_s \frac{S_s}{S_g} (T_s - T_g) + \dot{\theta}_g^{mv} \\ T_g(z=0) = T_{amb} \end{cases}$
	Paroi	$\begin{cases} -\lambda_p \frac{d^2T_p}{dz^2} = \frac{\Phi_p}{\Omega_p} \\ \left. \frac{dT_p}{dz} \right _{z=0} = 0 \\ \left. \frac{dT_p}{dz} \right _{z=L} = 0 \end{cases}$
	Humidité de la biomasse	$\begin{cases} V_s \frac{dX}{dz} = -R_w \\ X(z=0) = X_{ini} \end{cases}$
	Humidité du gaz	$\begin{cases} \dot{m}_{gaz} \frac{dY}{dz} = \rho_s S_s R_w \\ Y(z=0) = 0 \end{cases}$
Équations de conservation de la masse	Solide A	$\begin{cases} V_s \frac{d\rho_A}{dz} = \dot{r}_A \\ \rho_A(z=0) = \rho_s \end{cases}$
	Solide B	$\begin{cases} V_s \frac{d\rho_B}{dz} = \dot{r}_B \\ \rho_B(z=0) = 0 \end{cases}$
	Solide C	$\begin{cases} V_s \frac{d\rho_C}{dz} = \dot{r}_C \\ \rho_C(z=0) = 0 \end{cases}$
	Volatiles V ₁	$\begin{cases} \frac{d\dot{m}_{V1}}{dz} = \dot{R}_{V1} \\ \dot{m}_{V1}(z=0) = 0 \end{cases}$
	Volatiles V ₂	$\begin{cases} \frac{d\dot{m}_{V2}}{dz} = \dot{R}_{V2} \\ \dot{m}_{V2}(z=0) = 0 \end{cases}$

Il est nécessaire de résoudre simultanément 11 équations différentielles dont 9 sont du premier ordre et 2 du second ordre. La résolution est effectuée avec le logiciel Matlab® à l'aide de la fonction BVP4C évoquée précédemment.

Jusqu'ici, la phase gaz était assimilée à un mélange de diazote et d'eau provenant du séchage. Cependant, les propriétés de cette phase étant fortement dépendantes de sa composition, il a été décidé d'affiner cet aspect du modèle comme détaillé ci-dessous.

I.2. Évolution des propriétés de la phase gaz

Le modèle de torréfaction en four tournant n'a pas pour objectif de prédire la composition de la phase gaz. Cependant, il apparaît important de prendre en compte cette composition pour estimer au mieux les propriétés thermiques du gaz. La méthode adoptée pour calculer ces propriétés est présentée dans cette partie.

La phase gaz est constituée du diazote utilisé pour le balayage, de la vapeur d'eau produite par le séchage et des matières volatiles issues de la décomposition de la biomasse. En l'absence de données expérimentales sur la composition de ces matières volatiles, les données ont été extraites de la littérature. En effet, comme précisé au **Chapitre 1**, Nocquet *et al.* [18] ont utilisé une biomasse similaire (même essence et même fournisseur), et ont réalisé le bilan des espèces condensables et incondensables produites lors de la torréfaction. Les résultats sont disponibles pour des températures de traitement de 220, 250, 280 et 300 °C. Ici, par souci de simplicité, une moyenne des teneurs en matières volatiles à ces 4 températures a été utilisée. Les valeurs retenues sont présentées dans le **Tableau 23**.

Tableau 23 : Composition massique des matières volatiles produites lors de la torréfaction (en %).

Dioxyde de carbone	Monoxyde de carbone	Méthanol	Furfural	Formaldéhyde	Eau	Acide acétique	Acide formique
10,95	2,85	4,63	0,51	19,87	42,24	15,51	3,44

Il est donc fait l'hypothèse que les matières volatiles ont une composition fixe, indépendante du temps de traitement et de la température. Connaissant cette répartition, la quantité d'eau évaporée lors du séchage et le débit d'azote, il est possible de calculer la composition de la phase gaz.

La capacité thermique, la conductivité et la viscosité de ces gaz sont calculées suivant l'**Équation 93** [176].

$$\left\{ \begin{array}{l} C_{p,i} (\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}) = \left[A_i + B_i \left(\frac{C_i}{T \sinh(C_i/T)} \right)^2 + D_i \left(\frac{E_i}{T \sinh(E_i/T)} \right)^2 \right] \times \frac{1000}{M_i} \\ \lambda_i (\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}) = \frac{AA_i \cdot T^{BB_i}}{CC_i + DD_i/T + EE_i/T^2} \\ \mu_i (\text{Pa} \cdot \text{s}) = \frac{AAA_i \cdot T^{BBB_i}}{CCC_i + DDD_i/T} \times 1/1000 \end{array} \right. \quad \text{Équation 93}$$

Où M_i est la masse molaire de l'espèce i en g/mol et T la température en Kelvin.

Les coefficients de ces équations pour les différents gaz sont rassemblés dans le **Tableau 24**.

Tableau 24 : Coefficients utilisés pour le calcul des propriétés des matières volatiles [176].

	CO2	CO	Méthanol	Furfural	Form-aldéhyde	H2O	Acide acétique	Acide formique
A_i	$2,94 \cdot 10^1$	$2,91 \cdot 10^1$	$3,93 \cdot 10^1$	$4,73 \cdot 10^1$	$3,33 \cdot 10^1$	$3,34 \cdot 10^1$	$4,02 \cdot 10^1$	$3,38 \cdot 10^1$
B_i	$3,45 \cdot 10^1$	8,77	$8,79 \cdot 10^1$	$1,98 \cdot 10^2$	$4,95 \cdot 10^1$	$2,68 \cdot 10^1$	$1,37 \cdot 10^2$	$7,59 \cdot 10^1$
C_i	$1,43 \cdot 10^3$	$3,09 \cdot 10^3$	$1,92 \cdot 10^3$	$1,04 \cdot 10^3$	$1,87 \cdot 10^3$	$2,61 \cdot 10^3$	$1,26 \cdot 10^3$	$1,19 \cdot 10^3$
D_i	$2,64 \cdot 10^1$	8,46	$5,37 \cdot 10^1$	$1,09 \cdot 10^2$	$2,81 \cdot 10^1$	8,90	$7,00 \cdot 10^1$	$3,18 \cdot 10^1$
E_i	$5,88 \cdot 10^2$	$1,54 \cdot 10^3$	$8,97 \cdot 10^2$	$4,73 \cdot 10^2$	$9,35 \cdot 10^2$	$1,17 \cdot 10^3$	$5,70 \cdot 10^2$	$5,50 \cdot 10^2$
AA_i	3,69	$5,99 \cdot 10^{-4}$	-7,76	$1,98 \cdot 10^{-4}$	$4,48 \cdot 10^1$	$6,93 \cdot 10^{-5}$	$1,69 \cdot 10^{-6}$	$3,75 \cdot 10^{-4}$
BB_i	$-3,84 \cdot 10^{-1}$	$6,86 \cdot 10^{-1}$	1,03	$9,29 \cdot 10^{-1}$	$-7,10 \cdot 10^{-1}$	1,13	1,67	$8,46 \cdot 10^{-1}$
CC_i	1	1	1	1	1	1	1	1
DD_i	$9,64 \cdot 10^2$	$5,71 \cdot 10^1$	$-7,44 \cdot 10^7$	$6,95 \cdot 10^2$	$-3,49 \cdot 10^3$	$8,48 \cdot 10^2$	$6,58 \cdot 10^2$	$6,74 \cdot 10^2$
EE_i	$1,86 \cdot 10^6$	$5,02 \cdot 10^2$	$6,77 \cdot 10^9$	0	$5,35 \cdot 10^6$	$-1,50 \cdot 10^5$	$-9,54 \cdot 10^4$	0
AAA_i	$2,15 \cdot 10^{-3}$	$1,11 \cdot 10^{-3}$	$3,07 \cdot 10^{-4}$	$5,02 \cdot 10^{-5}$	$4,76 \cdot 10^{-4}$	$1,79 \cdot 10^{-4}$	$2,74 \cdot 10^{-5}$	$2,86 \cdot 10^{-4}$
BBB_i	$4,60 \cdot 10^{-1}$	$5,34 \cdot 10^{-1}$	$6,97 \cdot 10^{-1}$	$9,16 \cdot 10^{-1}$	$6,41 \cdot 10^{-1}$	$8,13 \cdot 10^{-1}$	1,01	$6,96 \cdot 10^{-1}$
CCC_i	1	1	1	1	1	1	1	1
DDD_i	$2,90 \cdot 10^2$	$9,47 \cdot 10^1$	$2,05 \cdot 10^2$	$4,51 \cdot 10^1$	$1,62 \cdot 10^2$	$3,05 \cdot 10^2$	7,49	$1,84 \cdot 10^2$

Les propriétés de la phase gaz sont considérées comme la moyenne des propriétés des différents composants, pondérée par leur fraction massique respective.

I.3. Ajustement des chaleurs de réaction

Le calcul du terme source θ_s nécessite de connaître les chaleurs de réaction. En l'absence de consensus quant aux valeurs de ces chaleurs dans la littérature, il a été choisi de les considérer comme des paramètres d'ajustement du modèle. Elles ont donc été déterminées par méthode inverse.

D'après l'état de l'art (**Chapitre 1** §II.4.1), les réactions menant à la formation de matières volatiles sont endothermiques alors que celles menant à la formation de solide sont exothermiques. Il a donc été décidé de déterminer un couple de chaleurs de réaction (ΔH_{MV} , ΔH_S) appliquées aux réactions produisant les matières volatiles et le solide respectivement. Selon les notations de l'**Équation 91**, ΔH_{MV} et ΔH_S vérifient l'**Équation 94**.

$$\begin{cases} \Delta H_{V1} = \Delta H_{V2} = \Delta H_{MV} \geq 0 \\ \Delta H_B = \Delta H_C = \Delta H_S \leq 0 \end{cases} \quad \text{Équation 94}$$

Deux possibilités étaient envisageables pour l'ajustement de ces chaleurs de réaction :

- Minimiser l'écart entre les trois températures mesurées expérimentalement et les températures calculées par le modèle,
- Minimiser l'écart entre les rendements massiques expérimentaux et prédits en sortie du four.

Les temps de calcul associés au processus d'optimisation sont très importants en raison des nombreuses itérations (plusieurs centaines, la résolution complète du modèle du four tournant étant réalisée 9 fois pour chacune d'entre elles). La stratégie suivante a donc été adoptée. Plusieurs couples de chaleurs de réaction ont été sélectionnés et évalués dans un processus de type "essais / erreurs". Il a alors été constaté qu'une bonne précision sur la prédiction des profils de température entraînait une perte considérable de précision sur l'évaluation du rendement. Par contre, lorsque le rendement est choisi comme critère d'optimisation, les profils de températures calculés montrent des écarts acceptables avec l'expérience. Le couple de chaleurs de réaction ainsi choisi, le processus d'optimisation numérique, basé sur la minimisation de l'écart entre les rendements expérimentaux et prédits, a été effectué pour affiner les valeurs optimales des chaleurs. Les valeurs obtenues seront présentées suite à l'étude expérimentale.

II. Étude expérimentale de la torréfaction de bois humide en four tournant

II.1. Choix des paramètres opératoires

La vitesse de rotation, l'inclinaison et le débit d'alimentation ont précédemment été corrélés au temps de séjour et au taux de remplissage moyens. Par conséquent, les paramètres opératoires dont l'influence sera discutée ici sont :

- Le temps de séjour moyen \bar{t}_s ,
- Le taux de remplissage moyen H ,
- La température de consigne T_{cons} .

Neuf essais, dont les caractéristiques sont présentées dans le **Tableau 25**, ont été réalisés.

Tableau 25 : Paramètres opératoires des essais de torréfaction en four tournant (TFT) et principaux résultats obtenus (rendement massique η , température mesurée maximale T_{max} et numéro du thermocouple TC_{max} ayant mesuré T_{max}).

Essai	Paramètres						Résultats		
	T_{cons} (°C)	α (°)	ω (tr/min)	\dot{Q} (kg/h)	H (%)	\bar{t}_s (min)	η (%)	T_{max} (°C)	TC_{max}
TFT1	250	2	2	4	10,8	66,7	98,3	238	5
TFT2	280	2	2	4	10,8	66,7	83,6	286	5
TFT3	280	2	4	4	5,2	32,7	89,4	277	5
TFT4	280	2	4	8	10,6	33,0	87,1	287	6
TFT5	270	2	2	4	10,8	66,7	88,2	270	5
TFT6	300	2	2	4	10,8	66,7	75,0	304	5
TFT7	270	1,5	3	6	13,0	54,4	89,8	260	5
TFT8	270	1,5	3	8	18,1	55,9	88,7	277	6
TFT9	280	2	5,5	5,5	4,9	21,8	92,4	269	5

L'influence du débit d'azote sur le procédé de torréfaction n'est pas étudiée ici. Un faible débit (800 NL/h) est donc utilisé afin d'éviter l'entrée d'air dans le four. Ce débit est injecté à différentes positions selon la répartition suivante :

- Trémie d'alimentation : 200 NL/h,
- Extrémité du couloir vibrant + bride transparente : 400 NL/h,
- Joint tournant d'entrée : 200 NL/h,
- Joint tournant de sortie : 200 NL/h.

L'azote injecté au niveau du joint tournant de sortie n'est pas comptabilisé comme gaz de balayage car il est évacué directement vers l'oxydateur thermique sans circuler dans le cylindre.

II.2. Résultats expérimentaux

Les principaux résultats obtenus lors de ces essais sont également résumés dans le **Tableau 25**. Le rendement expérimental a été déterminé comme présenté **Équation 43** et la température mesurée maximale (ainsi que la position du thermocouple l'ayant mesurée) ont été identifiés au cours du régime permanent.

II.2.1. Influence de la température de consigne

L'influence de la température de consigne peut être observée en comparant les essais TFT1, TFT2, TFT5 et TFT6. Ces essais ont été réalisés avec des conditions d'écoulement identiques (même temps de séjour et même taux de remplissage) et avec des températures de consigne de 250, 280, 270 et 300 °C respectivement.

Les essais TFT1 et TFT2 ont été réalisés consécutivement. L'évolution des températures de la phase solide lors de ces essais est présentée **Figure 79**.

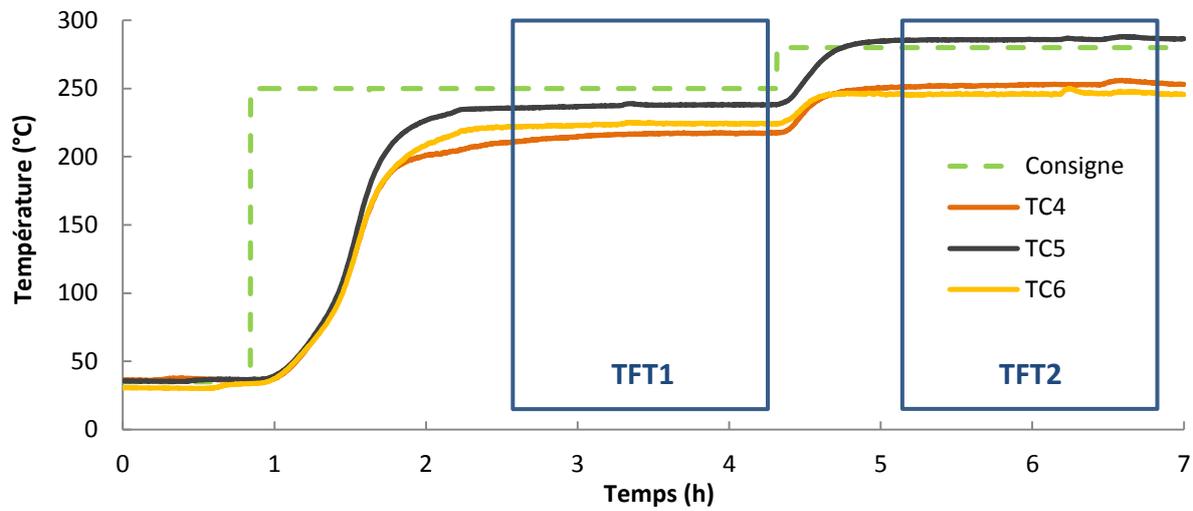


Figure 79 : Températures mesurées lors des essais TFT1 et TFT2.

Lors de l'essai TFT1, les températures mesurées par les thermocouples TC4, TC5 et TC6, positionnés dans la charge, sont inférieures à la température de consigne. Ces températures sont très stables une fois le régime permanent atteint. Après le changement de consigne (4h20 après le début d'essai), toutes les températures augmentent avant d'atteindre un nouveau régime permanent. Celui-ci constitue l'essai TFT2. La température mesurée par le thermocouple TC5 est supérieure à la température de consigne. Ceci met en évidence la présence de réactions exothermiques lors de la torréfaction, notamment pour les températures de traitement les plus élevées.

Le rendement massique et la température mesurée maximale obtenus lors des essais TFT1, TFT2, TFT5 et TFT6 sont représentés **Figure 80** en fonction de la température de consigne.

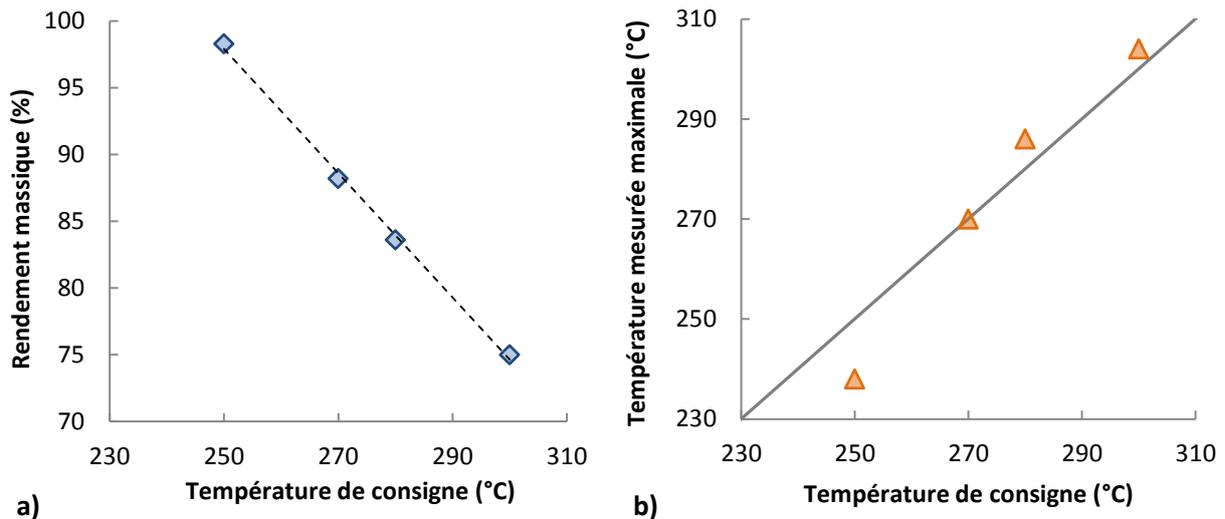


Figure 80 : Évolution a) du rendement massique et b) de la température mesurée maximale en fonction de la température de consigne lors des essais de torréfaction en four tournant.

Comme attendu, plus la température de consigne est élevée et plus le rendement massique du procédé est faible (**Figure 80a**). De plus, il apparaît que le rendement est corrélé linéairement à la température de consigne dans la gamme étudiée.

Pour ces 4 essais, la température mesurée maximale est systématiquement détectée par le thermocouple 5 situé dans la 4^{ème} zone de chauffe. Lorsque la température de consigne est basse (inférieure à 270 °C), la température mesurée maximale est inférieure à la température de consigne (voir **Figure 80b**). Aux plus hautes températures (supérieures à 270 °C), la température mesurée maximale est supérieure à la température de consigne. Ceci est le résultat du comportement exothermique évoqué précédemment. Il est cependant impossible d'affirmer que lors de la torréfaction à 250 °C les réactions sont exclusivement endothermiques.

II.2.2. Influence du temps de séjour moyen

L'influence du temps de séjour moyen des plaquettes sur le procédé est observée par comparaison des essais TFT2 et TFT4. Ces deux essais ont été menés avec des températures de consigne identiques (280 °C) et des taux de remplissage similaires (10,8 et 10,6 % respectivement). Ils diffèrent donc uniquement par le temps de séjour. Les profils de température mesurés lors de ces essais sont présentés **Figure 81**.

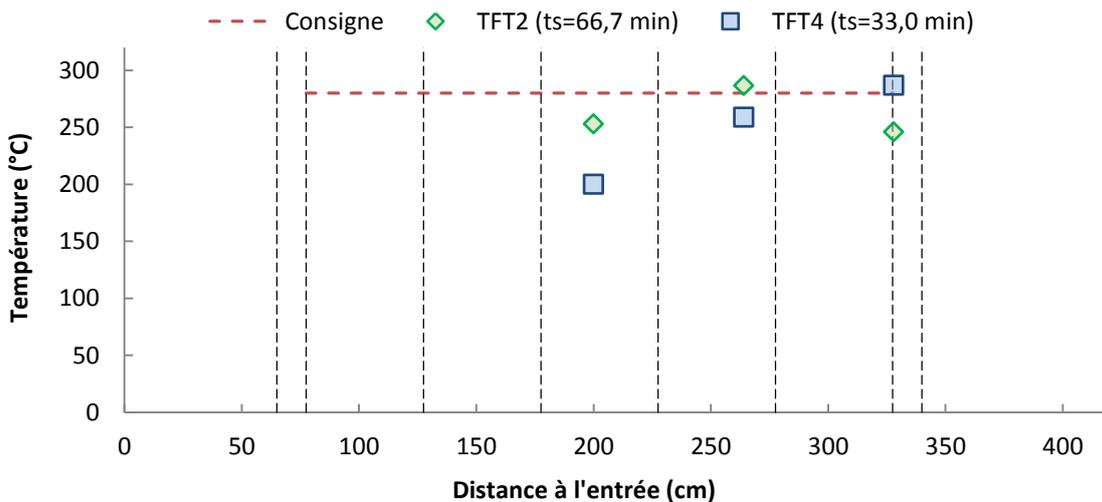


Figure 81 : Influence du temps de séjour : profils de température le long du cylindre mesurés lors des essais TFT2 et TFT4.

Lorsque le temps de séjour est court (33 minutes, essai TFT4), la température de la charge solide s'élève tout au long des 5 zones de chauffe. A contrario, lorsque le temps de séjour est long (67 minutes, essai TFT2), la température s'élève jusqu'à la fin de la 4^{ème} zone ; il y a ensuite un refroidissement partiel dans la 5^{ème} zone. Une évolution similaire avait été observée lors des essais de chauffe de bois sec (voir **Chapitre 3** §II.4.1). Dans les deux cas, la température mesurée maximale est supérieure de 6 à 7 °C à la température de consigne. En conséquence, le rendement massique est plus faible lorsque le temps de séjour est long. Ceci s'explique par une durée plus importante passée par les plaquettes aux températures de dégradation thermique de la biomasse (supérieures à 200 °C). Ceci est cohérent avec les tendances observées dans la littérature [73]. En effet, il est classiquement considéré que les principaux paramètres opératoires de la torréfaction sont la température et le temps de traitement (voir **Chapitre 1** §II.5).

II.2.3. Influence du taux de remplissage

Lors de l'utilisation d'un four tournant, le taux de remplissage H est un paramètre supplémentaire à prendre en compte. Son influence peut être identifiée par comparaison des essais TFT3 et TFT4 dont les paramètres opératoires diffèrent uniquement par le taux de remplissage. Les profils de températures mesurés lors de ces essais sont présentés **Figure 82**.

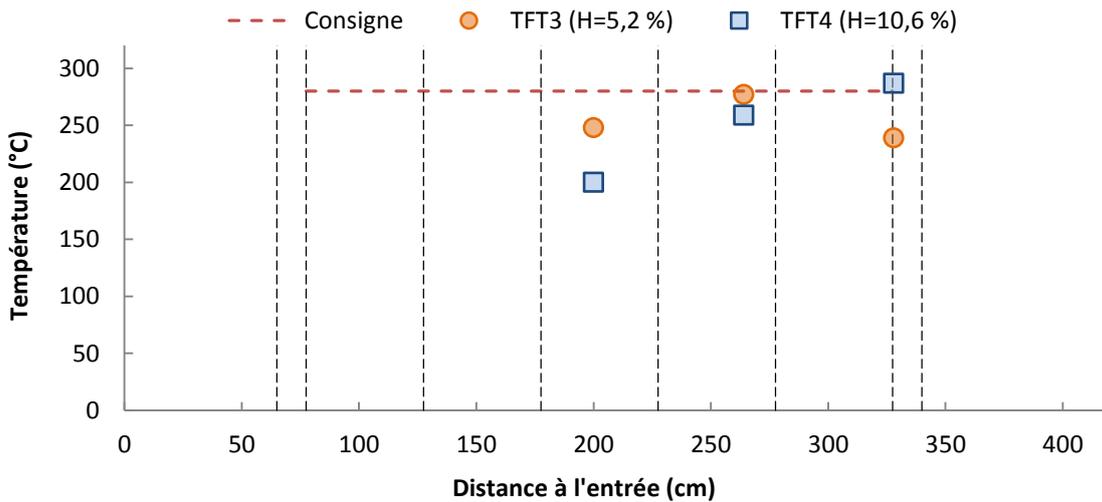


Figure 82 : Influence du taux de remplissage : profils de température mesurés lors des essais TFT3 et TFT4.

Lorsque le taux de remplissage est élevé (10,6 %, essai TFT4), l'inertie de la charge implique une montée en température plus lente.

La température mesurée maximale est inférieure à la température de consigne (280 °C) dans le cas de l'essai TFT3 ($T_{max}=277$ °C) et supérieure lors de l'essai TFT4 ($T_{max}=287$ °C). Là encore, les réactions exothermiques sont responsables du dépassement de la consigne. La contribution du taux de remplissage à ce phénomène peut être expliquée de la manière suivante : les surfaces d'échange augmentent plus lentement que le volume occupé par les plaquettes. Ainsi, lorsque le taux de remplissage est élevé, les surfaces permettant d'évacuer la chaleur produite par les réactions de torréfaction deviennent insuffisantes. Ceci se traduit par une augmentation de la température du lit qui mène à son tour à une diminution du rendement massique du procédé.

Il est à noter qu'une limitation des transferts de masse peut également être à l'origine de ces élévations de température. En effet, lorsque le taux de remplissage est élevé, l'évacuation des matières volatiles est plus difficile ce qui augmente leur temps de contact avec le bois torréfié et pourrait mener à l'apparition de réactions exothermiques (voir **Chapitre 1** §II.4).

Enfin, des tendances identiques (non représentées ici) ont été observées par comparaison des essais TFT7 et TFT8, ce qui confirme les observations effectuées dans cette partie.

II.2.4. Influence des réactions exothermiques sur la stabilité du traitement

Un essai long a été réalisé dans les conditions de l'essai TFT8. L'objectif était d'étudier la stabilité de la torréfaction en four tournant au cours du temps dans des conditions où l'exothermicité des réactions avait été clairement identifiée. L'évolution des températures mesurées dans le lit de plaquettes lors de cet essai est présentée **Figure 83**.

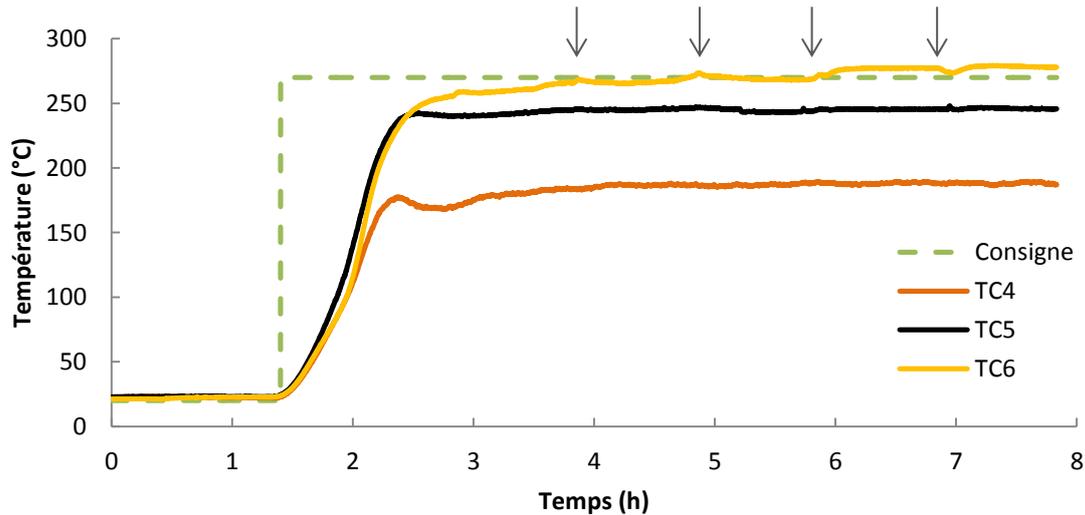


Figure 83 : Évolution de la température du lit de plaquettes lors d'un essai de torréfaction réalisé dans les conditions de l'essai TFT8.

Tout d'abord, il apparaît que la température maximale est mesurée par le thermocouple TC6, comme dans le cas de l'essai TFT8 (voir **Tableau 25**). Ensuite, les températures les plus basses (mesurées par les thermocouples TC4 et TC5) ne sont pas sensibles aux étapes de rechargement de la trémie (signalées par les flèches). Par contre, la température la plus haute est impactée par l'ouverture de la trémie. En effet, après chaque ouverture, la température augmente de quelques degrés avant de se stabiliser. Il est donc probable que le contact avec l'oxygène présent dans l'air provoque l'apparition de nouvelles réactions exothermiques. L'absence de détection d'un tel comportement par les thermocouples TC4 et TC5 tend également à montrer qu'une certaine température (supérieure à 250 °C) est requise pour permettre l'activation de ces réactions.

Afin d'évaluer l'impact de ces instabilités en termes de rendement massique, 4 prélèvements (d'une heure chacun) ont été effectués pendant cet essai. La valeur de rendement mesurée à partir de ces prélèvements est de $90,9 \pm 2,7$ %. Bien que ces valeurs soient en accord avec le rendement calculé lors de l'essai TFT8 (88,7 %), il apparaît que les

instabilités dues aux réactions exothermiques ont une incidence non négligeable sur le rendement du procédé.

II.3. Conclusions de l'étude expérimentale

Différents essais de torréfaction ont été menés avec succès dans le four tournant pilote. Ils ont permis d'évaluer l'influence de la température de consigne et du temps de séjour sur le profil de température de la charge et sur la perte de masse des plaquettes. Les tendances observées sont en accord avec celles présentées dans la littérature. Il a été démontré que des réactions exothermiques s'établissent lorsque la température de torréfaction est élevée, même pour les faibles temps de séjour. Le taux de remplissage a également un impact important sur la température atteinte par la charge et donc sur le rendement massique du procédé. La prédiction du rendement nécessite par conséquent la prise en compte simultanée de ces différents paramètres mais également de leurs interactions : c'est l'objectif attribué au modèle numérique. A ce stade, une base de données expérimentales est disponible pour comparaison aux résultats des simulations.

III. Validation et évaluation du modèle numérique

III.1. Résultats du modèle de torréfaction en four tournant

Comme expliqué précédemment (§I.3), les rendements des essais présentés dans le **Tableau 25** ont servi de base à l'ajustement des chaleurs de réactions. Les valeurs ainsi déterminées sont :

- $\Delta H_{MV} = 80,23 \text{ kJ/kg}$
- $\Delta H_S = -2,01 \text{ kJ/kg}$

Ces valeurs sont faibles mais se situent dans les gammes identifiées dans la littérature. La chaleur de réaction associée à la formation du solide est quasiment nulle, ce qui implique que les réactions associées sont très faiblement exothermiques. Il est proposé ici d'évaluer l'influence de ces chaleurs sur le rendement calculé.

III.1.1. Rendements massiques et profils de température

La **Figure 84** représente la comparaison des rendements expérimentaux avec les rendements calculés, d'une part, sans chaleur de réaction et, d'autre part, avec les chaleurs de réactions ajustées.

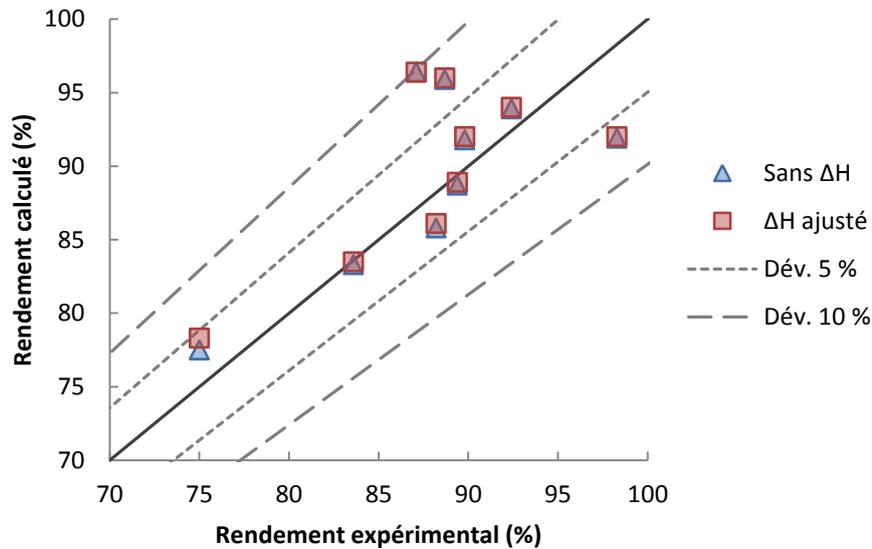


Figure 84 : Rendements expérimentaux et rendements calculés par le modèle avec et sans chaleur de réaction.

Il apparaît que l'ajout des chaleurs de réaction préalablement identifiées n'a quasiment pas d'impact sur les rendements matière calculés puisqu'ils diffèrent de quelques dixièmes de points avec les simulations sans chaleur de réaction. Ce résultat peut s'expliquer par la faible intensité des phénomènes exothermiques observés expérimentalement. En effet, la précision du modèle établi dans ces travaux n'est probablement pas suffisante pour estimer correctement des chaleurs de réaction provoquant de faibles augmentations de la température de la charge. Par la suite, les chaleurs de réaction seront donc négligées. De ce fait, en l'état actuel, le modèle développé ne permettra pas la prédiction des emballements thermiques.

Les résultats du modèle présentent tous une déviation inférieure à 10 % par rapport aux résultats expérimentaux. Les deux tiers des résultats présentent même une déviation inférieure à 5 %.

Deux cas peuvent ainsi être différenciés :

- Les essais à fort débit de bois présentant une déviation située entre 5 et 10 % par rapport aux résultats expérimentaux,
- Les essais à faible débit de bois présentant une déviation inférieure à 5 %.

Les profils de température calculés sont présentés **Figure 85** pour chacun de ces cas. Les essais TFT3 et TFT4 ont été choisis car ils ont été menés avec des paramètres opératoires identiques, hormis le débit d'alimentation.

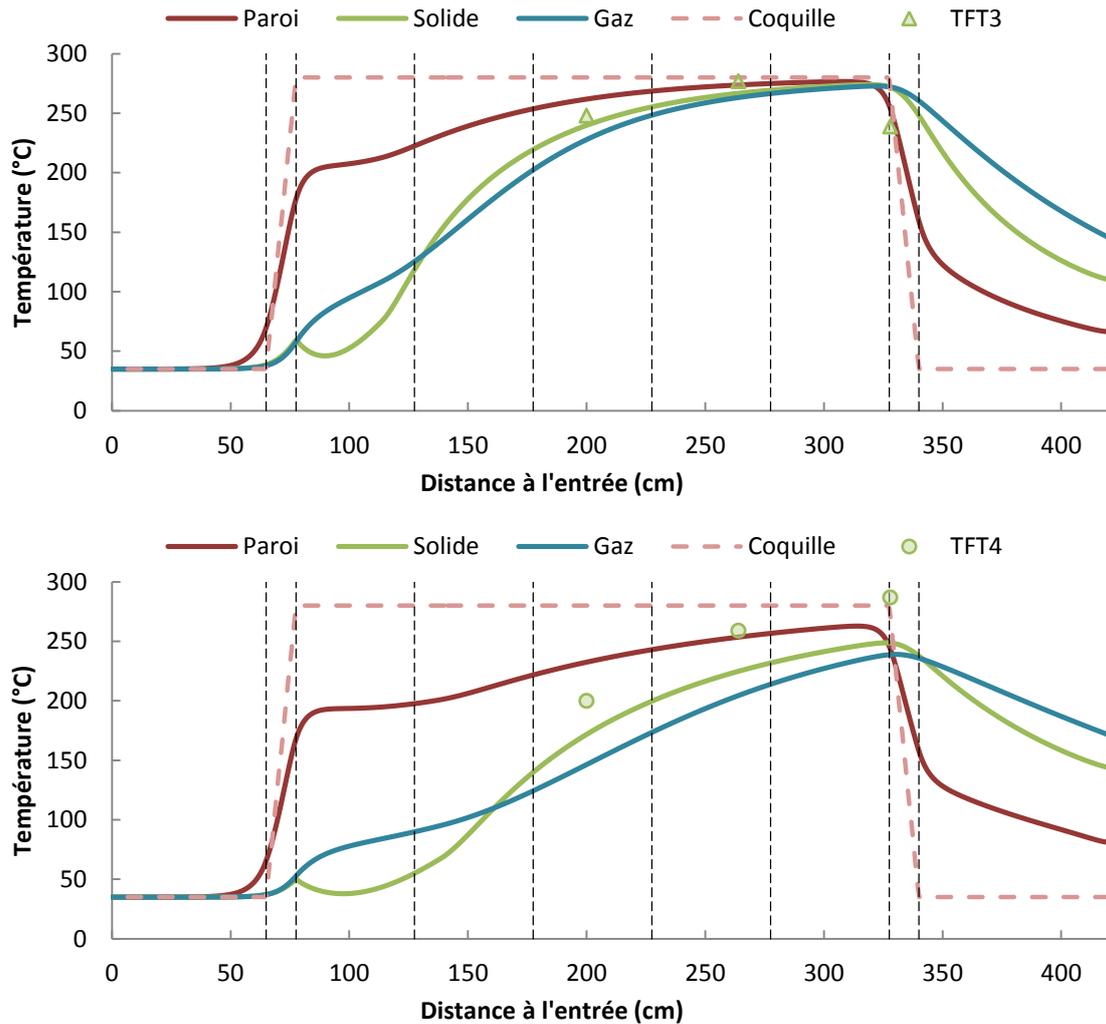


Figure 85 : Comparaison des profils de température calculés par le modèle avec les relevés de température expérimentaux pour un essai à faible débit (TFT3) et un essai à fort débit (TFT4).

Le profil de température du solide, calculé dans le cas de l'essai **TFT3**, représente correctement la température mesurée expérimentalement dans les zones de chauffe 3 et 4. En sortie de zone 5, le refroidissement n'est pas prédit. Cet écart à la réalité avait déjà été identifié lors de l'établissement du modèle de transferts thermiques. Il est dû à une mauvaise connaissance du profil de température réel de la coquille chauffante. La température maximale prédite pour cet essai est de 274 °C contre une température mesurée maximale de 277 °C. Le modèle prédit un rendement de 88,9 % alors que le rendement expérimental est de 89,4 %. Il faut noter que les écarts entre les températures maximales prédites et mesurées sont inférieurs à 12 °C pour tous les essais où le rendement est correctement estimé. Cependant, pour l'essai TFT1, le rendement est sous-estimé (92,0 % contre un rendement expérimental de 98,3 %) alors que le profil de température calculé est en accord avec les relevés de température expérimentaux.

En l'absence de données expérimentales, les profils de température de la paroi et de la phase gaz ne peuvent être validés. Ces profils sont similaires à ceux observés après implémentation du modèle de séchage (voir **Chapitre 3 §III.2.4**).

Pour l'**essai TFT4**, la température de la phase solide est très largement sous-estimée, avec un décalage de 30 à 40 °C par rapport aux températures expérimentales. En conséquence, le rendement massique est fortement surestimé : 96,4 % pour une valeur expérimentale de 87,1 %. Pour expliquer un tel écart, il est proposé de s'intéresser aux puissances échangées entre l'installation et le solide.

III.1.2. Puissance thermique échangée entre le lit de plaquettes et l'installation

Lors des essais de torréfaction, la puissance électrique consommée par les résistances de chaque zone de chauffe a été enregistrée. Les valeurs sont ensuite moyennées sur une période d'une heure. Des « blancs » ont été réalisés pour prendre en compte la puissance consommée pour compenser les pertes et chauffer le gaz. Pendant ces blancs, les débits d'azote sont identiques à ceux utilisés pendant les essais de torréfaction, mais le cylindre n'est pas alimenté en plaquettes. Les puissances mesurées pendant ces blancs peuvent ensuite être soustraites aux valeurs enregistrées au cours des essais de torréfaction. Un exemple est présenté **Figure 86**.

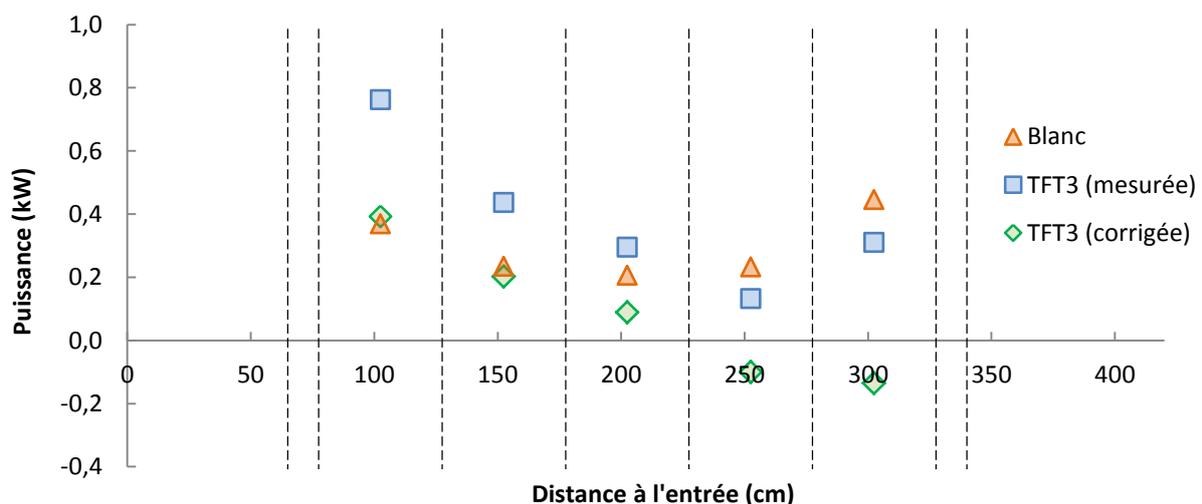


Figure 86 : Puissance délivrée par les résistances lors d'un blanc, lors de l'essai TFT3 et valeurs corrigées pour l'essai TFT3.

La puissance consommée pendant le blanc est plus élevée dans les zones de chauffe 1 et 5 que dans les zones 2 à 4. Ceci permet de compenser les pertes thermiques aux extrémités du

four. Il apparaît également que la puissance de fonctionnement du four à vide représente plus de la moitié de la puissance consommée pendant l'essai de torréfaction. Cette puissance est utilisée pour chauffer l'installation et le gaz de balayage. L'observation de la puissance corrigée de l'essai TFT3 révèle que, dans les zones 4 et 5, le solide cède de l'énergie à l'installation.

Ces observations peuvent être comparées aux valeurs renvoyées par le modèle. Pour cela, la puissance fournie par l'installation au solide est assimilée au flux échangé avec le solide par rayonnement ϕ_s^r (l'apport du gaz au terme de rayonnement est négligé) et par contact paroi/solide $h_{ps}^c S_{pc} (T_p - T_s)$. Les résultats sont présentés **Figure 87**.

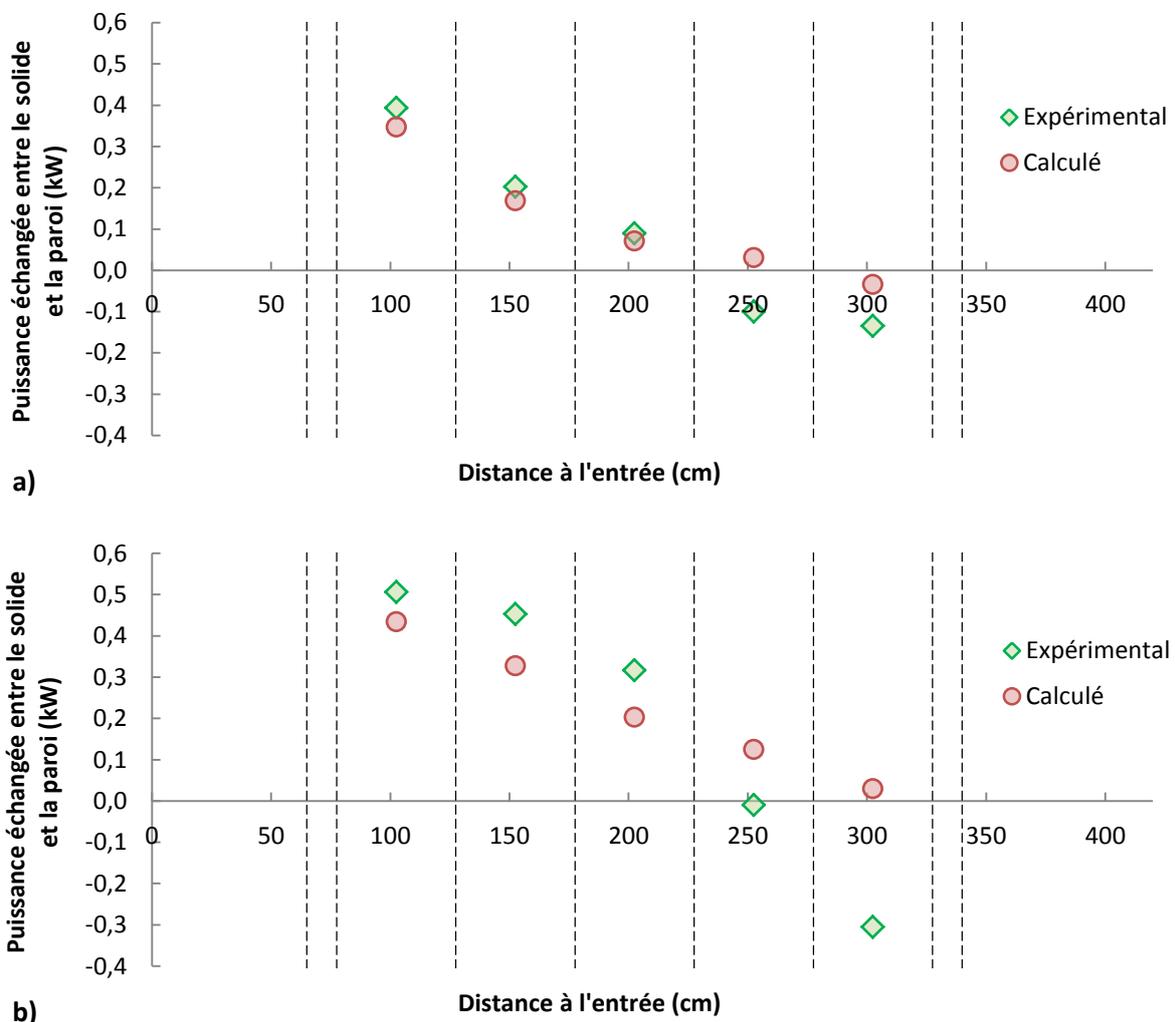


Figure 87 : Profils de puissance expérimentaux et calculés pour les essais a) TFT3 à faible débit de bois et b) TFT4 à fort débit de bois.

Lorsque le **débit d'alimentation est faible** (essai TFT3), l'estimation de la puissance échangée entre le lit de plaquettes et la paroi est correcte pour les zones de chauffe 1 à 3.

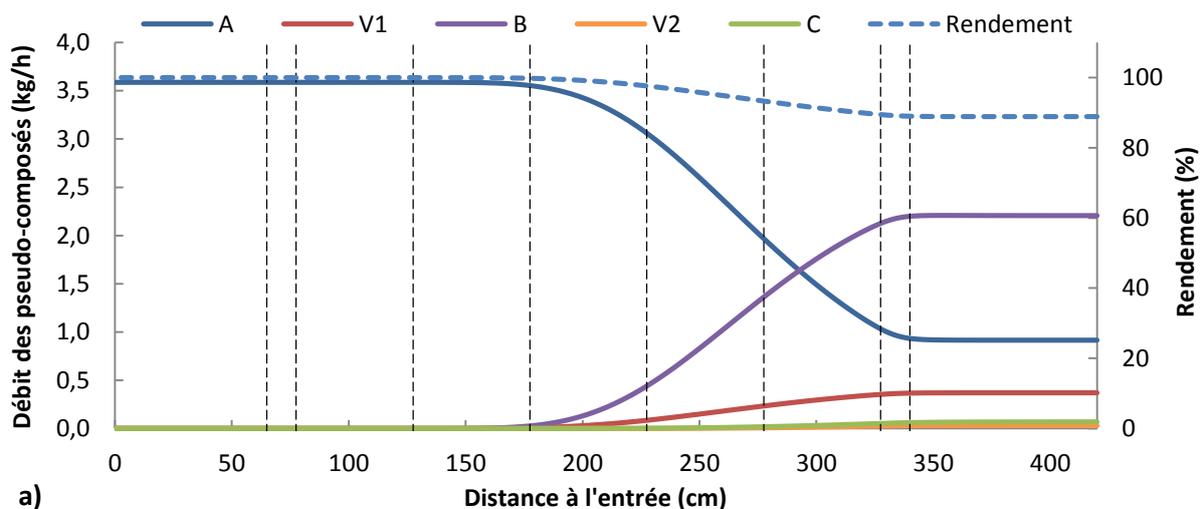
Ceci correspond à la montée en température de la charge. Pour les zones 4 et 5, où le solide cède de la chaleur à l'installation, le modèle thermique est moins satisfaisant. Là encore, la mauvaise prise en compte des pertes en sortie de four justifie cette observation.

Lorsque le **débit d'alimentation est élevé** (essai TFT4), un écart conséquent entre les puissances mesurée et prédite est visible dès les premières zones de chauffe. Ceci explique que la montée en température prédite par le modèle est faible par rapport à celle observée expérimentalement.

Ceci met donc en évidence une limitation importante du modèle de transferts thermiques : sous sa forme actuelle, il ne permet pas de prédire précisément la montée en température de la charge lorsque le débit d'alimentation est important. Cependant, ce modèle ayant été validé à basse température (160 °C), son amélioration nécessiterait des expérimentations à des températures plus élevées. Dans le cas du bois, ceci reste incompatible avec l'absence de réactions chimiques. Il faudrait donc passer par l'intermédiaire d'un matériau inerte aux caractéristiques proches de celles des plaquettes.

III.1.3. Production des différents pseudo-composés du modèle

Il est proposé ici d'identifier la zone de dégradation thermique du bois. Pour cela, l'évolution de la production des différents pseudo-composés du modèle (voir **Chapitre 3 §IV.2.1**) est présentée **Figure 88** pour un essai à 280 °C (TFT3) et un essai à 300 °C (TFT6). L'évolution du rendement en solide a également été tracée.



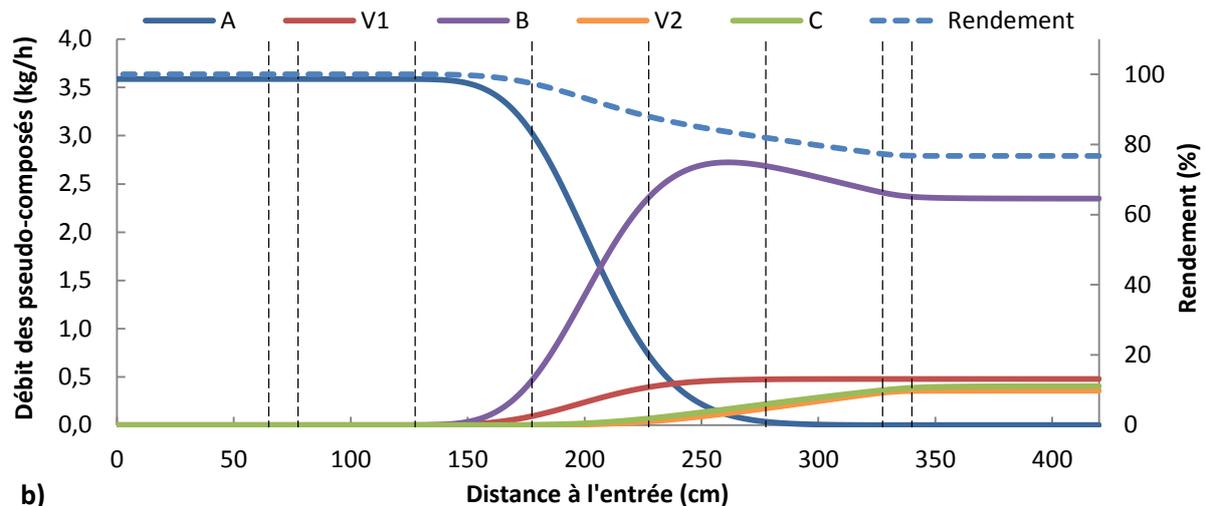


Figure 88 : Évolution des débits de pseudo-composés et du rendement massique le long du four pour les essais a) TFT3 et b) TFT6.

Lors de l'**essai TFT3**, la décomposition du pseudo-composé A débute à la fin de la deuxième zone de chauffe. Comme attendu, la production du composé B est largement majoritaire. La production des matières volatiles V_1 , et donc la perte de masse du solide, n'interviennent qu'au milieu de la deuxième zone de chauffe. Ceci signifie que la moitié du four est utilisée pour le séchage et la montée en température de la charge. Lors de cet essai, la température est insuffisante pour permettre aux réactions de la deuxième étape du modèle cinétique de s'établir. Les productions des pseudo-composés C et V_2 sont donc quasi-inexistantes. L'arrêt de l'apport de chaleur à la sortie du four stoppe brutalement les réactions.

Dans le cas de l'**essai TFT6**, la montée en température plus rapide permet un début de torréfaction dès la deuxième zone de chauffe. Seul un tiers du four est donc utilisé pour sécher et chauffer la matière. La production de matières volatiles V_1 est légèrement plus importante que lors de l'essai à 280 °C mais la perte de masse plus importante provient principalement des réactions qui consomment le pseudo-composé B. Ces réactions interviennent principalement dans les zones de chauffe 4 et 5.

Ces résultats sont cohérents avec ceux présentés lors de l'établissement du modèle en ATG. Il est cependant difficile de conclure sur la validité de l'intégration d'un modèle établi en régime chimique intrinsèque dans un modèle de torréfaction de plaquettes de bois à l'échelle pilote. L'étude des temps caractéristiques présentée en annexe tend cependant à montrer que cette approximation est acceptable pour les plaquettes utilisées dans cette étude. Si les plaquettes étaient de plus grande taille, il faudrait prendre en compte la conduction intraparticulaire.

III.2. Analyse de sensibilité du modèle aux paramètres

III.2.1. Principe de la méthode

L'analyse de sensibilité a pour objectif de déterminer l'impact d'une variation des paramètres sur les réponses du modèle. Une telle démarche permet ainsi de hiérarchiser les paramètres par ordre d'influence. Dans cette étude, deux types de paramètres ont été analysés :

- Les paramètres opératoires du procédé,
- Les données du modèle : cela permettra d'identifier celles dont une connaissance précise est indispensable à la modélisation et qui pourraient permettre une amélioration des capacités prédictives du modèle.

Pour réaliser l'étude paramétrique, il est tout d'abord nécessaire de déterminer une simulation de référence. La simulation de l'essai TFT3 a été choisie car elle a montré une bonne représentation des résultats expérimentaux et a été menée à une température située au milieu du domaine d'étude.

Si β est le paramètre étudié et G la réponse du modèle, le coefficient de sensibilité SG_{β} de la réponse du modèle à β est défini suivant l'Équation 95.

$$SG_{\beta} = \frac{\partial G(\beta)}{\partial \beta} \quad \text{Équation 95}$$

Pour réaliser ce calcul, la méthode de la perturbation centrée a été utilisée. La réponse du modèle est calculée après avoir perturbé positivement ($+\delta\beta$), puis négativement ($-\delta\beta$) le paramètre β . Le coefficient de sensibilité peut alors être calculé par la formule :

$$SG_{\beta} = \frac{G(\beta + \delta\beta) - G(\beta - \delta\beta)}{2\delta\beta} \quad \text{Équation 96}$$

Afin de pouvoir comparer les résultats obtenus pour les différents paramètres, le coefficient de sensibilité réduit SG'_{β} est ensuite calculé :

$$SG'_{\beta} = \beta \times SG_{\beta} \quad \text{Équation 97}$$

Le coefficient de sensibilité réduit a la même dimension que la réponse du modèle.

Les réponses du modèle dont la sensibilité a été étudiée ici sont la température du lit de plaquettes et le rendement en solide le long du cylindre. Les paramètres dont l'influence a été évaluée sont :

- Paramètres opératoires : T_{cons} , \dot{Q} , X_{ini} , α , ω , \dot{Q}_{v,N_2} .
- Données du modèles : $C_{p,s}$, D_p , β , ε_s , ε_{lit} , λ_s , $C_{p,g}$, E_{av1} , E_{aB} , E_{av2} , E_{aC} , A_{v1} , A_B , A_{v2} , A_C , h_{PS} , h_{GS} , h_{GP} .

Il a été décidé d'appliquer une perturbation de $\pm 10\%$ ($\delta=0,1$) à chacun de ces paramètres.

La sensibilité des résultats aux chaleurs de réaction n'a pas été étudiée faute de valeurs de départ fiables. Il est cependant probable que ces grandeurs auraient un impact important sur le modèle appliqué à un four tournant à l'échelle industrielle

III.2.2. Sensibilité de la température du lit de plaquettes

Les coefficients de sensibilité réduits de la température, calculés le long du cylindre, sont présentés **Figure 89**. Afin d'améliorer la lisibilité, seuls les plus importants sont représentés.

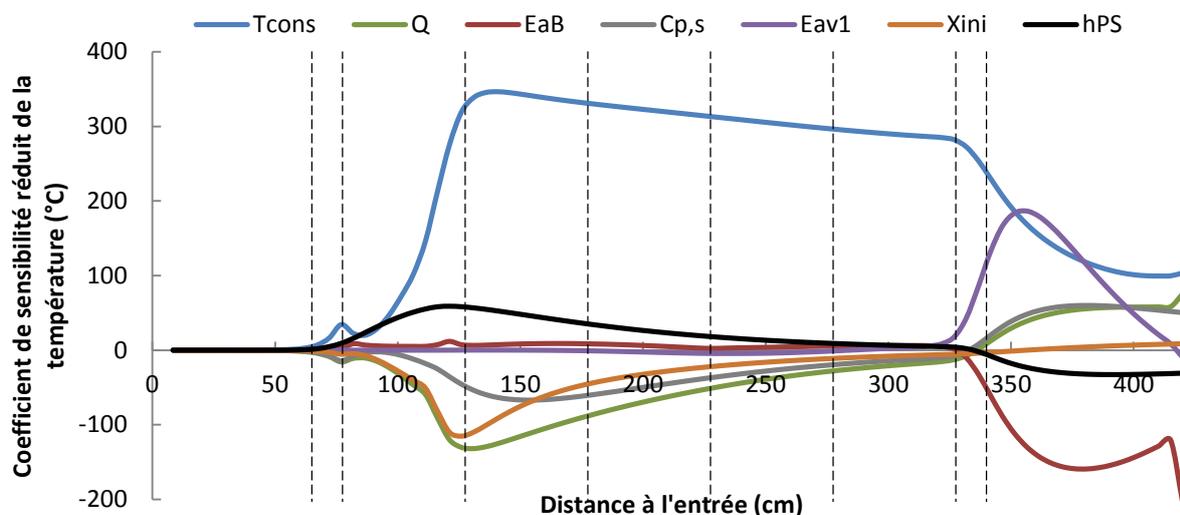


Figure 89 : Évolution des coefficients de sensibilité réduits de la température.

Comme attendu, le paramètre influençant le plus la température de la charge est la température de consigne : une augmentation de la température de consigne provoque une augmentation de la température du lit de plaquettes. Les coefficients de sensibilité réduits associés au débit de solide \dot{Q} et à la teneur en eau initiale de la biomasse X_{ini} sont négatifs. Ceci signifie que l'augmentation de ces paramètres conduit à une diminution de la température du lit de plaquettes. En effet, lorsque ces paramètres augmentent, il y a plus de

matière à chauffer et plus d'eau à évaporer. Cela se traduit par une diminution de la température atteinte par le produit, en particulier dans les premières zones de chauffe.

Le coefficient de sensibilité réduit associé au coefficient d'échange h_{ps} est non négligeable, ce qui confirme la nécessité de trouver une expression précise pour ce coefficient. Il en est de même pour la capacité calorifique à pression constante du bois $C_{p,s}$.

Enfin, les paramètres cinétiques E_{aB} et E_{av1} conditionnent la quantité de solide dégradé et donc l'inertie de la charge en sortie des zones de chauffe. Ceci explique l'allure des courbes associées à ces deux paramètres.

Afin de comparer rapidement les influences respectives d'un plus grand nombre de paramètres, il est proposé de calculer un coefficient de sensibilité réduit moyen \overline{SG}'_{β} . Ce coefficient, représentant l'influence du paramètre sur toute la longueur du cylindre, est calculé suivant l'Équation 98.

$$\overline{SG}'_{\beta} = \frac{1}{L} \int_0^L |SG'_{\beta}| dL \quad \text{Équation 98}$$

Les valeurs de ce coefficient sont présentées **Figure 90**.

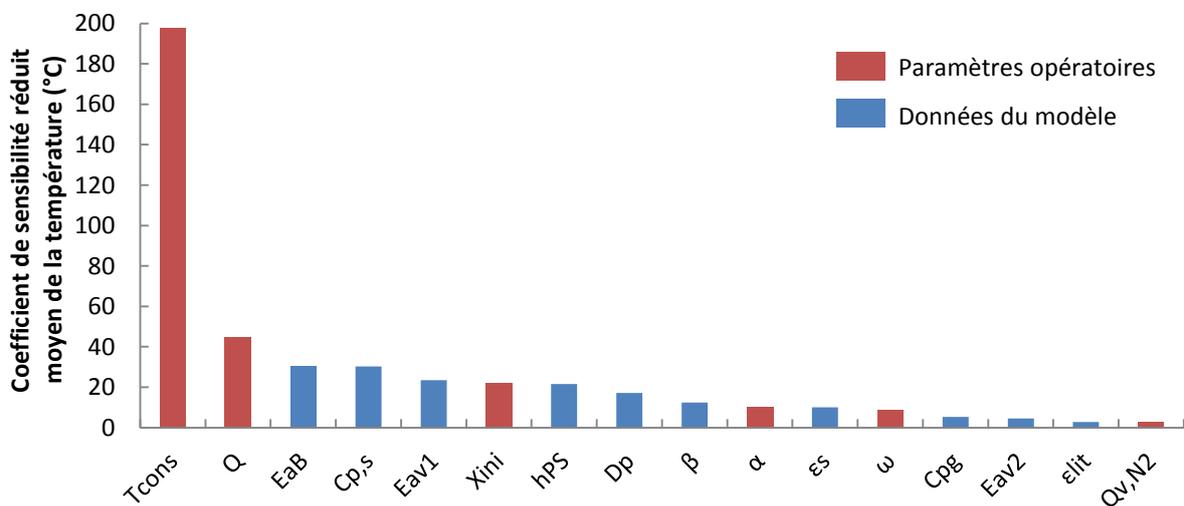


Figure 90 : Coefficients de sensibilité réduits moyens de la température.

Un tel graphique permet de confirmer les observations réalisées sur la **Figure 89** mais également de quantifier l'impact d'autres paramètres. Il apparaît notamment que les caractéristiques du solide (D_p et β) ont une influence plus importante que l'inclinaison du cylindre α ou que sa vitesse de rotation ω . Le débit d'azote a très peu d'impact sur la température du lit. Il faut cependant nuancer ces conclusions en rappelant que ces résultats

ont été obtenus avec de faibles variations des paramètres autour du point de référence choisi.

III.2.3. Sensibilité du rendement en solide

Les résultats de l'analyse de sensibilité du rendement sont présentés **Figure 91** sous la forme réduite et sous la forme réduite moyennée.

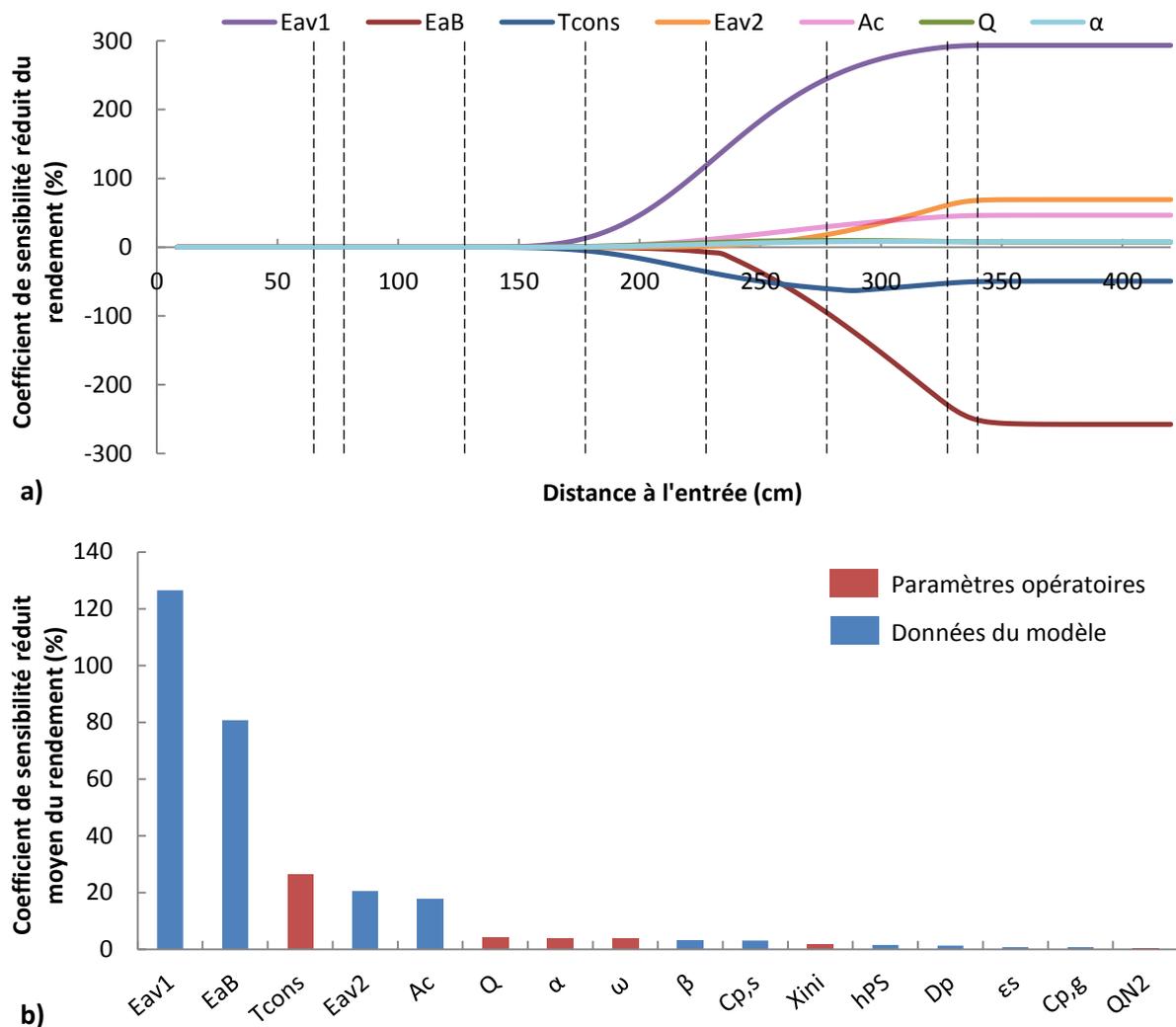


Figure 91 : a) Coefficients de sensibilité réduits et b) coefficients de sensibilité réduits moyens du rendement.

Les paramètres les plus influents sont les énergies d'activation de la première étape du modèle cinétique et la température de consigne du four. Lorsque E_{av1} augmente, la réaction de production des matières volatiles s'établit à plus haute température, ce qui implique une augmentation du rendement en solide. A contrario, lorsque E_{aB} augmente, le composé B est produit en plus faible quantité. Il y a donc plus de composé A pour former des matières volatiles, ce qui mène à une diminution du rendement en solide.

La diminution du rendement avec l'augmentation de la température de consigne était attendue et est la conséquence directe de l'augmentation de la température de la charge.

L'impact de E_{av2} n'est visible que dans la dernière zone de chauffe car la réaction de production de matières volatiles V_2 intervient aux températures les plus élevées et seulement lorsque le composé B a été produit. Enfin, les courbes correspondant à Q et α sont confondues et leur influence est limitée en comparaison avec les autres paramètres qui viennent d'être évoqués.

La **Figure 91b** montre que les paramètres les plus influents, hormis les constantes cinétiques, sont les paramètres opératoires du four. Viennent ensuite les propriétés du solide (β , $C_{p,s}$) et le coefficient de transfert paroi/solide h_{ps} . Ceci démontre la forte dépendance du rendement du procédé aux propriétés du produit à traiter.

III.3. Bilan énergétique du procédé

Le modèle développé donne accès à des données non disponibles expérimentalement. C'est notamment le cas de la consommation énergétique du procédé présentée dans cette partie.

III.3.1. Consommation des différentes étapes du procédé

Le modèle développé permet d'estimer la consommation des différentes étapes du procédé :

- échauffement du solide (solide sec + eau liquide),
- évaporation de l'eau,
- chauffe du gaz (azote + matières volatiles + vapeur d'eau),

Il a été constaté que la répartition des consommations dans ces étapes varie peu suivant les essais. La **Figure 92** présente la répartition pour l'essai TFT3.

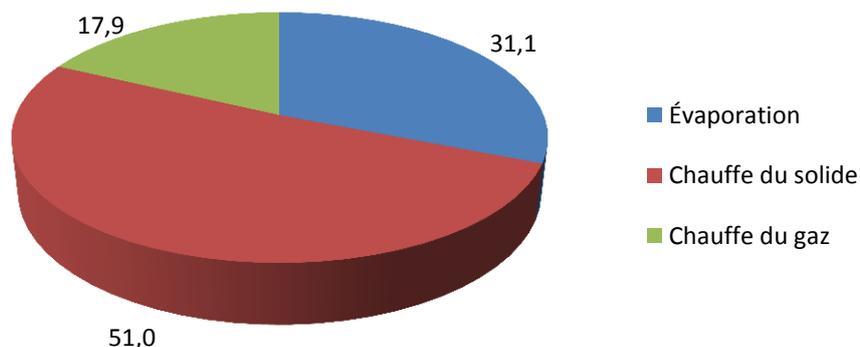


Figure 92 : Consommation (en %) des différentes étapes du procédé d'après la simulation de l'essai TFT3.

Dans tous les cas, la chauffe des plaquettes est l'étape la plus énergivore et représente environ 50 % de l'énergie consommée. La quantité d'énergie nécessaire à l'évaporation de l'eau est également importante malgré la faible teneur en eau initiale de la biomasse utilisée ici. L'énergie nécessaire à la chauffe du gaz n'est pas non plus négligeable (15-20 %). En effet, malgré le faible débit d'azote, la vapeur d'eau et les matières volatiles qui constituent la phase gaz font que la masse totale de gaz à chauffer est importante.

Ainsi, la maîtrise de la consommation énergétique du procédé doit être basée sur la limitation des débits de gaz utilisés et sur l'alimentation du four avec une biomasse à faible teneur en eau.

III.3.2. Consommation énergétique et pertes du four tournant

Comme présenté précédemment il est possible de calculer, avec le modèle, la puissance thermique reçue par le solide. Il est également possible de calculer la puissance thermique totale consommée par l'installation. Celle-ci correspond à la puissance échangée entre la coquille chauffante et le cylindre par convection et par rayonnement (voir l'Équation 57 du Chapitre 3). En ramenant ces puissances au débit de biomasse sèche, l'énergie spécifique nécessaire au traitement de la matière (séchage, chauffe et torréfaction) peut être calculée. Les résultats sont présentés **Figure 93** en fonction du rendement massique du procédé.

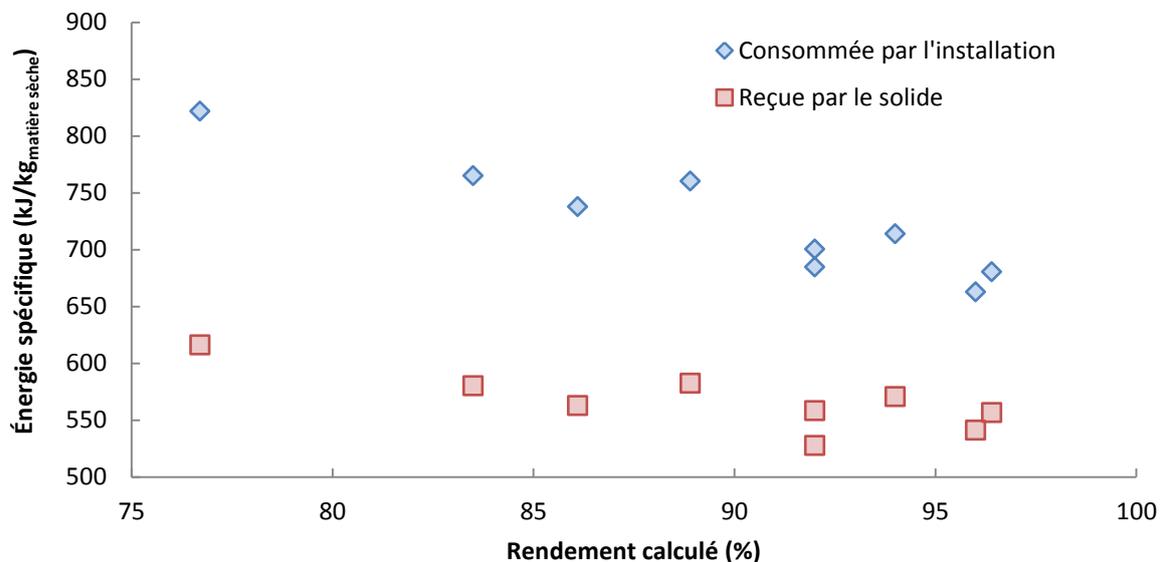


Figure 93 : Energie consommée par le solide et par l'installation en fonction du rendement calculé par le modèle.

Plus la torréfaction est sévère (plus le rendement est bas), et plus l'énergie consommée est importante. Ceci est dû à l'énergie supplémentaire utilisée pour élever la température de la

charge de manière plus importante. L'énergie consommée par l'installation est plus élevée que l'énergie réellement apportée au solide car elle prend en compte l'énergie fournie à la phase gaz et les pertes par la paroi du cylindre dans les zones non chauffées.

Il apparaît que l'ensemble de ces pertes représentent entre 18 et 25 % de l'énergie totale du procédé. Il faut également noter que ces pertes augmentent sensiblement lorsque le rendement massique diminue. Industriellement, ces pertes seraient fortement réduites du fait du facteur d'échelle et éventuellement par récupération de la chaleur des gaz (chaleurs latente et sensible).

IV. Conclusions

Dans ce chapitre, des **essais de torréfaction** en four tournant ont été présentés. L'influence des paramètres opératoires sur la température de la charge ainsi que sur le rendement massique de la torréfaction a ainsi pu être observée. Si les effets de la température et du temps de séjour avaient déjà été identifiés, le fort impact du taux de remplissage n'avait pas été rapporté. Il a notamment été montré qu'un taux de remplissage important favorise l'apparition de réactions exothermiques. Les hypothèses pour expliquer ce phénomène sont basées sur des transferts de chaleur et/ou de matière limités. D'une part, l'évacuation insuffisante de la chaleur produite par les réactions provoquerait une montée en température de la charge. D'autre part, l'évacuation insuffisante des matières volatiles produites augmenterait le temps de contact de ces matières avec les plaquettes torréfiées menant à l'établissement de réactions exothermiques supplémentaires. Mal maîtrisées, notamment dans un four à plus grande échelle, ces réactions pourraient conduire à un emballement thermique du lit de plaquettes.

Le **modèle de torréfaction en four tournant** a été utilisé pour évaluer les chaleurs de torréfaction. Les résultats de cet ajustement se sont avérés infructueux, ce qui est probablement dû à la faible intensité des phénomènes exothermiques observés, en comparaison avec les incertitudes liées à l'établissement du modèle.

En négligeant ces chaleurs de réaction, les résultats de simulation de la torréfaction en four tournant ont montré un bon accord avec les résultats expérimentaux dans le cas des **essais à faible débit d'alimentation** en plaquettes. L'écart relatif entre les rendements expérimentaux et calculés est alors inférieur à 5 %. Les profils de température prédits par le

modèle concordent également avec les mesures expérimentales. Cependant, l'élévation de la température de la charge au-delà de la température de consigne ainsi que le refroidissement en fin de zone de chauffe ne sont pas prédits. Dans le cas des **essais à fort débit d'alimentation**, la montée en température du lit de plaquettes est largement sous-estimée. Par comparaison expérience/modèle, les puissances échangées avec le lit de particules ont permis d'expliquer cet écart. En effet, lorsque le débit est élevé, la puissance échangée avec la charge est sous-estimée. La cause de la mauvaise estimation du profil de température peut donc être attribuée à un coefficient d'échange paroi/solide peu adapté à ces conditions. D'autres incertitudes, liées aux hypothèses du modèle, pourraient également contribuer à la mauvaise estimation de la montée en température des plaquettes. En effet, si l'hypothèse de température homogène dans une section du lit paraît acceptable lorsque le débit d'alimentation (et donc le taux de remplissage) est faible, il est probable que de forts gradients de température apparaissent lorsque le débit d'alimentation est élevé. De même, pour les débits d'alimentation élevés, les phénomènes de condensation à l'entrée du cylindre sont importants et pourraient influencer de manière significative la montée en température du lit de plaquettes.

Une **analyse paramétrique** a permis d'identifier les paramètres les plus influents du modèle et ainsi de dégager de potentielles voies d'amélioration. Les paramètres cinétiques, en particulier, influencent de manière conséquente l'évolution du rendement le long du four, mais également la température atteinte par la charge. Les propriétés du solide, ainsi que les valeurs du coefficient d'échange paroi-solide, ont également un impact non négligeable sur les résultats du modèle. Enfin, un **bilan énergétique** a pu être réalisé à partir du modèle. Ce bilan a montré l'importance de la consommation énergétique des phases de chauffe et de séchage du bois. L'énergie spécifique du procédé varie de 500 à 650 kJ/kg_{matière sèche}. Ces valeurs pourront être comparées aux valeurs de gain d'énergie de broyage qui découleront de l'analyse des bois torréfiés produits.

Chapitre 5 : Les propriétés d'usage de la biomasse torréfiée

Lors de l'étude expérimentale de la torréfaction en four tournant, des plaquettes torréfiées ont été produites dans différentes conditions opératoires. Les pertes de masse observées varient entre 1,7 et 25,0 %. Le modèle numérique développé précédemment permet la prévision de la perte de masse. Il paraît désormais intéressant de pouvoir relier les principales caractéristiques du matériau obtenu à cette perte de masse. Cette partie propose d'analyser les différents bois torréfiés et de comparer leurs propriétés à celles du bois brut. Dans un premier temps, les solides seront caractérisés en termes de composition avant de s'attacher à l'évaluation de l'hygroscopicité et de la broyabilité du bois torréfié. L'étude de la composition est importante car elle apporte des informations sur les processus de dégradation qui ont eu lieu lors du traitement et elle conditionne la densité énergétique du matériau. De plus, elle a un fort impact sur les rendements des procédés de valorisation susceptibles d'utiliser le bois torréfié (voir **Chapitre 1**, §II.6.4). Il en est de même pour la teneur en eau, ce qui justifie une étude détaillée du comportement de la biomasse vis-à-vis de l'humidité de l'air. Enfin, l'un des principaux intérêts de la torréfaction étant la fragilisation de la structure, l'étude de la broyabilité apparaît être un point clé lors de l'évaluation du procédé.

I. Aspect visuel

La **Figure 94** présente la photographie des biomasses brute et torréfiées. Un changement de coloration des plaquettes apparaît dès les faibles pertes de masse (ici 1,7 %). La biomasse continue ensuite à brunir mais les changements sont peu importants pour les pertes de masse situées entre 7 et 15 %. Lorsque la perte de masse excède 15 %, les plaquettes ont une couleur noire, proche de celle du charbon. Dans la littérature, les principales raisons invoquées pour expliquer les modifications de la couleur au cours de la torréfaction sont :

- Les pigments (clairs) de la biomasse brute sensibles thermiquement sont dégradés aux basses températures [102],
- Les modifications de la lignine produisent des groupements chromophores qui confèrent à la biomasse une teinte foncée [109].

Il est cependant impossible de relier précisément une perte de masse à une couleur donnée.

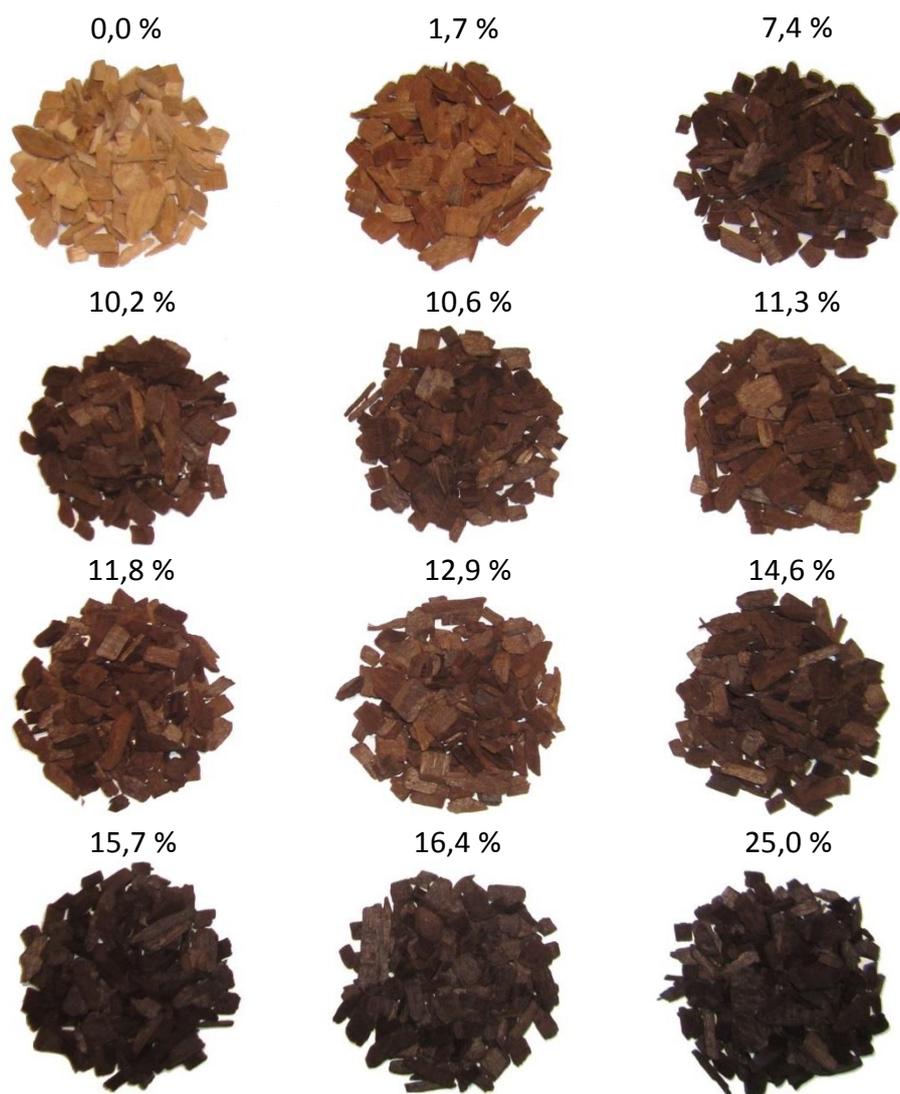


Figure 94 : Influence de la perte de masse sur l'aspect visuel des plaquettes de bois.

II. Composition

Pour les analyses de composition, les différentes biomasses ont préalablement été broyées dans un broyeur à couteaux Pulverisette 15 (Fritsch, Idar-Oberstein, Allemagne) équipé d'une grille à ouvertures trapézoïdales de 0,5 mm. Les échantillons sont ensuite séchés en étuve à 105 °C avant analyse.

II.1. Composition élémentaire

II.1.1. Principe de détermination

La composition élémentaire est déterminée par un analyseur NC 2100 (CE Instruments, Wigan, Angleterre). Une quantité de 2 à 4 mg d'échantillon est placée dans un creuset en étain. Le creuset est ensuite déposé dans un porte-échantillons d'où il tombe dans un four. Il

subit alors une combustion en présence d'une quantité fixée d'oxygène de pureté élevée ; les oxydes produits sont réduits dans une colonne réductrice à base de cuivre. Le gaz, additionné d'hélium faisant office de gaz vecteur, est alors séché puis les différentes espèces sont séparées dans une colonne de chromatographie avant d'être quantifiées par un catharomètre. Connaissant la masse initiale de solide et la composition du gaz produit, l'analyseur calcule la teneur massique du solide en C, H, N et S. La teneur en oxygène est ensuite déduite de ces valeurs. Pour cette étude, 3 analyses ont été répétées par échantillon.

II.1.2. Résultats

Les valeurs moyennes de composition élémentaire sont présentées dans le **Tableau 26**. L'incertitude de mesure, calculée en considérant un intervalle de confiance de 95 %, est donnée entre parenthèses. La perte de masse sèche *ML* mesurée pendant les essais est également rappelée.

Tableau 26 : Composition élémentaire, composition immédiate et PCS de la biomasse brute et des biomasses torréfiées.

Essai	ML (%)	Composition élémentaire (%)				Composition immédiate (%)			PCS (MJ/kg)
		C	H	N	O	MV	TC	CF	
Brut	0,0	47,19 (0,57)	5,97 (0,27)	0,17 (0,01)	46,68 (0,66)	84,95 (0,17)	0,54 (0,05)	14,51 (0,22)	19,46 (0,23)
TFT1	1,7	48,36 (0,62)	5,76 (0,22)	0,18 (0,02)	45,70 (0,76)	83,57 (0,24)	0,60 (0,02)	15,83 (0,26)	19,82 (0,09)
TFT7	10,2	51,01 (0,41)	5,37 (0,60)	0,41 (0,52)	43,21 (0,16)	80,27 (0,28)	0,66 (0,02)	19,07 (0,30)	20,02 (0,14)
TFT3	10,6	50,28 (0,25)	5,47 (0,37)	0,20 (0,02)	44,05 (0,20)	80,23 (0,21)	0,71 (0,01)	19,06 (0,22)	20,34 (0,10)
TFT8	11,3	50,60 (0,43)	5,54 (0,10)	0,23 (0,05)	43,63 (1,10)	80,14 (0,29)	0,68 (0,15)	19,18 (0,44)	19,98 (0,09)
TFT5	11,8	50,88 (0,47)	5,60 (0,10)	0,73 (0,35)	42,79 (0,85)	79,20 (0,22)	0,67 (0,02)	20,13 (0,24)	20,02 (0,12)
TFT4	12,9	50,22 (0,62)	5,53 (0,35)	0,21 (0,02)	44,05 (0,95)	79,49 (0,45)	0,66 (0,03)	19,85 (0,48)	20,04 (0,10)
TFT2	16,4	51,59 (0,15)	5,46 (0,20)	0,20 (0,02)	42,75 (0,09)	76,82 (0,30)	0,71 (0,10)	22,47 (0,40)	20,42 (0,20)
TFT6	25,0	54,00 (0,10)	5,24 (0,25)	1,06 (0,30)	39,70 (0,43)	72,15 (0,09)	0,76 (0,06)	27,09 (0,15)	21,61 (0,09)

Les teneurs en soufre étant inférieures au seuil de détection de l'analyseur pour l'ensemble des échantillons, les valeurs n'ont pas été reportées ici. La teneur en soufre sera négligée dans le calcul de la teneur en oxygène.

La principale observation est qu'il y a concentration du carbone lorsque la perte de masse augmente. La teneur en carbone passe en effet de 47,2 % pour la biomasse brute à 54,0 % lorsque la perte de masse engendrée par la torréfaction atteint 25,0 %. Cette augmentation, réalisée au détriment des teneurs en hydrogène et en oxygène, est principalement la conséquence du départ des groupements hydroxyles, comme signalé dans l'état de l'art. La teneur en azote ne montre pas de tendance évidente. Il semble cependant qu'il y ait une légère concentration de cet élément même si les teneurs restent faibles (inférieures à 1 % pour la majorité des essais). Ceci est un point favorable pour l'utilisation de la biomasse torréfiée en combustion car les émissions d'oxydes d'azote seront limitées.

Connaissant la masse molaire des éléments considérés, il est possible de calculer les ratios atomiques H/C et O/C pour toutes les biomasses. Les résultats sont représentés sur le diagramme de Van Krevelen **Figure 95**.

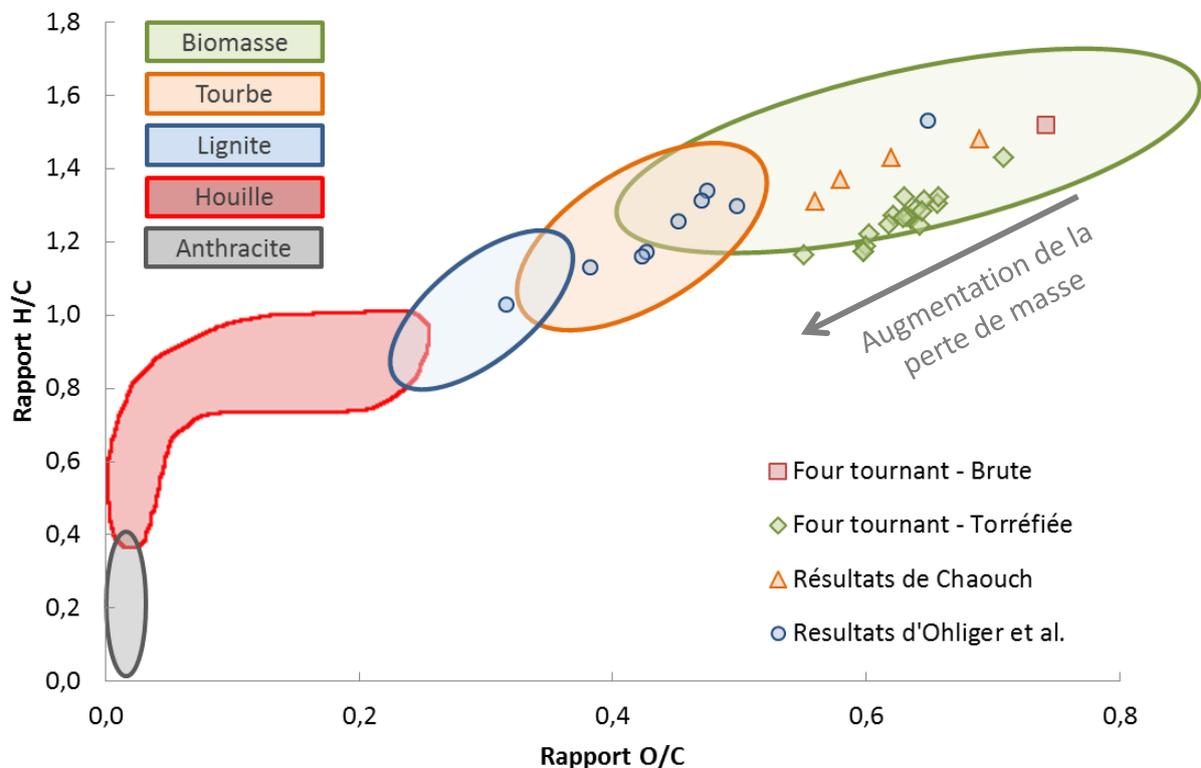


Figure 95 : Positionnement des biomasses brute et torréfiées sur le diagramme de Van Krevelen. Comparaison avec des résultats issus de la littérature [21,77].

A titre comparatif, les valeurs obtenues par d'autres auteurs ont été représentées :

- Les résultats obtenus par Chaouch [21] correspondent à des échantillons de hêtre ayant subi des pertes de masse de 0 à 15 % lors de la torréfaction,
- Les résultats obtenus par Ohliger *et al.* [77] correspondent à des échantillons de hêtre ayant subi des pertes de masse de 0 à 50 %.

L'évolution observée pour les échantillons torréfiés en four tournant est similaire à celles observées dans la littérature : dans tous les cas, l'évolution est linéaire. Il peut en être conclu que les différences observées sont dues aux compositions des biomasses brutes qui varient suivant les auteurs. Un impact des conditions de réalisation de la torréfaction est également envisageable mais reste difficile à interpréter.

L'évolution des teneurs en C, H et O mène à une diminution des ratios atomiques H/C et O/C. Même si la délimitation des domaines représentés sur cette figure reste approximative, il apparaît clairement que la composition de la biomasse se rapproche de celle des matériaux fossiles comme la tourbe ou la houille lorsque la perte de masse augmente. L'écart de comportement en combustion entre le bois et le charbon serait donc réduit, ce qui fait de la torréfaction un prétraitement de choix pour la valorisation de la biomasse en co-combustion. L'observation des résultats d'Ohliger *et al.* permet d'évaluer l'influence qu'aurait une torréfaction en four tournant dans des conditions de traitement plus sévères (pertes de masses plus importantes).

II.2. Composition immédiate

II.2.1. Protocoles de détermination

Les teneurs en matières volatiles et en cendres sont déterminées suivant les normes NF EN 15148:2010-03 et NF EN 14775:2010-03 respectivement :

- **Teneur en matières volatiles** : $1 \pm 0,1$ g d'échantillon sec, pesé à 0,1 mg près, est placé dans un creuset en quartz avec couvercle dont la masse est connue (voir **Figure 96a**). Ce creuset est disposé sur le porte-creusets qui est alors placé pendant $7 \text{ min} \pm 5 \text{ s}$ dans un four à moufle préchauffé à 900 °C (voir **Figure 96b**). L'ensemble creusets + porte-creusets est ensuite ramené à température ambiante (en dessiccateur) puis les creusets sont pesés à nouveau. La perte de masse correspond au taux de matières volatiles MV (en %).

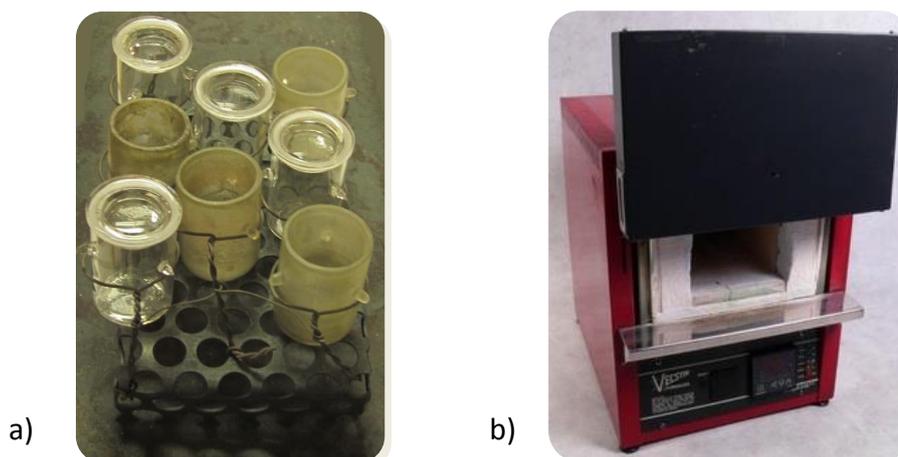


Figure 96 : a) Creusets et porte-creusets utilisés pour la détermination des teneurs en matières volatiles et en cendres et b) exemple de four à moufle.

- **Teneur en cendres** : le protocole de préparation des échantillons est identique à celui utilisé pour la détermination de la teneur en matières volatiles. Les creusets sont cependant utilisés sans couvercles. Le porte-creusets est placé dans un four à moufles programmable non préchauffé. Le four est amené à 250 °C avec une vitesse de chauffe de 5,5 °C/min. Un palier de 60 min est réalisé à cette température. Une rampe à 10 °C/min est ensuite utilisée pour monter à 550 °C, température à laquelle le four est maintenu pendant 120 min. Après retour à la température ambiante, les creusets sont à nouveau pesés. La masse de solide résiduel permet le calcul du taux de cendres TC (en %).

- **Teneur en carbone fixe CF** (en %) : elle est calculée par différence suivant l'Équation 99.

$$CF = 100 - MV - TC \quad \text{Équation 99}$$

II.2.2. Résultats

Les valeurs de composition immédiate sont synthétisées dans le **Tableau 26**. La torréfaction a comme conséquence directe la diminution de la teneur en matières volatiles, ce qui conduit à une concentration du carbone fixe et des cendres. Les évolutions observées pour les teneurs en matières volatiles et en cendres sont représentées et comparées aux valeurs obtenues par Ohliger *et al.* [77] sur la **Figure 97**.

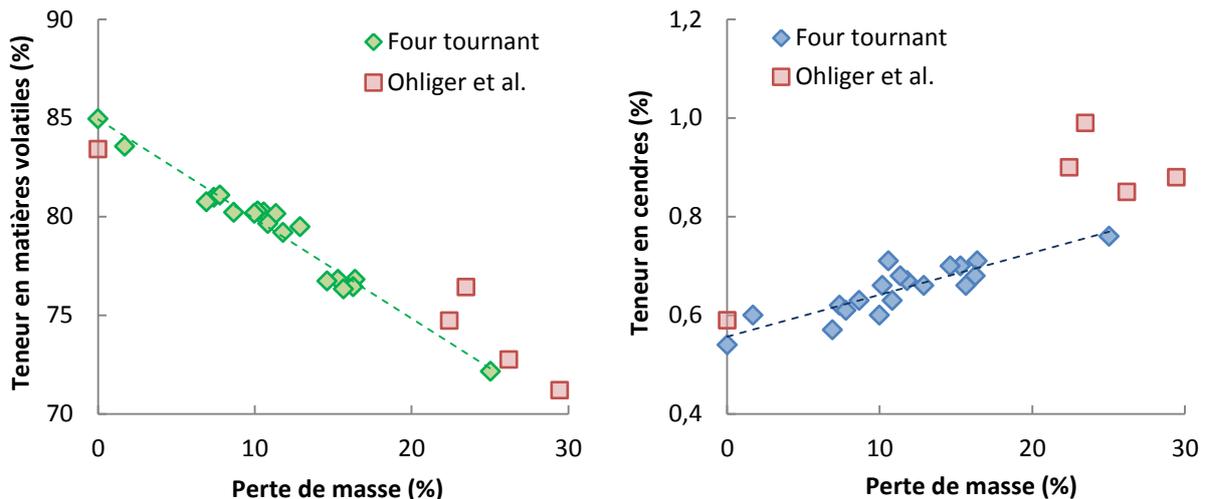


Figure 97 : Évolutions de la teneur en matières volatiles et de la teneur en cendres lors de l'augmentation de la perte de masse. Comparaison avec les résultats de la littérature [77].

La teneur en matières volatiles diminue donc linéairement avec l'augmentation de la perte de masse lors de la torréfaction ce qui semble en accord avec les résultats tirés de la littérature. Sur la gamme de pertes de masse étudiée, MV varie entre 84,95 % pour la biomasse brute et 72,15 % pour la biomasse la plus torréfiée (ML=25,0 %). La teneur en cendres reste très faible et varie entre 0,54 et 0,76 %. Une telle augmentation pourrait cependant s'avérer problématique dans le cas où la biomasse utilisée possède initialement une forte teneur en cendres.

Enfin, la teneur en carbone fixe montre une augmentation importante en passant de 14,51 % pour la biomasse brute à 27,09 % pour la biomasse la plus torréfiée.

II.3. Pouvoir calorifique et rendement énergétique

II.3.1. Mesure du PCS et calcul du rendement énergétique

L'un des effets recherchés lors de la torréfaction est la densification énergétique de la biomasse. En effet, les modifications chimiques observées précédemment impactent le contenu énergétique de la matière. L'objectif est donc ici de mesurer le pouvoir calorifique de la biomasse. Ces mesures ont été réalisées à l'aide d'un calorimètre IKA® C5000. Le principe est qu'une quantité connue de biomasse est placée dans une bombe calorimétrique, elle-même immergée dans de l'eau à une température fixée. La bombe calorimétrique est alors saturée en oxygène sous pression puis un système d'allumage (fil conducteur) initie la combustion de la biomasse. L'élévation de température de l'eau est mesurée et, connaissant la capacité thermique du calorimètre, il est possible de calculer

l'énergie dégagée par la combustion. L'eau produite par la combustion étant condensée dans la bombe calorimétrique, c'est le Pouvoir Calorifique Supérieur (PCS) qui est déterminé.

La nécessité de mettre la bombe calorimétrique sous pression interdit l'utilisation de solides sous forme de poudres. En effet, l'injection de l'oxygène disperserait les particules ce qui pourrait fausser les mesures et créer une atmosphère explosive. Une presse hydraulique a donc été utilisée afin de produire des pastilles avec le bois sec broyé. La masse de ces pastilles est de $1 \pm 0,1$ g pesée à 0,1 mg près.

Le rendement énergétique η_{ener} tient compte du rendement massique η et de l'évolution du PCS au cours de la torréfaction. Il est calculé suivant l'Équation 100.

$$\eta_{ener} = \eta \times \frac{PCS_{\text{bois torréfié}}}{PCS_{\text{bois brut}}} \quad \text{Équation 100}$$

II.3.2. Résultats

Les PCS mesurés pour les différentes biomasses sont présentés Figure 98a.

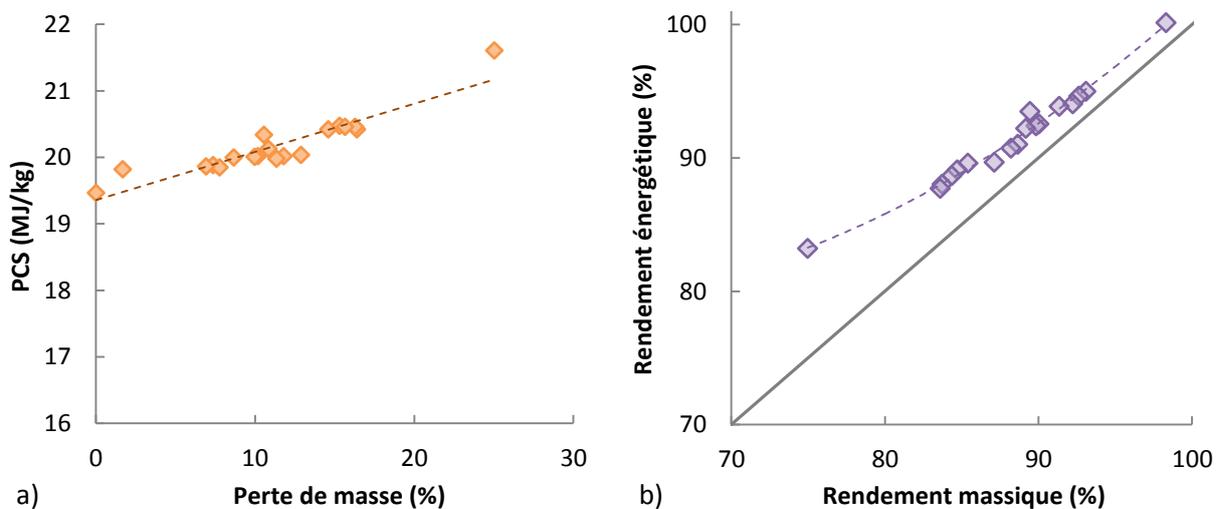


Figure 98 : a) Influence de la perte de masse sur le pouvoir calorifique supérieur de la biomasse et b) comparaison du rendement énergétique au rendement massique de la torréfaction.

Lorsque la perte de masse augmente, il y a bien augmentation du pouvoir calorifique de la biomasse. Le PCS passe ainsi de 19,46 MJ/kg pour la biomasse brute à 21,61 MJ/kg pour le bois ayant subi une perte de masse de 25 %. Ceci représente une augmentation de 11 % de la densité énergétique du matériau. A titre de comparaison, le PCS de la lignite peut atteindre environ 25 MJ/kg et les charbons les plus concentrés en carbone ont un PCS variant entre 32 et 37 MJ/kg [192].

Si l'augmentation du PCS reste assez limitée, elle permet néanmoins de contrebalancer en partie la perte de masse. Ainsi, le rendement énergétique est toujours supérieur au rendement massique, comme illustré **Figure 98b**. En effet, sur le domaine étudié, le rendement énergétique est toujours plus important que le rendement massique et l'écart entre ces deux rendements semble même s'accroître quand l'intensité de la torréfaction augmente.

II.4. Teneur en fibres

II.4.1. Protocole expérimental

La détermination des teneurs en cellulose, hémicellulose et lignine étant complexe à mettre en œuvre, une méthode de Van Soest modifiée a été choisie. Cette méthode rapide a initialement été développée pour l'étude de la digestibilité des fourrages, mais elle est fréquemment utilisée pour les biomasses forestières [100,110]. La **Figure 99** présente les équipements utilisés et le principe de la méthode.

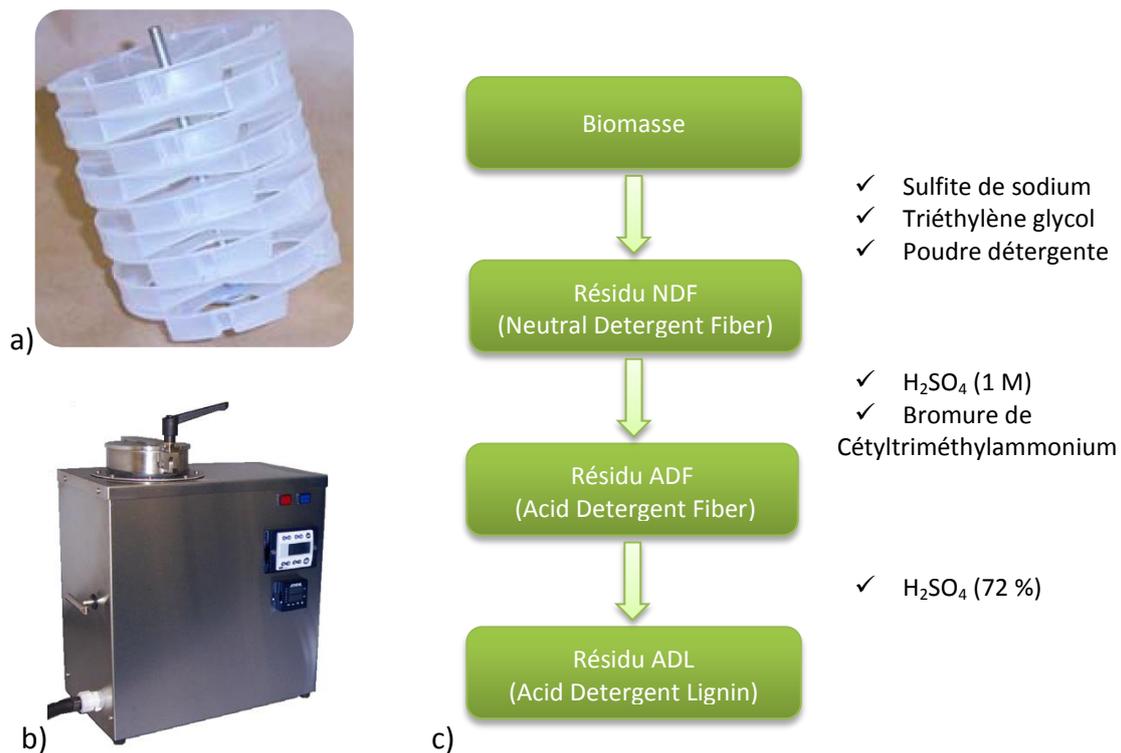


Figure 99 : a) Porte-échantillons, b) Dispositif A200 (ANKOM, Macedon, États-Unis) et c) schéma de principe du protocole de détermination de la teneur en fibres.

Les biomasses sèches broyées sont tamisées afin de ne conserver que la fraction dont la taille de particules est supérieure à 100 µm. Les échantillons sont ensuite répartis dans des

sachets filtres à raison de $0,5 \pm 0,05$ g (pesés à 1 mg près) par sachet et minimum 3 sachets par échantillon. Les sachets sont thermosoudés afin d'éviter la perte de particules.

Le porte échantillon présenté **Figure 99a** permet d'effectuer simultanément les mesures sur 24 sachets (dont 2 blancs sans biomasse). Il est placé dans la cuve du dispositif A 200 de la **Figure 99b**. La détermination de la composition est réalisée en trois temps :

- **Attaque NDF (Neutral Detergent Fiber)** : une solution NDF composée d'eau distillée, de sulfite de sodium, de triéthylène glycol et de poudre détergente (laurylsulfate de sodium, EDTA-disodium, borate de sodium et phosphate de sodium) est versée dans la cuve jusqu'à recouvrir le porte-échantillons. La solution est ensuite chauffée à 100 °C et un mobile impose au porte-échantillons des mouvements verticaux qui permettent l'agitation de cette solution. L'extraction dure 75 min à la suite desquelles les sachets sont rincés à l'eau, à l'acétone puis séchés. Une fois secs, les sachets sont pesés. La masse perdue correspond aux matières facilement extractibles et solubles dans un détergent neutre. La masse restante est appelée résidu NDF.

- **Attaque ADF (Acid Detergent Fiber)** : la solution utilisée est composée d'acide sulfurique (1 mol/L) et de bromure de bétyltriméthylammonium. L'extraction, sous chauffage à 100 °C et agitation, dure 60 min. Les sachets sont à nouveau rincés à l'eau et à l'acétone, séchés et pesés. La fraction dégradée lors de cette étape est principalement composée des hémicellulose. La masse restant est appelée résidu ADF.

- **Attaque ADL (Acid Detergent Lignin)** : la solution est composée d'acide sulfurique à 72 %. L'extraction est réalisée à température ambiante pendant 3 h. Les sachets sont ensuite rincés à l'eau et à l'acétone, séchés et pesés. La fraction dégradée lors de cette étape est principalement la cellulose. La masse restant est appelée résidu ADL et contient principalement les lignines acido-insolubles et les cendres. Les taux de cendres sont ensuite déterminés par calcination des sachets.

Pour résumer, malgré les incertitudes sur la nature des composés dégradés à chaque étape, les résultats peuvent être analysés suivant l'**Équation 101** en première approximation.

$$\begin{cases} \text{Hémicellulose} = \text{NDF} - \text{ADF} \\ \text{Fibres acido-solubles (principalement cellulose)} = \text{ADF} - \text{ADL} \\ \text{Fibres acido-insolubles (principalement lignine)} = \text{ADL} - \text{cendres} \end{cases} \quad \text{Équation 101}$$

II.4.2. Résultats

Six biomasses, choisies pour couvrir l'ensemble du domaine de pertes de masse étudié, ont été analysées par cette méthode. Les résultats sont présentés **Figure 100**.

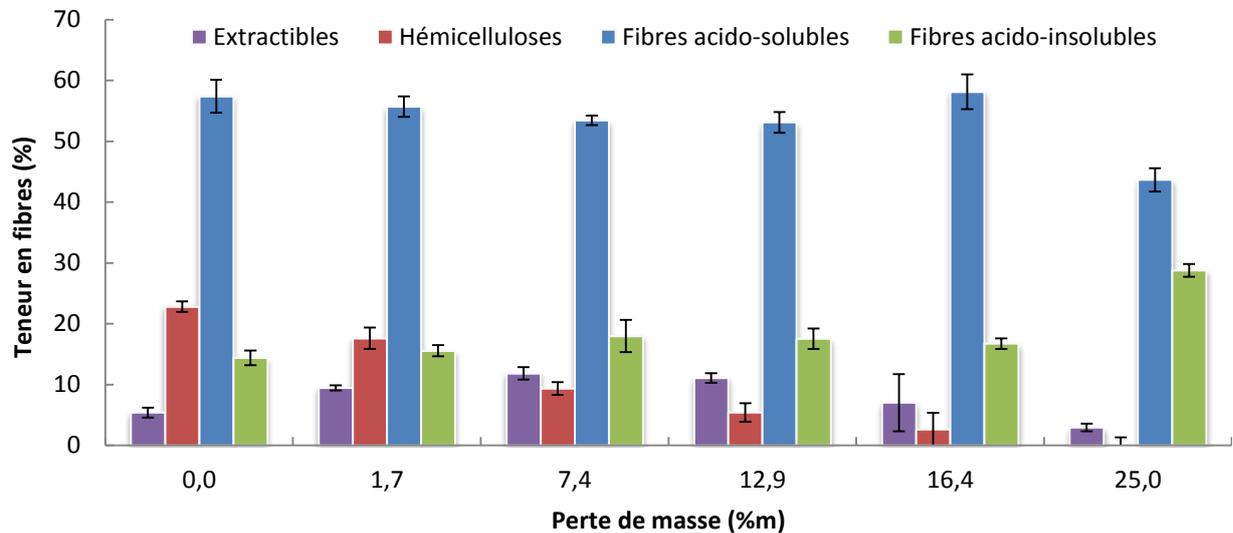


Figure 100 : Teneurs en fibres des biomasses brute et torréfiées
(les teneurs en fibres ont été pondérées par le rendement massique de la torréfaction).

Pour du hêtre brut provenant du même fournisseur, Nocquet *et al.* [18] avaient mesuré une teneur en hémicellulose plus élevée (31,1 % contre 22,8 % ici), une teneur en cellulose plus faible (43,3 % contre 57,4 % ici) et une teneur en lignine plus élevée (22,0 % contre 14,4 % ici). La lignine avait alors été quantifiée par la méthode de Klason (TAPPI T222 om-83). Les teneurs en cellulose et hémicellulose avaient été estimées par hydrolyse acide puis quantification des monomères par chromatographie (TAPPI T249 cm-85). Ceci démontre l'influence de la méthode de détermination choisie. Les valeurs présentées ne seront utilisées qu'à titre comparatif.

Les **extractibles**, qui représentent 5,4 % de la biomasse brute, montrent une évolution croissante lorsque la perte de masse augmente jusqu'à 7,4 %. Ceci indique qu'une partie des composés produits lors d'une torréfaction « légère » restent dans le solide sous forme de molécules faiblement liées aux fibres. Lorsque la perte de masse est plus importante, ces composés sont évacués avec les matières volatiles ce qui mène à une diminution de la quantité d'extractibles présents dans le solide final.

Les **hémicelluloses** sont les polymères les plus dégradés lors de la torréfaction, et ce dès les faibles pertes de masse. La teneur en hémicelluloses a été représentée en fonction de la perte de masse sur la **Figure 101**.

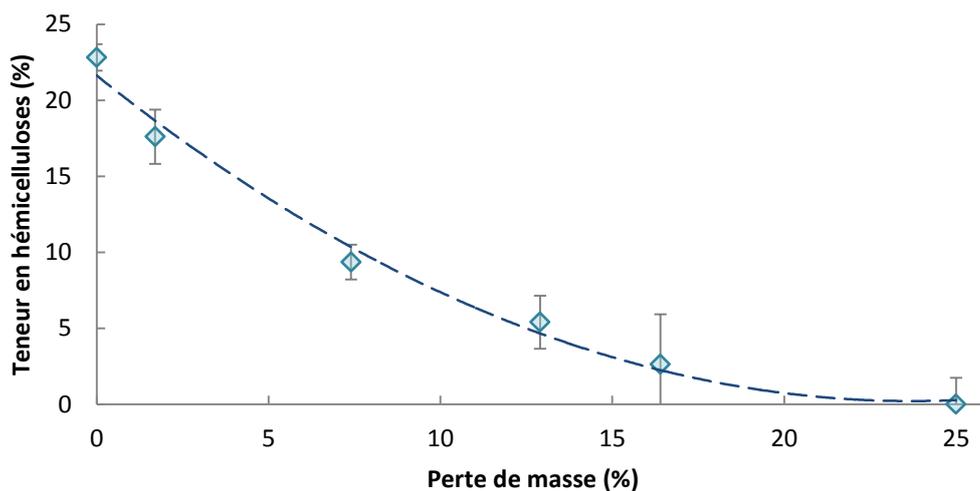


Figure 101 : Évolution de la teneur en hémicellulose avec la perte de masse lors de la torréfaction.

La tendance observée n'est pas linéaire comme il aurait pu être attendu. Pour les faibles pertes de masse, la diminution de la teneur en hémicelluloses est plus importante que la perte de masse. Ceci concorde avec l'augmentation de la teneur en extractibles. La teneur en hémicelluloses est de 22,8 % pour la biomasse brute et décroît très fortement pour atteindre 2,6 % dans les plaquettes torréfiées ayant subi une perte de masse de 16,4 % lors de la torréfaction. Lorsque la perte de masse est de 25,0 %, il n'y a plus d'hémicellulose dans le bois. Ces observations semblent en accord avec les mécanismes de torréfaction identifiés dans la littérature.

Dans le cas des **fibres acido-solubles**, majoritairement constituées de cellulose, aucune tendance significative n'est détectable pour les faibles pertes de masse (voir **Figure 100**). Cependant, une diminution importante est observée lorsque la perte de masse atteint 25 %. Pour les **fibres acido-insolubles**, principalement composées de lignines, aucune tendance n'est observable pour les faibles pertes de masse. Pour la plus forte perte de masse, la fraction de fibres acido-insolubles augmente, ce qui traduit un changement de configuration de l'un des composés (autre que la lignine) de la biomasse. L'analyse de ces résultats est compliquée car les fractions de fibres acido-solubles et acido-insolubles ne correspondent pas à des composés clairement identifiés. Deux phénomènes peuvent cependant expliquer les tendances observées : aux plus hautes températures de torréfaction, une partie de la cellulose est dégradée et une partie subit des réactions de réticulation qui la rendent résistante aux attaques acides [110].

En conclusion de cette analyse des teneurs en fibres, il apparaît que la méthode choisie a permis de corrélérer efficacement la teneur en hémicelluloses à la perte de masse des plaquettes torréfiées. Ceci est primordial pour l'évaluation du procédé de torréfaction étant donné que l'objectif final est de dégrader les hémicelluloses pour fragiliser le matériau. Enfin, il a été montré que les autres composés, notamment la cellulose, subissent également des modifications lorsque la perte de masse est importante. Suivant l'objectif du procédé, de telles informations pourraient être utilisées afin de déterminer les conditions optimales de traitement.

III. Evaluation de l'hygroscopicité

Le bois est un matériau hygroscopique : il a la capacité d'adsorber la vapeur d'eau présente dans l'atmosphère. Cette propriété est un désavantage pour sa valorisation énergétique car l'eau a un effet négatif sur les rendements des procédés. Bien que l'impact de la torréfaction sur l'hygroscopicité du matériau ait déjà été observé, peu de travaux se sont attachés à quantifier cette propriété.

III.1. Détermination des isothermes d'adsorption

III.1.1. Principe de la DVS (Dynamic Vapor Sorption) et protocole opératoire

L'étude dynamique de la sorption de la vapeur d'eau s'oppose à la méthode statique présentée au **Chapitre 1** sous l'appellation « méthode des solutions salines ». Dans les deux cas, le concept est identique : le matériau est soumis à une atmosphère d'humidité et de température contrôlées et son humidité est déterminée par pesée. La principale différence entre ces deux méthodes réside donc dans le temps nécessaire à leur réalisation. Dans le cas de la méthode statique, plusieurs semaines sont nécessaires pour atteindre l'équilibre à une température et une humidité données. Par contre, en DVS, le matériau est soumis à un flux convectif qui favorise les échanges ce qui réduit considérablement le temps nécessaire à l'obtention de l'équilibre. Ce temps est alors de quelques heures.

L'équipement utilisé pour la réalisation des mesures est une DVS-2 (Surface Measurement System, Londres, Angleterre). Le principe est représenté **Figure 102**.

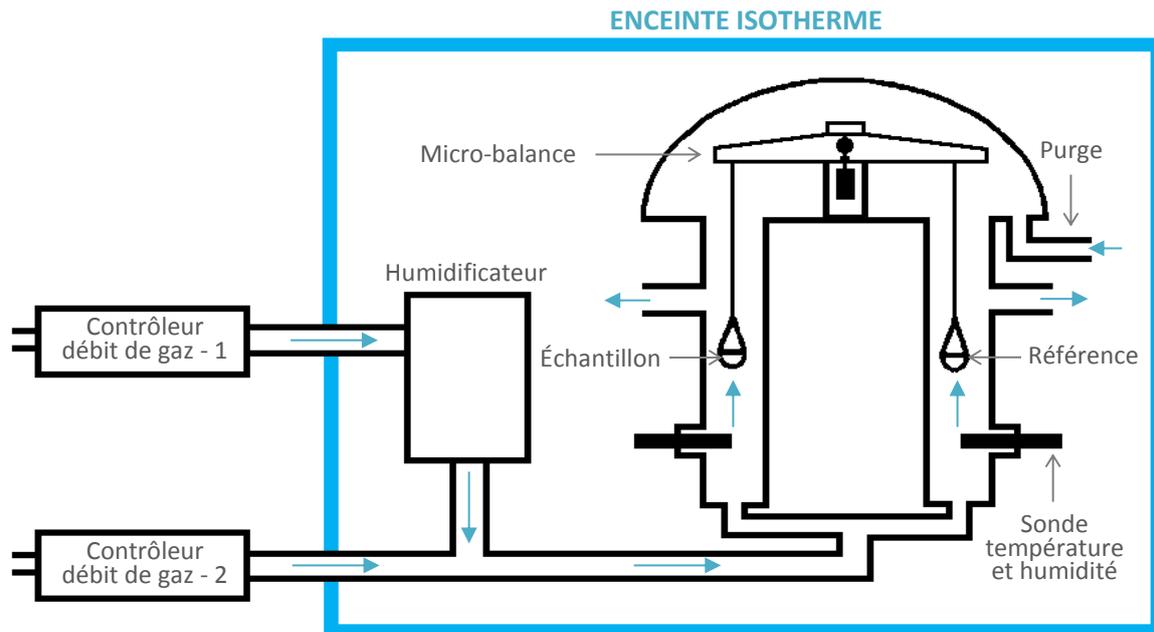


Figure 102 : Représentation schématique de l'installation de mesure de DVS.

Une balance de précision est placée dans une enceinte isotherme dont la température peut être réglée entre l'ambiante et 45 °C. Deux plateaux en quartz sont disposés de part et d'autre de la balance : l'un reste vide et sert de référence, l'autre reçoit l'échantillon à analyser. Un flux de gaz (azote dans le cas présent) est saturé en vapeur d'eau par bullage dans de l'eau liquide avant d'être mélangé à un flux d'azote pur dans des proportions permettant l'obtention de l'humidité relative souhaitée. L'humidité et la température du gaz ainsi produit sont contrôlées en continu par des sondes situées sous les plateaux en quartz. La tête de la balance est balayée par un flux d'azote sec afin d'éviter la condensation de la vapeur qui pourrait occasionner des perturbations voire une dégradation de l'équipement.

L'objectif de l'étude menée ici est de déterminer la reprise d'humidité des plaquettes de bois en sortie du procédé de torréfaction. Il a donc été décidé de travailler avec des échantillons non broyés : les plaquettes de bois sont placées sur le plateau en quartz de manière aléatoire. En effet, un empilement organisé limiterait le contact entre le matériau et le flux de vapeur. La masse utilisée pour les essais est de $0,7 \pm 0,1$ g pesée à 0,01 mg près. Les échantillons, initialement secs, sont dans un premier temps soumis à un flux de gaz à 0 %HR (% d'humidité relative) jusqu'à stabilisation de la masse. Des paliers successifs sont ensuite réalisés de 0 à 70 %HR avec un pas de 10 %HR. La transition d'un palier à l'autre intervient lorsque l'un des critères suivants est atteint :

- La variation de masse est inférieure à 0,0007 %/min (pourcentage calculé à partir de la masse initiale),
- Le temps passé sur le palier excède 500 min.

La température de l'enceinte lors des essais était de $19,8 \pm 0,7$ °C. Ces essais ont été réalisés sur du bois brut et 3 échantillons torréfiés dont les pertes de masse lors de la torréfaction étaient 7,8, 16,4 et 25,0 %.

III.1.2. Résultats expérimentaux de sorption

Les principaux résultats sont présentés **Figure 103**.

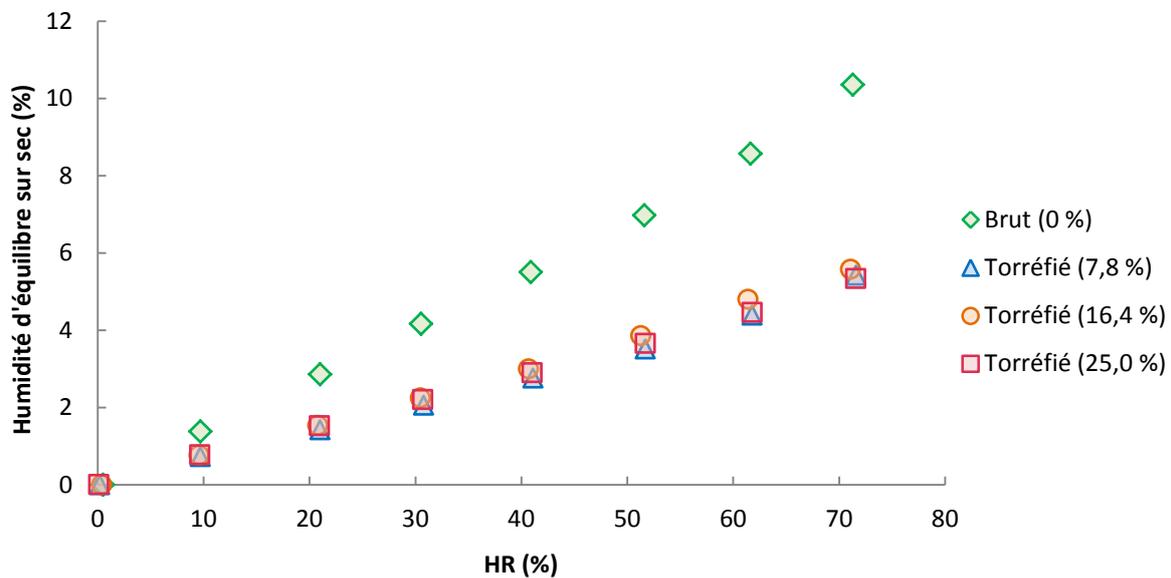


Figure 103 : Isothermes d'adsorption de la vapeur d'eau pour la biomasse brute et les trois biomasses torréfiées.

Ici, seule l'humidité des plaquettes à l'équilibre est reportée. Bien que les courbes n'aient pas été établies pour des humidités relatives élevées, l'allure observée est de type sigmoïde. Ceci correspond au type II de la classification des isothermes de sorption de l'IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry), caractéristique de l'adsorption multicouche des milieux non poreux ou macroporeux [193]. Les matériaux lignocellulosiques appartiennent classiquement à ce type [91,194].

Il apparaît clairement que le bois torréfié reprend moins d'humidité que le bois brut à conditions (température, HR) identiques. A 71 %HR, l'humidité d'équilibre des plaquettes non traitées est de 10,3 % alors qu'elle est de 5,3 % lorsque la biomasse a été torréfiée. De plus, sur la gamme de perte de masse étudiée, les capacités d'adsorption de la vapeur d'eau

sont indépendantes du degré de torréfaction. La diminution des propriétés hygroscopiques de la biomasse ne nécessite donc pas une dégradation intégrale des hémicelluloses. En effet, le départ des groupes hydroxyles est suffisant pour diminuer l'affinité du polymère avec l'eau. Il peut donc être conclu que la torréfaction permet une diminution conséquente de l'affinité des plaquettes de bois avec l'eau. Ceci représentera un réel avantage lorsque la biomasse sera stockée en vue de sa valorisation énergétique.

Pour deux échantillons de bois torréfié, une étape de désorption a été réalisée consécutivement à l'adsorption. La désorption a également été partiellement effectuée lors de l'analyse du bois brut. Les résultats sont présentés **Figure 104**.

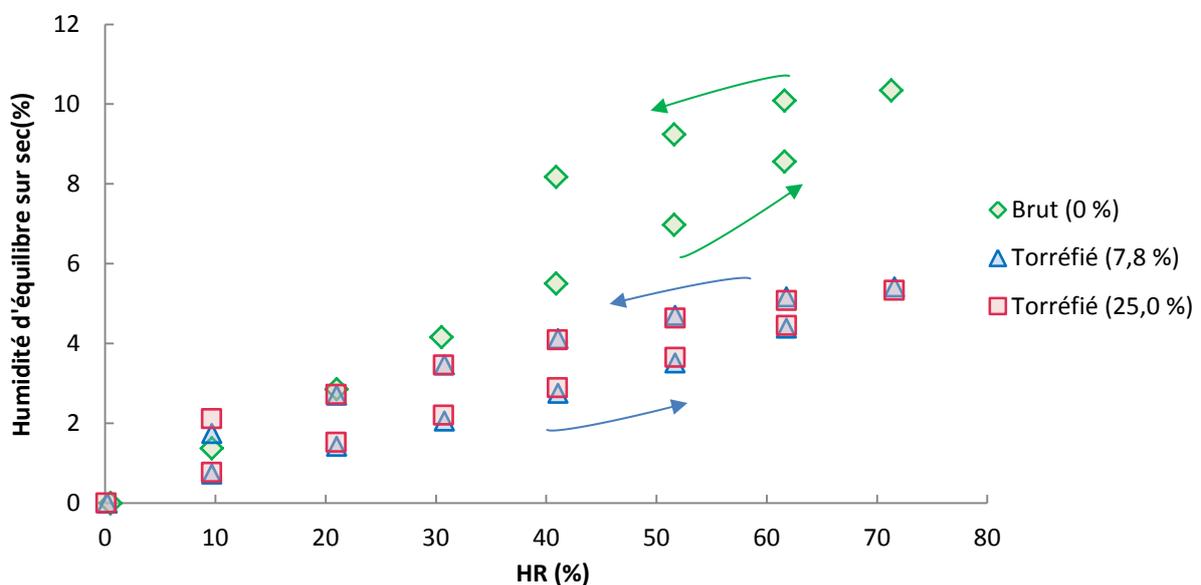


Figure 104 : Cycles adsorption-désorption de deux échantillons de bois torréfié et un échantillon de bois brut.

Bien que les deux échantillons torréfiés aient subi des pertes de masse très différentes, les comportements observés sont identiques. La différence observée lors de l'adsorption entre les plaquettes brutes et les plaquettes torréfiées est également visible lors de la phase de désorption. Cette figure met également en évidence le phénomène d'hystérésis : à une humidité relative donnée, l'humidité d'équilibre du bois est plus élevée au cours de la désorption qu'au cours de l'adsorption. Une des explications les plus courantes de ce phénomène [87,89] est que lors de la désorption, les sites de sorption non occupés par les molécules d'eau se lient entre eux. Ceci est également favorisé par le retrait volumique du bois qui rapproche les polymères les uns des autres. Ainsi, lors de la phase d'adsorption suivante, moins de sites sont disponibles pour la fixation de l'eau, ce qui conduit à de plus

faibles humidités d'équilibre. Au cours de l'adsorption, le gonflement du bois libère progressivement des sites de sorption qui deviennent à nouveau disponibles pour l'eau.

Dans la littérature, l'effet du traitement thermique sur le phénomène d'hystérésis n'est pas tranché : certains auteurs concluent à une augmentation de l'hystérésis [89], d'autres à une diminution [92] et d'autres encore à l'absence d'effet [19]. Il faut cependant noter que ces études ont été menées sur des bois traités à des températures de l'ordre de 180-220 °C. Aux températures de torréfaction étudiées ici, une diminution de l'hystérésis est clairement visible, comme l'illustre la **Figure 105**.

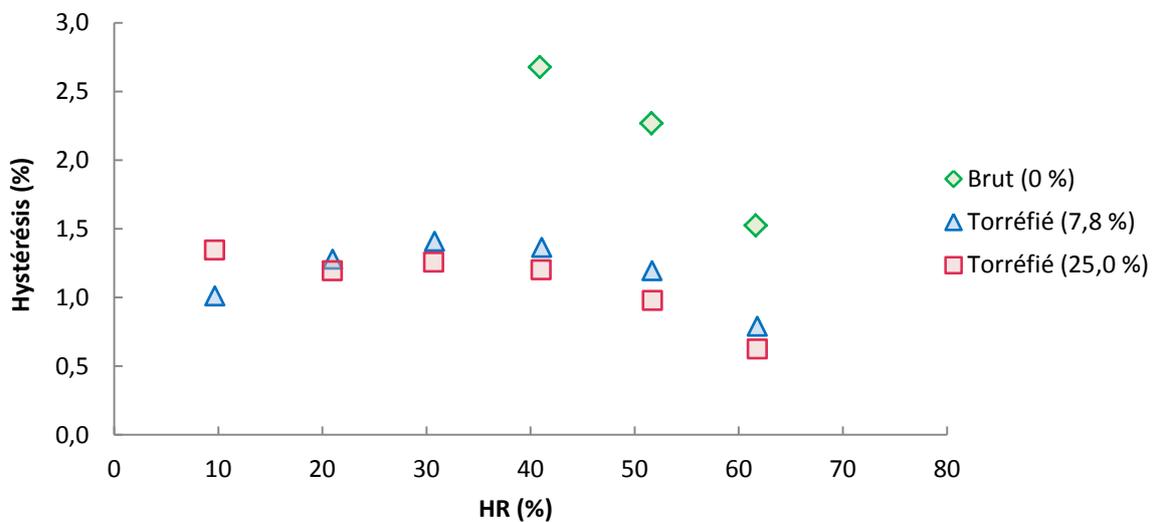


Figure 105 : Évolution de l'hystérésis en fonction de l'humidité relative pour deux échantillons de bois torréfié et pour le bois brut.

L'hystérésis est ici définie comme la différence entre les valeurs obtenues lors de la phase de désorption et les valeurs obtenues lors de la phase d'adsorption. Ainsi, l'hystérésis est deux fois moins importante lorsque les plaquettes ont été torréfiées.

III.2. Identification de modèles classiques

III.2.1. Présentation des modèles

Pour finir l'étude de l'affinité avec l'eau, il a été décidé d'appliquer des modèles classiques pour représenter les isothermes d'adsorption. Ces modèles peuvent être classés en deux grandes catégories : les modèles théoriques et les modèles empiriques. Ces modèles relient l'humidité d'équilibre de l'échantillon $X_{éq}$ à l'activité de l'eau a_w . En assimilant la vapeur d'eau à un gaz parfait, l'activité peut être définie suivant l'**Équation 102** [195].

$$a_w = \frac{P_v(T)}{P_{v,sat}(T)} = \frac{HR}{100} \quad \text{Équation 102}$$

Où $P_v(T)$ et $P_{v,sat}(T)$ sont respectivement la pression partielle en vapeur d'eau et la pression de vapeur saturante à la température T .

Les principaux **modèles théoriques** sont les suivants [196]:

- Le modèle BET (Brunauer-Emmett-Teller) suppose une adsorption en multicouche. La première couche a une chaleur d'adsorption particulière et les suivantes sont assimilées à de l'eau pure. Ce modèle n'est valable que pour les faibles activités de l'eau (classiquement inférieures à 0,5). L'humidité d'équilibre de l'échantillon est alors régie par l'**Équation 103**.

$$X_{\text{éq}} = X_0 \frac{Ca_w}{(1 - a_w)(1 + (C - 1)a_w)} \quad \text{Équation 103}$$

Avec C une constante et X_0 la teneur en eau à la saturation de la monocouche.

- Le modèle GAB (Guggenheim-Anderson-de Boer) est une extension du modèle BET prenant en compte un comportement différent de l'eau pure pour les couches superposées. Cette adaptation est réalisée par l'intermédiaire d'un paramètre correctif K :

$$X_{\text{éq}} = X_0 \frac{CKa_w}{(1 - Ka_w)(1 + (C - 1)Ka_w)} \quad \text{Équation 104}$$

L'intérêt de cette expression est qu'elle est valide même pour des valeurs élevées de a_w (jusqu'à 0,9) et que les constantes C et K ont des significations physiques [197]:

$$\begin{cases} C = C_0 \exp\left(\frac{H_w - H_m}{R_{GP}T}\right) \\ K = K_0 \exp\left(\frac{H_w - H_q}{R_{GP}T}\right) \end{cases} \quad \text{Équation 105}$$

Avec H_w la chaleur de condensation de l'eau pure, H_m la chaleur de sorption totale de la première couche et H_q la chaleur de sorption totale des multicouches.

Les **modèles empiriques** les plus couramment employés pour caractériser la biomasse [87,91] sont ceux définis pour une large gamme d'activités de l'eau. Ces modèles sont systématiquement appelés à deux constantes nommées A et B :

- Modèle d'Oswin ($0,1 < a_w < 0,9$) :

$$X_{\text{éq}} = A \left(\frac{a_w}{1 - a_w}\right)^B \quad \text{Équation 106}$$

- Modèle de Halsey ($0,1 < a_w < 0,8$)

$$X_{\text{éq}} = \left(\frac{-A}{\ln(a_w)} \right)^{1/B} \quad \text{Équation 107}$$

- Modèle de Chung-Pfost ($0,2 < a_w < 0,9$)

$$X_{\text{éq}} = \frac{1}{B} \left(\ln(A) - \ln(-\ln(a_w)) \right) \quad \text{Équation 108}$$

Ces modèles mathématiques sont simples à mettre en œuvre et permettent généralement une bonne représentation des courbes obtenues expérimentalement.

Les constantes de ces modèles ont été identifiées afin de minimiser l'écart modèle-expérience sur l'ensemble du domaine étudié (0 – 70 %HR). Le modèle BET étant défini pour des activités de l'eau inférieures à 0,5, seuls les modèles GAB, Oswin, Halsey et Chung-Pfost sont conservés. Enfin, les comportements des trois échantillons torréfiés étant similaires, seuls les résultats du bois brut et du bois torréfié ayant subi une perte de masse de 7,8 % seront présentés.

III.2.2. Résultats de l'identification paramétrique

Les paramètres obtenus pour les 4 modèles sont présentés **Tableau 27**.

Tableau 27 : Paramètres des modèles d'adsorption obtenus après ajustement.

Modèle	GAB			Oswin		Halsey		Chung-Pfost	
	X_0	C	K	A	B	A	B	A	B
Brut	7,84	3,01	$6,40 \cdot 10^{-1}$	$6,43 \cdot 10^{-2}$	$5,59 \cdot 10^{-1}$	6,05	1,20	3,91	$2,55 \cdot 10^{-1}$
Torréfié	3,24	3,28	$7,40 \cdot 10^{-1}$	$3,26 \cdot 10^{-2}$	$5,76 \cdot 10^{-1}$	2,62	1,18	4,21	$5,22 \cdot 10^{-1}$

La **Figure 106** présente les résultats des simulations avec ces paramètres.

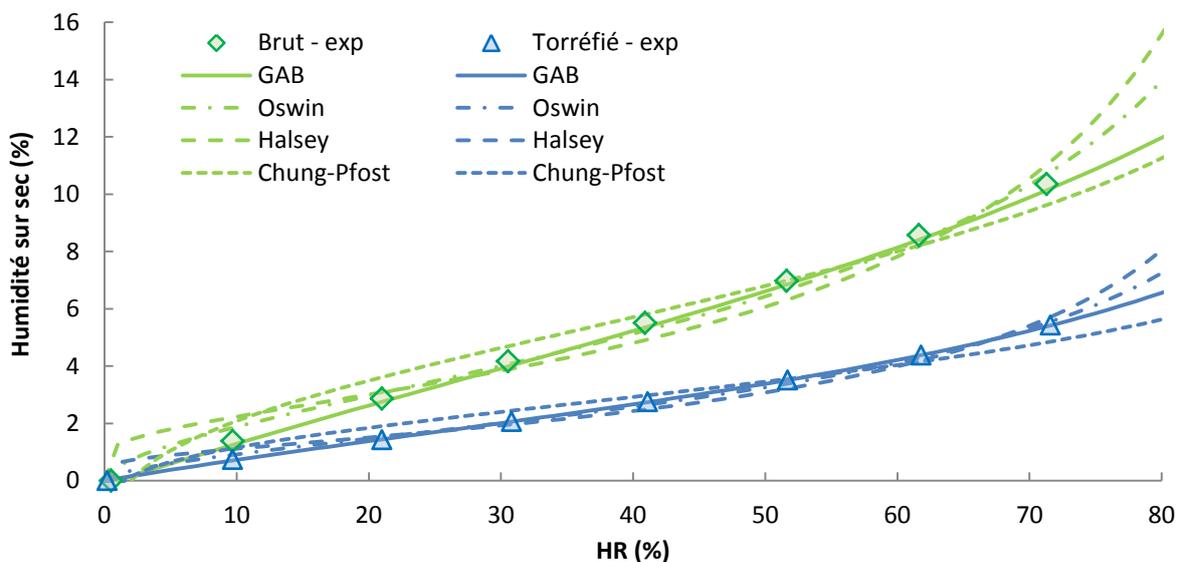


Figure 106 : Comparaison des résultats expérimentaux d'adsorption de vapeur d'eau avec les résultats des modèles pour le bois brut et le bois torréfié.

Ainsi, les modèles les plus fidèles aux résultats expérimentaux sont le modèle GAB et le modèle d'Oswin. Il faut cependant noter que les jeux de paramètres estimés ici sont adaptés sur la gamme allant de 0 à 70 %HR. Il serait intéressant de valider les modèles jusqu'à 90 %HR afin de représenter le comportement global des matériaux.

Afin de faciliter la comparaison des résultats de différents modèles, il est fréquemment proposé de tracer les résidus de l'ajustement en fonction de l'humidité d'équilibre [91]. Les résidus sont définis comme les différences entre les valeurs expérimentales et les valeurs prédites. La **Figure 107** représente les résidus pour les 4 modèles et les deux biomasses en fonction de l'humidité d'équilibre mesurée.

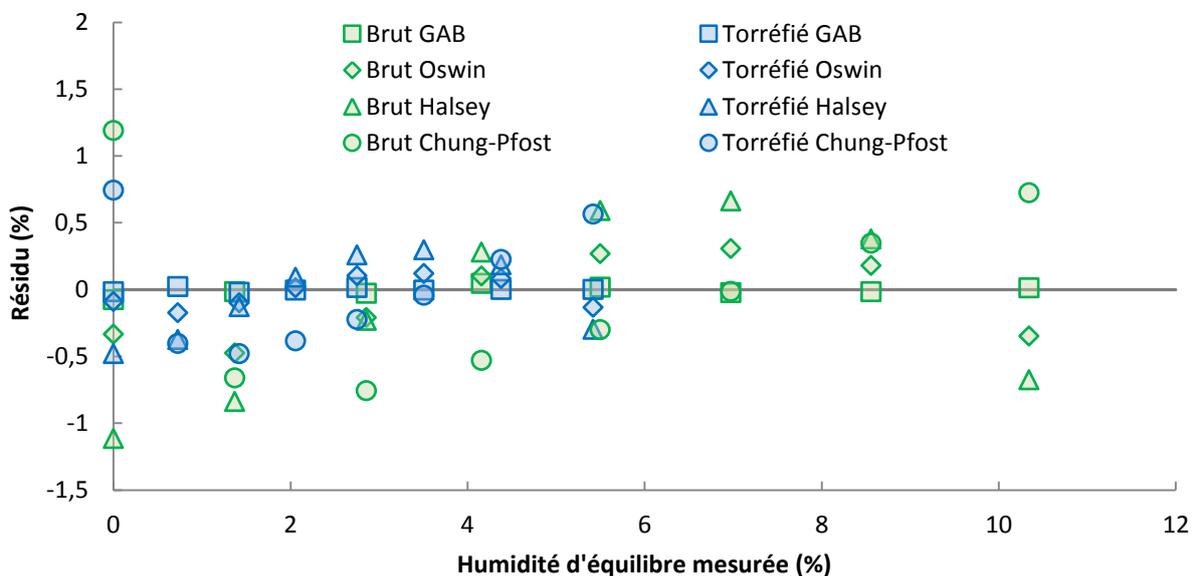


Figure 107 : Tracé des résidus en fonction de l'humidité d'équilibre mesurée.

L'objectif d'un tel tracé est d'identifier des tendances : un modèle est considéré comme adapté si la répartition des résidus est aléatoire. Le seul modèle ne montrant pas de réelle tendance est le modèle GAB. C'est de plus celui qui possède les plus faibles résidus pour les deux biomasses. Il peut être conclu que ce modèle est le plus pertinent pour représenter l'adsorption de vapeur d'eau des plaquettes brutes et torréfiées.

Pour ce modèle, l'analyse des paramètres déterminés lors de l'ajustement montre que la principale différence entre les deux biomasses réside dans la constante X_0 (voir **Tableau 27**). Cette constante est divisée par 2 après torréfaction, ce qui indique que la monocouche est saturée en eau à une plus faible humidité d'équilibre. La faible affinité du bois torréfié avec l'eau serait donc due à la diminution du nombre de groupements hydroxyles disponibles, même lorsque la perte de masse est faible.

IV. Evaluation de la broyabilité

Les mesures de broyabilité de la biomasse torréfiée, présentées dans l'état de l'art, n'ont pas permis de dégager de méthode optimale permettant la prise en compte simultanée de l'énergie consommée et de la granulométrie du broyat. Une nouvelle méthodologie sera donc proposée ici.

IV.1. Mise en place du dispositif expérimental

L'installation développée pour mesurer les énergies de broyage est présentée **Figure 108a**.

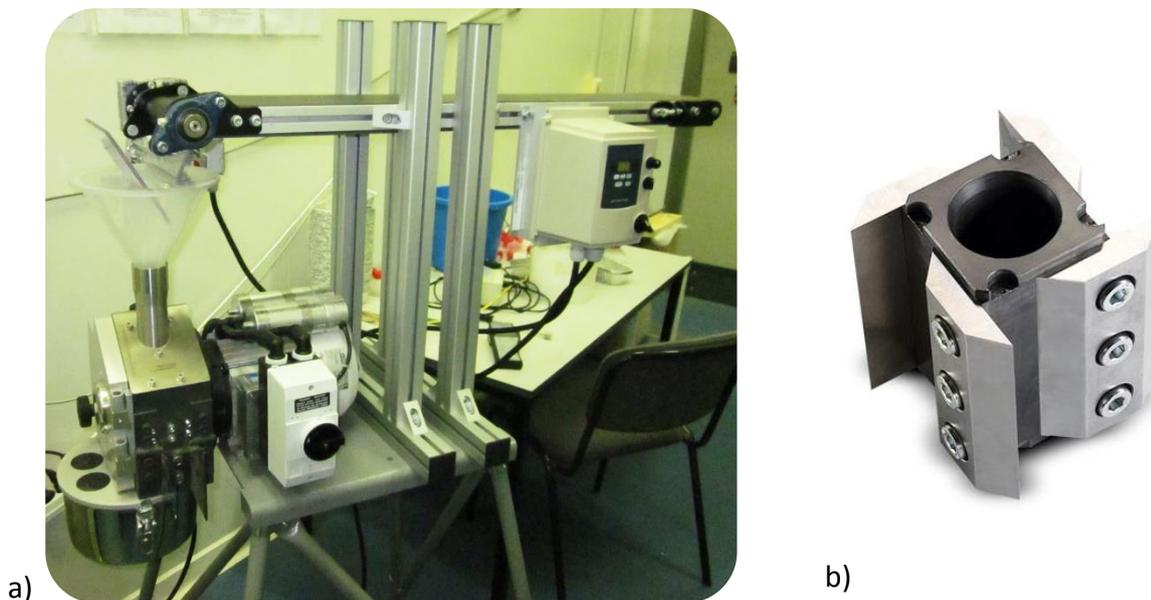


Figure 108 : a) Installation de mesure de l'énergie de broyage constituée d'un broyeur à couteaux (à gauche) alimenté par un convoyeur à bande (à droite) et d'un wattmètre (non photographié) et b) détail du rotor de broyage.

Le broyeur de laboratoire Pulverisette 15 (Fritsch, Idar-Oberstein, Allemagne) est équipé d'un rotor à 4 lames en acier (voir **Figure 108b**) et la chambre de broyage est également pourvue de 2 contre-couteaux fixes. Le rotor est entraîné par un moteur électrique de puissance maximale 2,1 kW. La puissance réellement consommée est mesurée en continu par un wattmètre numérique ISW 8350 (leS Instruments et Systèmes, Grigny, France). Un ordinateur permet l'acquisition des données (1 valeur par seconde).

Un convoyeur à bande BCO40 END ECO (Néolution, Mions, France) de longueur 1 m et de largeur 0,15 m a été installé pour alimenter le broyeur en continu. La bande en PVC est entraînée par un moteur équipé d'un motoréducteur et d'un variateur de fréquence permettant la régulation de la vitesse d'avance entre 0 et 0,6 m/min. Le produit à broyer

chute du convoyeur dans la trémie du broyeur (équipée d'une chicane anti-reflux) qui l'achemine jusqu'à la chambre de broyage. Le broyeur peut également être alimenté manuellement. En sortie du broyeur, différentes grilles peuvent être utilisées suivant la granulométrie souhaitée pour le broyat :

- Grilles à perforations trapézoïdales de 0,5 ou 1 mm,
- Grille à perforations carrées de 4 mm.

Enfin, le broyat est récupéré dans un pot fixé de manière étanche sous la grille.

IV.2. Etablissement du protocole

Deux méthodes ont été envisagées pour réaliser les mesures d'énergie de broyage. Les deux protocoles seront décrits, puis leurs résultats respectifs seront comparés afin de choisir la méthode la plus adaptée.

IV.2.1. Description des protocoles

La première méthode, dite à « **faible puissance** », consiste en l'**alimentation continue** en biomasse. Le mode opératoire est le suivant :

- 1) Démarrage de l'acquisition des mesures du wattmètre,
- 2) Mise en marche du broyeur et fonctionnement à vide pendant 100 s pour établir la ligne de base de la mesure de puissance,
- 3) Mise en mouvement du convoyeur à bande (la bande ayant préalablement été chargée d'un lit de plaquettes le plus homogène possible – en largeur et épaisseur – et dont la masse est connue),
- 4) Réglage de la vitesse d'avance de la bande afin d'éviter l'accumulation de plaquettes de bois à la base de la trémie,
- 5) Arrêt du convoyeur une fois celui-ci vide,
- 6) Arrêt du broyeur une fois la puissance consommée par le moteur redevenue stable,
- 7) Arrêt de l'acquisition du wattmètre.

Le deuxième protocole, dit à « **forte puissance** », est basé sur une **alimentation manuelle** de la biomasse. Seules les étapes 3 à 5 diffèrent du protocole précédent. Les plaquettes sont préalablement réparties en 6 échantillons de masse connue d'environ 50 g chacun. Ces échantillons sont alors chargés dans la trémie successivement et la biomasse est forcée dans

la chambre de broyage à l'aide d'un poussoir. La pression exercée sur le poussoir est ajustée en temps réel par l'opérateur afin d'atteindre une puissance instantanée – consommée par le moteur – située entre 1000 et 1200 W.

Quel que soit le protocole choisi, l'installation est vidée et nettoyée après chaque essai. La biomasse contenue dans le pot de récupération est conservée pour l'analyse granulométrique et celle située dans la chambre de broyage est jetée.

IV.2.2. Comparaison des résultats des deux méthodes

Les signaux de puissance enregistrés par l'intermédiaire du wattmètre pour les deux méthodes sont présentés **Figure 109**. La grille à perforations de 0,5 mm a été utilisée.

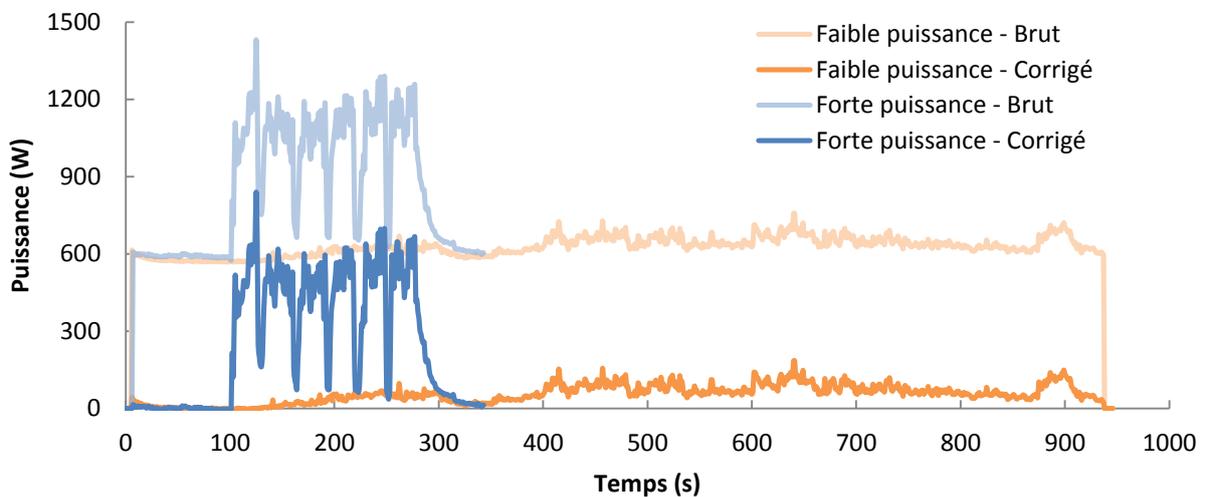


Figure 109 : Comparaison des signaux bruts et corrigés obtenus lors de la mesure d'énergie de broyage suivant les méthodes à faible et à forte puissances.

Les signaux bruts permettent l'évaluation de la consommation à vide du broyeur (appelée ligne de base) : environ 600 W. Une légère surconsommation est visible durant les quelques secondes consécutives à la mise en route du broyeur. Chaque signal est ensuite corrigé en soustrayant à l'ensemble de l'essai la valeur moyenne de la puissance à vide enregistrée entre 40 et 100 s. Les signaux corrigés sont également présentés **Figure 109**.

Pour choisir la méthode, un des premiers critères de sélection identifiés est le rapport $\frac{\text{puissance lors du broyage}}{\text{puissance à vide}}$. En moyenne, ce rapport est inférieur à 1,2 pour la méthode à faible puissance. En effet, lorsque l'alimentation du broyeur est continue, la pression exercée sur la biomasse située entre la trémie et la chambre de broyage est insuffisante pour forcer une quantité importante de plaquettes à pénétrer dans la chambre de broyage. De plus, des

voûtes ont tendance à se former à l'entrée de cette chambre ce qui limite encore le débit de broyage. Pour la méthode à forte puissance, le rapport $\frac{\text{puissance lors du broyage}}{\text{puissance à vide}}$ est environ égal à 2, ce qui est jugé acceptable. Pour cette méthode, les pics correspondant aux 6 échantillons sont clairement visibles et le temps écoulé entre ces pics est d'environ 5 s.

L'énergie consommée lors du broyage est calculée par intégration de la courbe de puissance corrigée par la méthode des trapèzes implémentée sous MATLAB®. Le résultat final est obtenu en divisant cette valeur par la masse totale de biomasse broyée.

Afin de permettre la sélection définitive de la méthode, les deux protocoles ont été testés à 5 reprises sur du bois brut ($H_s \approx 10\%$) et à 5 reprises sur un bois torréfié ayant subi une perte de masse ML d'environ 10%. Les résultats sont résumés dans le **Tableau 28**.

Tableau 28 : Énergies de broyage obtenues par les deux méthodes expérimentales avec du bois brut et du bois torréfié.

Biomasse	Faible puissance	Forte puissance
Bois brut ($H_b \approx 9\%$)	399 ± 47 kJ/kg	340 ± 9 kJ/kg
Bois torréfié ($ML \approx 10\%$)	152 ± 14 kJ/kg	109 ± 4 kJ/kg

Comme attendu, l'énergie nécessaire au broyage du bois torréfié est plus faible que celle nécessaire au broyage du bois brut. Cette tendance est observée quelle que soit la méthode utilisée. Cependant, il apparaît que l'incertitude de mesure liée à la méthode à faible puissance est 3 à 5 fois plus élevée que celle liée à la méthode à forte puissance. Ceci est probablement une conséquence du rapport $\frac{\text{puissance lors du broyage}}{\text{puissance à vide}}$. En effet, lorsque ce rapport est faible, les variations de puissance de la ligne de base ont un impact important sur les valeurs de puissance mesurées.

Enfin, il convient de noter que les énergies de broyage calculées lors de l'utilisation de la méthode à faible puissance sont plus élevées qu'avec la méthode à forte puissance. Une hypothèse pour expliquer cette observation est que le rendement du broyeur dépend de la puissance à laquelle il fonctionne. Un fonctionnement à 1200 W serait donc plus proche de la puissance nominale, permettant ainsi l'obtention d'un meilleur rendement. Il peut être conclu de cette observation qu'il est primordial de réaliser les mesures d'énergie de broyage dans une gamme de puissances aussi restreinte que possible.

En conclusion, la méthode à forte puissance semble la plus adaptée aux mesures d'énergie de broyage et seule cette méthode sera utilisée dans la suite de ces travaux.

IV.3. Broyabilité des différentes biomasses

IV.3.1. Comparaison biomasse brute / biomasse torréfiée

Les mesures ont été réalisées sur la biomasse brute et sur 11 biomasses torréfiées dont la perte de masse lors de la torréfaction est connue. Toutes les biomasses ont été préalablement séchées en étuve à 105 °C afin d'éliminer l'influence de l'humidité reprise pendant le stockage. Deux mesures de broyabilité sont ensuite réalisées pour chaque biomasse et les résultats présentés sont la moyenne des deux valeurs obtenues. Le broyat produit lors de ces deux essais est conservé pour être analysé. Les essais ont été réalisés avec une grille de broyage à perforations de 0,5 mm. Seule une biomasse torréfiée a également été broyée avec une grille à perforations de 1 mm. Cet essai sera clairement différencié des autres.

Les résultats des mesures sont présentés **Figure 110**.

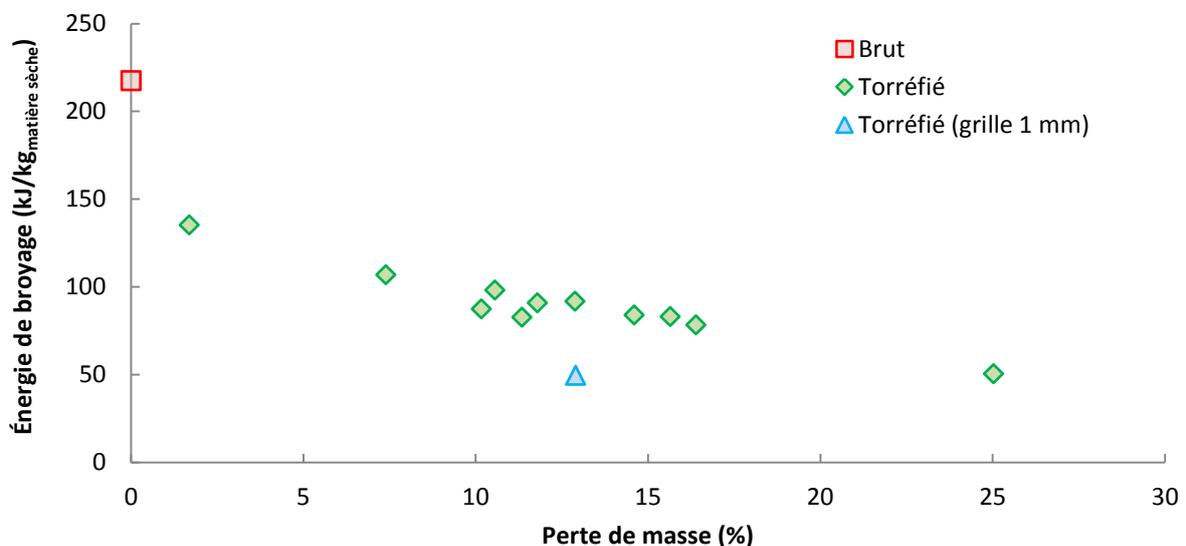


Figure 110 : Évolution de l'énergie nécessaire au broyage de la biomasse torréfiée en fonction de la perte de masse lors de la torréfaction.

L'énergie nécessaire au broyage diminue fortement dès les faibles pertes de masse. En effet, elle est de 218 kJ/kg_{matière sèche} pour les plaquettes brutes et chute à 135 kJ/kg_{matière sèche} pour les plaquettes ayant subi une perte de masse de 1,7 %. Ceci représente une diminution de 38 % de l'énergie de broyage. Le gain en broyabilité lorsque la perte de masse augmente est ensuite plus restreint et évolue linéairement. L'énergie nécessaire au broyage d'une

biomasse torréfiée avec une perte de masse de 25 % est tout de même divisée par 4 par rapport à la biomasse brute. Il faut également noter que l'utilisation d'une grille avec des perforations 2 fois plus larges permet de diviser par 2 l'énergie de broyage. Ceci démontre l'influence de la taille des particules en sortie du broyeur.

IV.3.2. Comparaison biomasse sèche / biomasse humide

A des fins de comparaison, il a été décidé de comparer ces énergies de broyage à celles de la biomasse humide. La biomasse brute a une humidité d'environ 12 % à la livraison et, pour obtenir d'autres points de comparaison, il a été décidé de ré-humidifier une partie de cette biomasse. La masse d'eau à ajouter a été calculée pour obtenir des humidités de 20, 30 et 40 %. L'eau a été répartie sur les plaquettes à l'aide d'un vaporisateur. Les plaquettes humides ont été placées dans des pots étanches pendant environ 4 semaines et agitées régulièrement. Ceci a permis au bois de se mettre à l'équilibre à l'humidité souhaitée. Il a été vérifié qu'à la fin de la période de stabilisation aucune eau sous forme liquide n'était présente dans les pots de conditionnement. L'humidité réelle des biomasses a été mesurée lors de leur utilisation pour les mesures d'énergie de broyage.

Les biomasses humides obtenues ne sont pas strictement identiques à des biomasses n'ayant jamais subi de séchage mais elles s'en approchent et devraient fournir des informations précieuses sur l'influence de l'humidité sur le broyage.

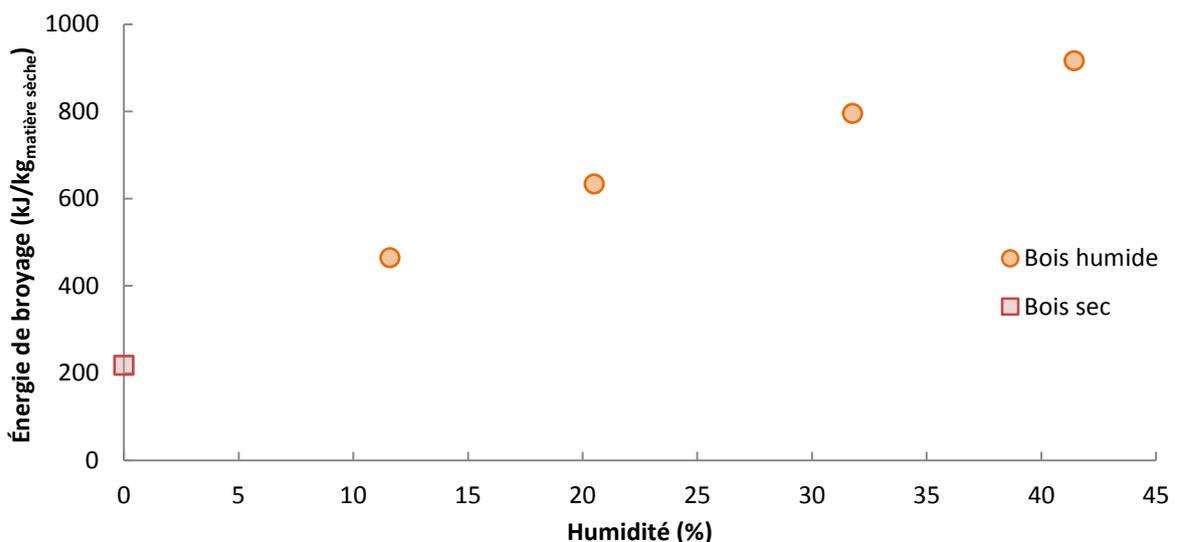


Figure 111 : Influence de l'humidité sur l'énergie de broyage de la biomasse brute.

La **Figure 111** représente l'évolution de l'énergie de broyage en fonction de l'humidité de la biomasse brute. Pour la comparaison, les énergies mesurées expérimentalement ont été ramenées au kilogramme de biomasse sèche. Il apparaît clairement qu'une augmentation de l'humidité accroît fortement l'énergie nécessaire au broyage. En effet, lorsque l'humidité augmente de 0 à 41 %, l'énergie de broyage est multipliée par un facteur 4,2.

Pour faciliter la comparaison entre le gain apporté par le séchage et celui dû à la torréfaction, la représentation de la **Figure 112** est proposée.

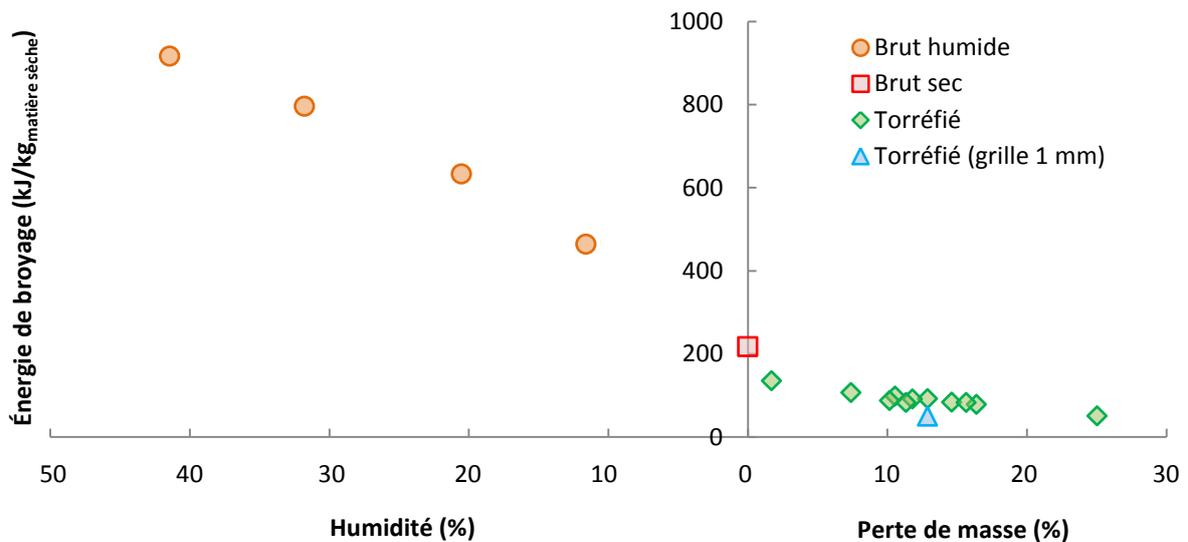


Figure 112 : Représentation simultanée de l'impact de l'humidité et de la perte de masse sur l'énergie de broyage.

Le séchage de la biomasse permet donc un gain bien supérieur à celui de la torréfaction en termes d'énergie de broyage. Il faut cependant noter que l'énergie mesurée avec ce dispositif expérimental n'est pas utilisée exclusivement pour la fragmentation des particules mais qu'une certaine quantité participe également à l'échauffement du broyeur. Dans le cas de l'étude du broyage de biomasse humide, une partie de l'énergie est probablement consommée pour un séchage partiel du bois. De plus, même si aucune obstruction de la grille de broyage n'a été clairement identifiée lors des essais, il semble probable que l'évacuation du broyat humide soit plus difficile que lorsque le broyat est sec. Ceci peut également provoquer une légère surconsommation énergétique. L'énergie mesurée n'est donc pas uniquement une énergie de fragmentation de la structure fibreuse.

IV.4. Prise en compte de la granulométrie du broyat

Les variations d'énergie de broyage mises en évidence sont classiquement accompagnées de variations de la granulométrie du broyat. La comparaison de la broyabilité de différentes biomasses doit donc prendre en compte l'évolution simultanée de ces deux grandeurs. Dans cette partie, l'équipement utilisé pour la mesure de la granulométrie du broyat sera présenté puis deux méthodes d'expression des résultats seront comparées.

IV.4.1. Mesure de la répartition granulométrique

Principe de la granulométrie laser

La mesure de la granulométrie du broyat a été réalisée à l'aide d'un granulomètre laser Mastersizer 3000 (Malvern Instruments Ltd, Malvern, Angleterre). Le principe est de faire passer un échantillon de particules dispersées (dans un milieu liquide ou gazeux) devant un rayon laser. Lorsque le rayon laser rencontre des particules, il est diffracté selon un angle dépendant de la taille des particules, et avec une intensité dépendant du nombre de particules. Plus les particules sont de petite taille, plus l'angle de diffraction est grand [198] et, plus il y a de particules, plus l'intensité reçue est importante. Des capteurs de précision permettent la mesure de l'intensité lumineuse en fonction de l'angle de diffraction.

La théorie de Mie est ensuite utilisée pour en déduire la taille des particules. Cette théorie permet la transformation du signal brut reçu par les capteurs en une distribution granulométrique de l'échantillon (en %vol) en assimilant les particules à des sphères de volume équivalent.

Le principal avantage de la théorie de Mie est qu'elle est applicable à une large gamme de tailles de particules, y compris à des particules dont la taille est inférieure à la longueur d'onde du laser. Son principal inconvénient est qu'elle assimile toutes les particules à des sphères. Pour des particules de formes irrégulières, il est donc impossible de savoir quelle dimension est mesurée. Cependant, un tel biais est inévitable, quelle que soit la méthode de mesure choisie, lorsque les particules sont de petite taille.

Protocole expérimental

Seuls quelques grammes sont nécessaires pour réaliser l'analyse au granulomètre laser. Afin d'obtenir des échantillons représentatifs de l'ensemble du broyat, un échantillonneur à rifles (voir **Figure 113a**) a été utilisé.

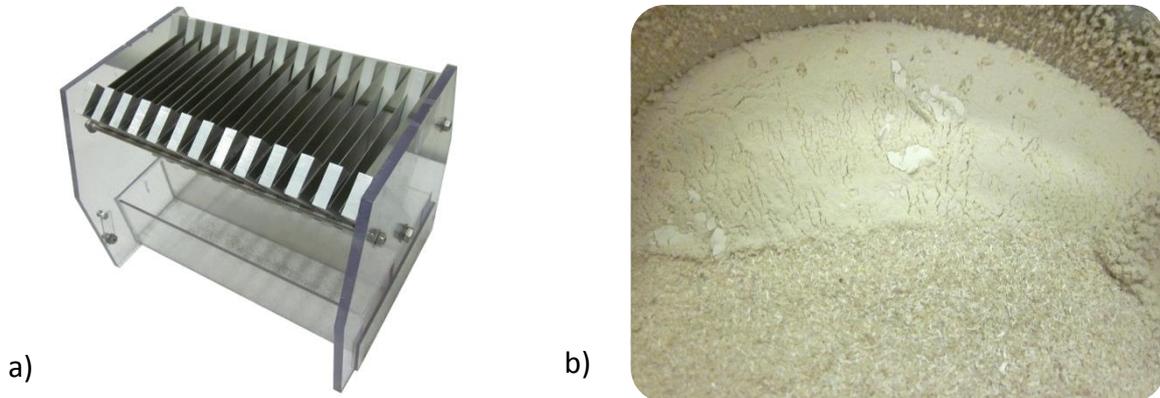


Figure 113 : a) Échantillonneur à rifles et b) dépôt de particules fines dans le bac de récupération du broyeur.

Pour chaque biomasse broyée, deux prélèvements ont ainsi été réalisés. Ils ont ensuite été séchés (pour éviter leur agglomération) et analysés par granulométrie laser en voie sèche : l'agent dispersant est donc l'air.

Il faut noter que pour les biomasses les plus humides (30 et 40 % d'humidité), des quantités importantes de particules fines (voir **Figure 113b**) ont été observées dans le pot de récupération du broyat. Leur forte volatilité n'a pas permis de les collecter intégralement. Néanmoins, ce biais ne devrait pas impacter sensiblement les résultats.

IV.4.2. Courbes granulométriques obtenues

Un exemple des résultats obtenus est proposé **Figure 114** pour la biomasse brute sèche, une biomasse brute humide et trois biomasses torréfiées.

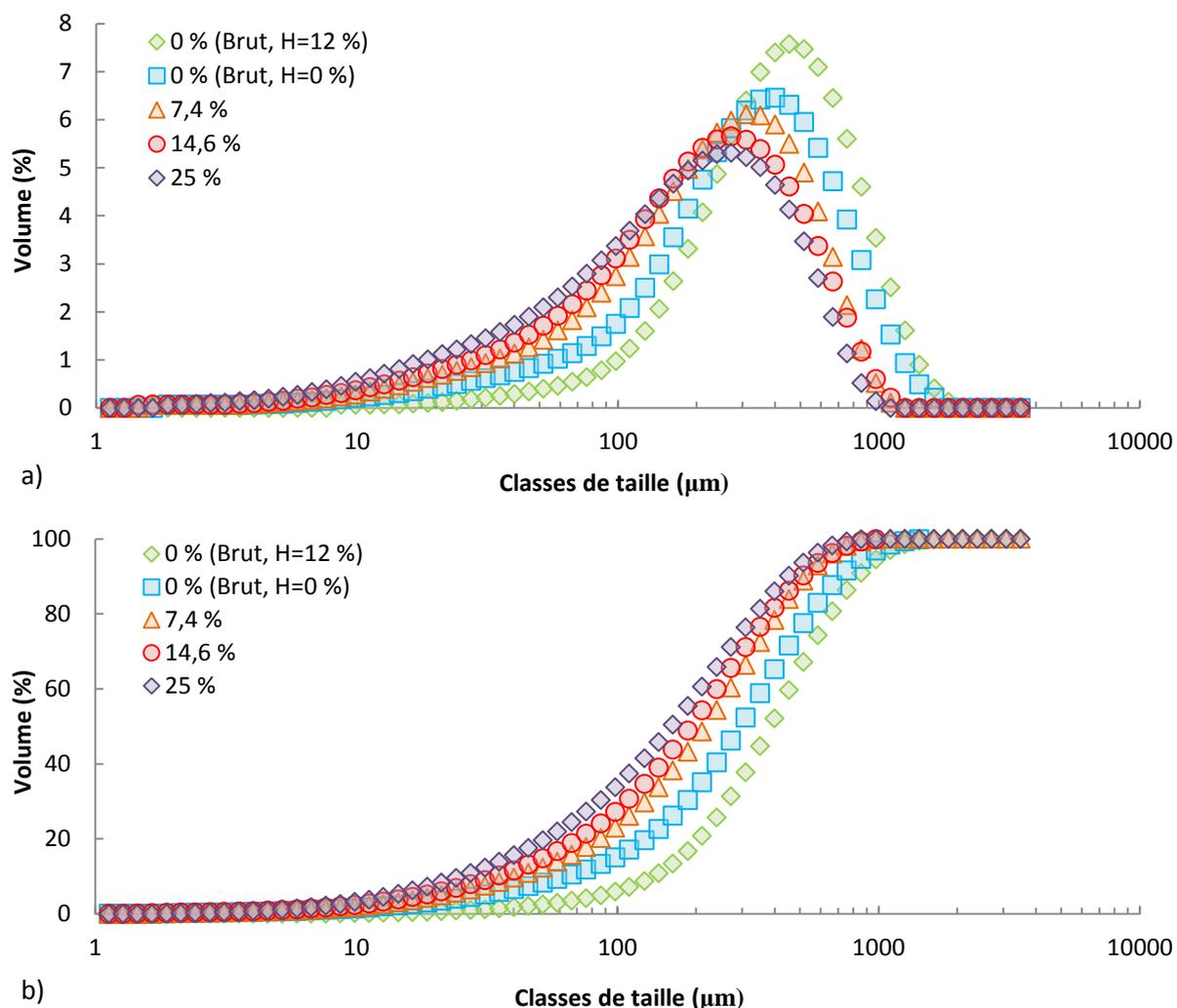


Figure 114 : Influence de la perte de masse lors de la torréfaction sur la granulométrie du broyat.
 a) Distribution granulométrique et b) distribution granulométrique cumulée.

La biomasse sèche a une distribution granulométrique décalée vers les petites tailles par rapport à la biomasse humide. Il en est de même lorsque la perte de masse augmente : plus la perte de masse est élevée, plus les particules sont fines. Ce décalage vers les particules fines est accompagné d'un étalement des courbes granulométriques.

A partir des courbes cumulées présentées **Figure 114b** peuvent être déduites plusieurs données chiffrées permettant de rendre compte de la taille des particules. C'est le cas notamment du diamètre médian d_{50} qui correspond au diamètre en dessous duquel sont situées 50 %vol des particules. A titre d'exemple, le d_{50} vaut 250, 219 et 183 μm respectivement pour les biomasses torréfiées ayant des pertes de masse de 7,4, 14,6 et 25,0 %.

IV.4.3. Prise en compte de la granulométrie dans l'expression de l'énergie de broyage

Expression de la surface créée

L'objectif du broyage est d'augmenter l'accessibilité de la matière aux gaz du procédé de conversion (O_2 , CO_2 , H_2O) et de faciliter les transferts au sein des particules. Ceci se traduit par une augmentation de la surface externe des particules. La méthode présentée ici se propose de rapporter l'énergie consommée par le broyeur à la surface externe de particules créée lors de la fragmentation. Cette surface est définie **Équation 109**.

$$S_{\text{créée}} = S_{\text{tot, broyat}} - S_{\text{tot, plaquettes}} \quad \text{Équation 109}$$

Où $S_{\text{tot, plaquettes}}$ et $S_{\text{tot, broyat}}$ sont les surfaces des particules avant et après broyage. Ces surfaces doivent être estimées.

La distribution granulométrique étant connue pour le **broyat**, la méthode suivante est proposée : en assimilant toujours les particules à des sphères (hypothèse entachée d'erreur mais cohérente avec le mode d'établissement de la distribution granulométrique), il est possible de calculer le nombre de particules de chaque diamètre équivalent composant un échantillon de volume V donné. La surface de ces sphères est calculée et utilisée pour déterminer la surface totale S des particules composant le volume V . Il ne reste alors qu'à utiliser la masse volumique des particules pour pouvoir calculer une surface totale $S_{\text{tot, broyat}}$ des particules par unité de masse (en $m^2/kg_{\text{matière sèche}}$). En pratique, l'**Équation 110** est utilisée.

$$S_{\text{tot, broyat}} = \frac{\sum_i x_i S_i / V_i}{\rho_{\text{part}}} \quad \text{Équation 110}$$

Où x_i est la fraction volumique de particules de diamètre d_i . S_i et V_i sont respectivement la surface et le volume de ces particules calculés suivant l'**Équation 111**.

$$\begin{cases} S_i = 4\pi \left(d_i/2\right)^2 \\ V_i = 4/3 \pi \left(d_i/2\right)^3 \end{cases} \quad \text{Équation 111}$$

Pour déterminer la surface des **particules brutes avant broyage** $S_{\text{tot, plaquettes}}$, il a été décidé d'utiliser la même méthode. Pour cela, il était nécessaire d'établir la distribution

granulométrique des plaquettes. Celles-ci étant trop grandes pour être analysables par granulométrie laser, les dimensions présentées sur la **Figure 38** du **Chapitre 2** ont été utilisées. Afin de déterminer une unique dimension pour chaque particule, comme c'est le cas du granulomètre laser, la moyenne des trois dimensions mesurées a été utilisée, comme proposé par Robbe et Roger [199]. La taille des particules a également été mesurée sur 300 particules de bois torréfié ayant subi une perte de masse de 25,0 %. Les dimensions obtenues sont légèrement plus petites que celles du bois brut et ont été utilisées pour calculer la surface des **particules torréfiées avant broyage**.

Les masses volumiques du bois brut et du bois torréfié (ML=25,0 %) secs ont également été mesurées comme présenté lors du **Chapitre 2** (sur 30 particules poncées, dépoussiérées, pesées et mesurées). Les résultats sont identiques pour ces deux matériaux : $685 \pm 39 \text{ kg/m}^3$ et $669 \pm 58 \text{ kg/m}^3$ pour le bois brut et le bois torréfié respectivement.

Toutes les données étant désormais disponibles, la surface créée ($S_{tot, broyat} - S_{tot, plaquettes}$) peut être calculée et les résultats sont présentés **Figure 115**.

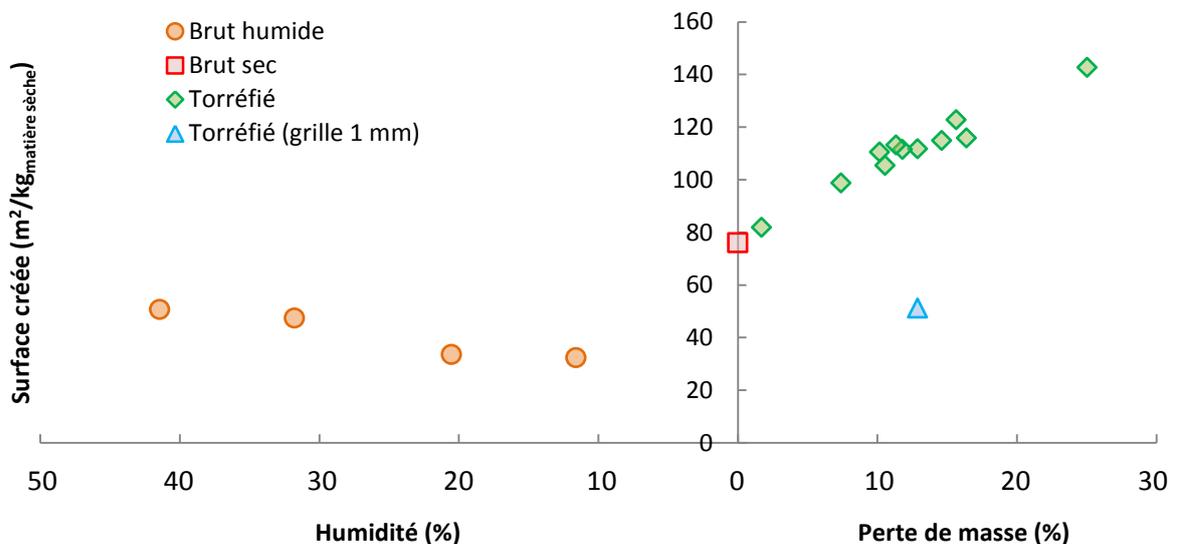


Figure 115 : Influence de l'humidité et de la perte de masse lors de la torréfaction sur la surface créée pendant l'étape de broyage.

L'évolution de la surface créée avec la perte de masse est cohérente : plus la biomasse est torréfiée, plus les particules créées sont petites, ce qui s'explique par la fragilisation de la structure. Cela mène donc à une importante création de surface. Il apparaît également que la surface créée est corrélée quasi-linéairement avec la perte de masse. Par contre, le comportement observé en fonction de l'humidité de la biomasse brute est plus inattendu.

En effet, il semble que plus l'humidité est élevée, plus la surface créée est importante. Deux hypothèses peuvent expliquer ce constat :

- Comme expliqué précédemment, les biomasses les plus humides ont mené à une production importante de particules fines lors du broyage, ce qui peut faire augmenter la surface totale des particules du broyat.
- Lorsque l'humidité est élevée, un fort retrait intervient pendant le séchage qui précède l'analyse granulométrique. Ainsi, des particules de même taille passant la grille de broyage à des humidités différentes auront des tailles variées lors de l'analyse granulométrique.

Ces surfaces ont permis de calculer l'énergie de broyage en $\text{kJ/m}^2_{\text{créé}}$. Cette grandeur classique est basée sur le concept d'énergie de rupture du matériau. Les résultats sont présentés **Figure 116**.

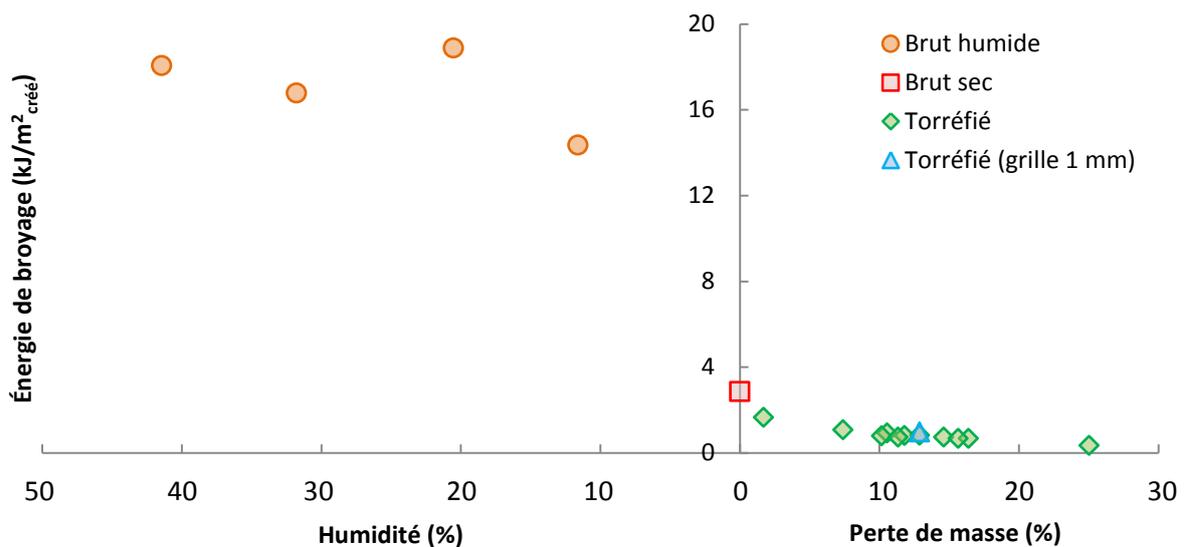


Figure 116 : Évolution de l'énergie de broyage avec l'humidité de la biomasse brute et la perte de masse de la biomasse torréfiée.

Ces résultats semblent montrer qu'au-delà d'une valeur de 20 %, l'humidité a peu d'influence sur l'énergie de broyage. Par contre, l'énergie de broyage est 5 fois plus élevée pour les plaquettes ayant une humidité de 12 % que pour les plaquettes sèches. De même, la méthode proposée ici montre que l'énergie de broyage est divisée par 8 entre la biomasse brute sèche et la biomasse torréfiée (avec $ML=25,0\%$) alors que le rapport entre ces deux valeurs n'était que de 4 lorsque la granulométrie n'était pas prise en compte. Enfin, la biomasse torréfiée et broyée avec une grille de 1 mm présente une énergie de broyage

similaire à la même biomasse broyée avec la grille 0,5 mm (0,97 et 0,82 kJ/m²_{créé} respectivement). Ceci tend à prouver que les résultats exprimés ici sont bien des propriétés intrinsèques aux biomasses.

Utilisation de la théorie de Von Rittinger

Pour évaluer la méthode proposée précédemment, la théorie de Von Rittinger rapportée par Temmerman *et al.* [200] a été également utilisée. Cette théorie, élaborée en 1867, part du constat que l'énergie de broyage est proportionnelle à la surface générée lors de la fragmentation. Ainsi, l'énergie E_{1-2} nécessaire pour fragmenter des particules de diamètre x_1 en particules de diamètre x_2 serait définie par l'Équation 112.

$$E_{1-2} = C_{VR} \left(\frac{1}{x_2} - \frac{1}{x_1} \right) \quad \text{Équation 112}$$

Où C_{VR} est une constante caractéristique du matériau. Pour appliquer cette expression à des particules de tailles diverses, il est nécessaire de définir x_1 et x_2 . Temmerman *et al.*, qui étudient le broyage de plaquettes de bois et de granulés dans un broyeur à marteaux, proposent d'utiliser le diamètre médian d_{50} défini plus haut. Ici, l'énergie de broyage et les tailles de particules sont connues, il est donc possible de déterminer la constante C_{VR} pour chaque biomasse. La Figure 117 rassemble les résultats obtenus.

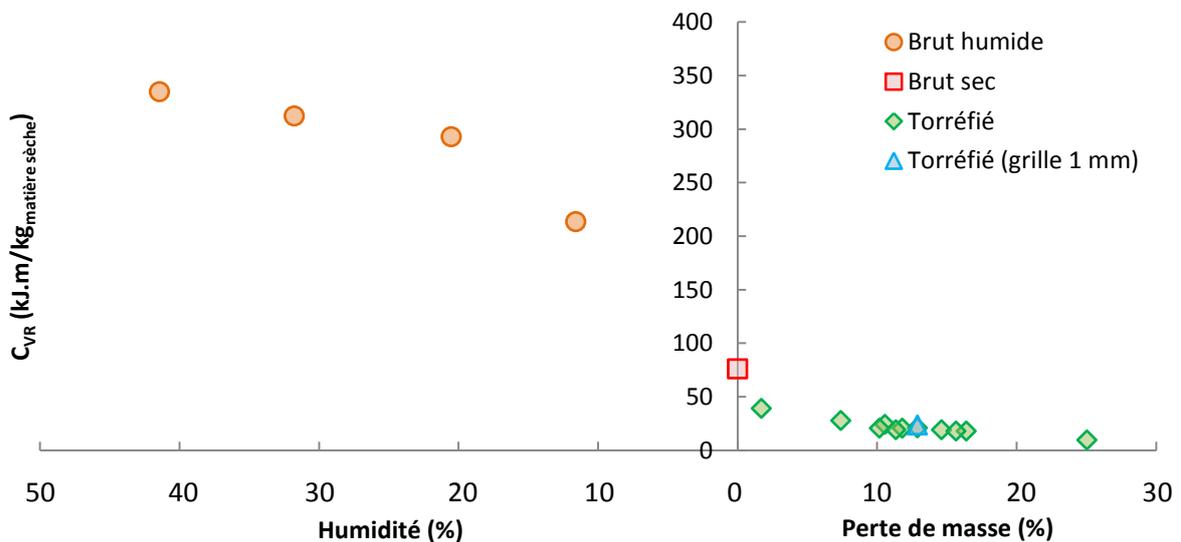


Figure 117 : Évolution de la constante de Von Rittinger avec l'humidité des plaquettes brutes et la perte de masse des plaquettes torréfiées.

La réponse de la constante de Von Rittinger à l'humidité de la biomasse est moins bruitée que l'allure observée précédemment. Cependant, le comportement global reste le même.

Ceci est en particulier vrai pour l'allure de la courbe d'évolution de la constante avec la perte de masse lors de la torréfaction. Le rapport des constantes à 0 et 25,0 % de perte de masse est aussi égal à 8. Il semble donc que ces deux méthodes mènent à des résultats similaires. Seules les expressions sont différentes : la méthode proposée dans ces travaux fait appel explicitement à une différence de surfaces entre les plaquettes avant et après broyage alors que dans l'expression de Von Rittinger, cette différence est ramenée à une différence de diamètres de particules. Ainsi, la méthode de Von Rittinger ne prend pas en compte l'étendue de la dispersion granulométrique.

V. Conclusions

Le nombre important d'échantillons qui ont pu être préparés, avec des degrés de torréfaction maîtrisés, a permis une étude fructueuse de l'évolution des différentes propriétés. Dans un premier temps, la composition de la biomasse torréfiée a été corrélée linéairement à la perte de masse et il a été montré que la torréfaction permet la production d'un matériau dont la composition se rapproche de celle du charbon. En particulier, la diminution de la teneur en matières volatiles et l'augmentation de la teneur en carbone fixe conduisent à une augmentation du pouvoir calorifique de la biomasse. Cette densification énergétique est donc un atout de poids pour la valorisation de la biomasse dans les procédés de production d'énergie comme la cocombustion. L'étude de la composition des fibres a mis en évidence que les hémicelluloses sont bien les polymères les plus dégradés lors de la torréfaction. D'autres composants de la matrice ligno-cellulosique subissent également des altérations qui modifient leurs propriétés. C'est notamment le cas de la cellulose dont une partie est rendue acido-insoluble lors des traitements aux plus hautes températures.

Des essais de sorption dynamique de vapeur d'eau ont également été menés. Ils ont montré que le bois présente une diminution de son caractère hygroscopique dès les faibles pertes de masse. En effet, trois biomasses torréfiées ayant des pertes de masse de 1,7 à 25,0 % ont montré des comportements identiques. A une humidité relative donnée, l'humidité d'équilibre de la biomasse torréfiée est deux fois plus faible que celle de la biomasse brute. La torréfaction permet également de diminuer l'amplitude du phénomène d'hystérésis. Enfin, des modèles ont été appliqués avec succès pour représenter les courbes de sorption des plaquettes brutes et torréfiées. Le modèle GAB, particulièrement représentatif des résultats expérimentaux, confirme que la diminution de l'affinité avec l'eau est due à un plus

faible nombre de sites actifs disponibles. Ceci conduit à la diminution de l'humidité d'équilibre à la saturation de la monocouche.

Pour finir, une installation permettant la mesure de l'énergie de broyage a été mise en place. Deux protocoles expérimentaux ont été évalués et le protocole le plus performant a été utilisé pour l'évaluation de la broyabilité des biomasses torréfiées et de la biomasse brute conditionnée à différentes humidités. L'étude granulométrique des broyats a fourni les données nécessaires à l'expression des résultats en prenant simultanément en compte l'énergie consommée par un broyeur et la taille des particules produites. Dans un premier temps, l'énergie consommée a été ramenée à la surface créée lors de la fragmentation puis ces résultats ont été comparés à une constante utilisée dans une corrélation issue de la littérature. Les deux expressions mènent à l'obtention de résultats similaires. En conclusion, la torréfaction diminue fortement l'énergie nécessaire au broyage des plaquettes de bois. En effet, le broyage de la biomasse brute consomme 8 fois plus d'énergie que le broyage d'une biomasse torréfiée ayant subi une perte de masse de 25,0 %. L'humidité est également un facteur extrêmement influant : le broyage d'une biomasse à 12 % d'humidité est 5 fois plus consommateur d'énergie que celui d'une biomasse sèche (0 % d'humidité).

L'énergie de broyage mesurée pour les plaquettes de bois à 12 % d'humidité est de $460 \text{ kJ/kg}_{\text{matière sèche}}$. Par comparaison avec l'énergie dépensée pour la torréfaction, variant entre 500 et $650 \text{ kJ/kg}_{\text{matière sèche}}$ suivant la perte de masse, la nécessité de l'étape de torréfaction n'apparaît pas évidente. Cependant, la rentabilité réelle de la torréfaction ne pourrait être évaluée qu'après estimation des gains dus à la densification énergétique et à la diminution de l'hygroscopicité. En effet, ces modifications ont un impact important sur les coûts de transport, les coûts de manutention et les rendements des procédés de conversion qu'il convient de prendre en compte pour analyser la filière de valorisation dans son ensemble.

Conclusion générale et perspectives

I. Conclusions

Ce travail avait pour objectif d'améliorer les connaissances sur la torréfaction de la biomasse à l'échelle du procédé. En effet, l'état de l'art présenté au Chapitre 1 a montré que de nombreuses études ont été menées en laboratoire sur des biomasses variées. Ces études ont décrit dans le détail les principales réactions de torréfaction et leurs conséquences sur le matériau obtenu. Il en est également ressorti que les paramètres ayant le plus d'influence sur la dégradation du matériau sont la durée et la température de traitement. Cependant, peu de travaux se sont attachés à transposer ces conclusions à l'échelle de réacteurs continus. Les informations sur la conduite des procédés de torréfaction sont cependant indispensables à l'heure où de nombreuses compagnies investissent pour le passage à l'échelle industrielle.

L'étude expérimentale, menée sur un four tournant pilote, a nécessité l'adaptation de l'installation. Le pilote a dû être modifié pour permettre l'alimentation en plaquettes de bois, mais également pour fonctionner en atmosphère inerte. Le pilote a ensuite été utilisé pour mener une campagne expérimentale de torréfaction. Les essais se sont avérés répétables et ont permis la production de plaquettes torréfiées dans différentes conditions. Ces essais ont naturellement montré que lorsque la température et/ou le temps de séjour augmentent, le rendement massique diminue. De façon moins triviale, les essais montrent qu'il en est de même lorsque le taux de remplissage augmente. Pour les températures et les taux de remplissage élevés, la température à l'intérieur du lit de plaquettes excède la température du four. Ceci met en évidence l'existence de réactions exothermiques aux températures de la torréfaction. De plus, dans les conditions où l'exothermicité a été détectée, il a été montré qu'une entrée d'air, aussi courte soit-elle, provoque une montée en température irréversible du solide. Cette information est importante et doit être prise en compte afin de limiter les risques d'emballement thermique.

Un modèle à 1 dimension, en régime stationnaire, a été développé pour prédire l'évolution de la température du lit de plaquettes ainsi que leur perte de masse le long du four. Ce modèle est composé de différents sous-modèles établis et validés séparément pour représenter les différents phénomènes intervenant dans le four tournant. Dans un premier temps, le transport des plaquettes a fait l'objet d'une étude de distribution de temps de séjour qui a montré que l'écoulement est de type piston à faible dispersion axiale. Cette étude a également démontré que l'écoulement des plaquettes torréfiées est identique à

celui des plaquettes brutes. Des phénomènes de ségrégation ont été mis en évidence pour les forts taux de remplissage. Un modèle issu de la littérature a finalement été adapté pour représenter l'évolution de la hauteur de lit le long du cylindre. Les transferts thermiques ont été modélisés en considérant les températures des plaquettes et de la phase gaz homogènes dans une section transversale du four. Le modèle prend en compte les transferts par convection et rayonnement entre le solide, le gaz et la paroi du cylindre. Des essais de chauffe de bois sec ont également permis la sélection d'un coefficient de transfert de chaleur par contact paroi/solide. L'approche choisie pour modéliser le séchage des plaquettes est empirique. Elle est basée sur le concept de la caractéristique de séchage qui a été identifiée par mesure du profil de teneur en eau du bois le long du four. Différents essais ont été nécessaires pour relier la vitesse de séchage aux paramètres opératoires. Des phénomènes de condensation, non pris en compte dans le modèle, ont été mis en évidence à l'entrée du four lorsque le taux de remplissage est élevé ou lorsque le débit de gaz de balayage est faible. Enfin, le modèle cinétique choisi pour estimer la perte de masse des plaquettes est un modèle de pseudo-composants tiré de la littérature. Les constantes cinétiques associées aux différentes réactions ont été déterminées par ajustement des résultats du modèle aux courbes de perte de masse obtenues lors d'une étude thermogravimétrique.

Après assemblage des différents sous-modèles, les chaleurs de réactions ont fait l'objet d'une tentative d'ajustement pour faire concorder les résultats du modèle global aux résultats expérimentaux. Cet ajustement n'a pas été concluant et les chaleurs de réactions ont finalement été négligées. En effet, bien qu'elles aient été détectées, les exothermicités sont probablement trop faibles pour pouvoir être quantifiées précisément avec le modèle.

Les résultats du modèle global sont les profils de température du lit de plaquettes, du gaz et de la paroi du cylindre, ainsi que les profils d'humidité et de perte de masse du bois. Les résultats ayant pu être comparés aux résultats expérimentaux sont la température du lit (en 3 points le long du four) et le rendement massique final. La concordance est bonne lorsque le débit d'alimentation en solide est faible. L'écart relatif entre les rendements expérimentaux et calculés est alors inférieur à 5 % et l'écart entre la température maximale mesurée et la température maximale prédite est inférieur à 12 °C. Dans le cas des essais à fort débit d'alimentation, la montée en température de la charge est largement sous-estimée, ce qui mène à une surestimation du rendement massique. La comparaison de la puissance délivrée à la charge mesurée lors des essais à celle calculée par le modèle montre

que la divergence observée provient d'une mauvaise estimation des transferts de chaleur. Le modèle a finalement fait l'objet d'une analyse de sensibilité et a été utilisé pour évaluer énergétiquement le procédé de torréfaction en four tournant. Il a notamment été montré que l'étape de séchage représente une part importante de l'énergie consommée malgré la faible humidité (inférieure à 12 %) de la biomasse utilisée. Cette étape n'est donc pas négligeable car d'une part elle influence la température atteinte par la charge, et donc le rendement massique, et d'autre part elle conditionne fortement le coût du traitement.

Pour finir, les plaquettes torréfiées à des degrés variables ont été analysées. Leur composition et leur densité énergétique ont ainsi pu être reliées directement à la perte de masse subie pendant la torréfaction. Une mesure dynamique des isothermes de sorption de plusieurs échantillons a également été réalisée. Cette étude a montré que la capacité d'adsorption du matériau est divisée par 2 dès les faibles pertes de masse (2,7 %), mais ne dépend pas de la sévérité de la torréfaction. Par ajustement de modèles de sorption sur les courbes expérimentales, il a été déterminé que la diminution de l'affinité du bois avec l'eau provient de la diminution de la teneur en eau à la saturation de la monocouche. Cette observation est considérée comme une conséquence du nombre restreint de groupements hydroxyles de la biomasse torréfiée. Enfin, une méthode de détermination de la broyabilité des plaquettes a été proposée. Cette méthode permet la prise en compte simultanée de l'énergie consommée pendant le broyage et de la granulométrie du broyat. Pour cela, l'énergie consommée par un broyeur a été ramenée à la surface de particules créée. Les résultats obtenus (en $\text{kJ/m}^2_{\text{créé}}$) sont caractéristiques du matériau : ils sont indépendants de la granulométrie en sortie de broyeur. Il a ainsi été montré que le broyage de la biomasse brute consomme 8 fois plus d'énergie que le broyage d'une biomasse torréfiée ayant subi une perte de masse de 25 %. Par ailleurs, il a également été montré que l'humidité influence fortement l'énergie de broyage. En effet, le broyage de plaquettes ayant une humidité de 12 % nécessite 5 fois plus d'énergie que le broyage des plaquettes sèches.

Les informations apportées par ces travaux concernent donc autant la torréfaction dans son ensemble, *via* la mise en évidence de réactions exothermiques et la caractérisation des bois torréfiés, que la conduite du procédé de torréfaction en four tournant. La mise en évidence des limites de cette étude a également permis d'identifier de nombreuses perspectives.

II. Perspectives

Le **modèle** développé ici nécessite des améliorations pour pouvoir être utilisé à des fins de dimensionnement :

- Une extrapolation du modèle, notamment à une installation de taille plus importante, nécessite d'améliorer la prise en compte du séchage. Celui-ci a en effet été modélisé empiriquement pour le four tournant pilote, dans des conditions particulières de débit de gaz, de température et de taux de remplissage. Par la suite, le modèle de séchage devra être basé sur un bilan de chaleur et de matière permettant d'estimer la cinétique de séchage dans une gamme plus large de paramètres opératoires. Travailler dans des conditions où les phénomènes de condensation sont absents permettrait également de limiter la complexité des phénomènes intervenant dans le four. Pour finir, l'instrumentation du pilote avec des hygromètres semble indispensable pour valider le modèle de séchage.

- Les limites du modèle thermique ont été montrées, notamment lorsque le débit d'alimentation est élevé. Les méthodes d'amélioration ont déjà été évoquées et consistent principalement en l'utilisation d'un solide inerte ayant des tailles de particules similaires aux plaquettes de bois. Ceci permettrait d'identifier le coefficient de transfert paroi/solide à des températures représentatives de la torréfaction. Cependant, une instrumentation plus importante du pilote semble indispensable, notamment afin de mesurer plus précisément les profils de température des différentes phases.

- Les chaleurs de réaction n'ont pu être identifiées lors de cette étude. De telles informations pourraient pourtant s'avérer cruciales lors du passage à l'échelle industrielle. Leur identification pourrait être permise par le passage à un pilote de plus grande dimension. Les phénomènes liés aux dégagements de chaleur seraient ainsi décuplés et donc plus aisément quantifiables. Des mesures de gradients de température dans le lit apporteraient également des informations sur les causes de l'apparition des réactions exothermiques. Enfin, la réalisation d'essais de torréfaction de bois sec serait un moyen d'acquérir des données tout en limitant les incertitudes liées à la phase de séchage.

- L'influence du débit de gaz de balayage n'ayant pas été étudiée ici, des essais à plus fort débit seraient souhaitables. Ils permettraient, entre autre, de savoir si le contact des matières volatiles avec le bois torréfié est à l'origine des réactions exothermiques.

- Un aspect n'ayant pas été abordé dans cette étude est la composition des matières volatiles. L'instrumentation du pilote avec des analyseurs de gaz permettrait de relier la composition des gaz produits aux paramètres de fonctionnement. Ces gaz pourraient alors être pris en compte dans le bilan énergétique, ce qui faciliterait l'identification d'un régime de fonctionnement peu coûteux énergétiquement voire autotherme.

- A terme, les lois d'évolution des propriétés du bois torréfié pourraient être intégrées au modèle. Couplé à un optimiseur, le modèle ainsi obtenu permettrait de dimensionner des installations de torréfaction en fonction du débit de biomasse torréfiée souhaité ainsi que des propriétés attendues pour le produit.

La **caractérisation du solide** a été entreprise mais il est encore possible d'affiner les résultats. C'est en particulier le cas des mesures de broyabilité pour lesquelles plusieurs voies d'amélioration ont été dégagées :

- Dans un premier temps, la prise en compte de la forme des particules éviterait de faire appel à l'hypothèse des particules sphériques. Le calcul de la surface créée lors du broyage serait ainsi plus précis. Pour cela, il est possible d'utiliser des équipements de caractérisation des poudres mesurant simultanément la taille et la forme des particules.

- Les mesures ayant été réalisées uniquement sur un broyeur à couteaux, il faudrait mener des tests similaires sur un broyeur à marteaux, plus représentatif de ceux utilisés dans l'industrie.

Références bibliographiques

- [1] Commissariat Général au Développement Durable. Bilan énergétique de la France pour 2012. 2013 p. 1–120.
- [2] Ministère de l'Écologie du Développement durable et de l'Énergie. Panorama énergies-climat. 2013 p. 1–160.
- [3] FCBA. Memento. 2013 p. 1–43.
- [4] ADEME. Climat, air et énergie - Edition 2013. 2013 p. 1–136.
- [5] Caillat S, Perdrix E, Tabet K, Taupin B. Cocombustion de charbon et de biomasse. Cas des chaudières industrielles. *Techniques de l'ingénieur*. 2010, (BE 8 752): 1–16.
- [6] Rogaume Y. Production de chaleur à partir du bois - Installations industrielles. *Techniques de l'ingénieur* [Internet]. 2005, (BE 8 748): 1–13.
- [7] Deglise X, Donnot A. Bois énergie. *Techniques de l'ingénieur*. 2004, (BE 8 535): 1–21.
- [8] Broust F, Girard P, Van De Steene L. Biocarburants de seconde génération. *Techniques de l'ingénieur*. 2008, (RE 110): 1–13.
- [9] Batidzirai B, Mignot APR, Schakel WB, Junginger HM, Faaij APC. Biomass torrefaction technology: Techno-economic status and future prospects. *Energy* [Internet]. Elsevier Ltd, 2013 Dec, 62: 196–214.
- [10] Zwart R, Boerrigter H. The impact of biomass pretreatment on the feasibility of overseas biomass conversion to Fischer-Tropsch products. *Energy & Fuels* [Internet]. 2006, (December 2004): 2192–7.
- [11] Stelte W, Holm JK, Sanadi AR, Barsberg S, Ahrenfeldt J, Henriksen UB. Fuel pellets from biomass: The importance of the pelletizing pressure and its dependency on the processing conditions. *Fuel* [Internet]. Elsevier Ltd, 2011 Nov, 90(11): 3285–90.
- [12] Mediavilla I, Esteban LS, Fernández MJ. Optimisation of pelletisation conditions for poplar energy crop. *Fuel Processing Technology* [Internet]. Elsevier B.V., 2012 Dec, 104: 7–15.
- [13] Bergman PC., Boersma A., Zwart RWR, Kiel JHA. Torrefaction for biomass co-firing in existing coal-fired power stations. Energy research Center of Netherlands. 2005.
- [14] Svoboda K, Pohořelý M, Hartman M, Martinec J. Pretreatment and feeding of biomass for pressurized entrained flow gasification. *Fuel Processing Technology*. Elsevier B.V., 2009 May, 90(5): 629–35.

- [15] Uslu A, Faaij APC, Bergman PC. Pre-treatment technologies, and their effect on international bioenergy supply chain logistics. Techno-economic evaluation of torrefaction, fast pyrolysis and pelletisation. *Energy*. 2008 Aug, 33(8): 1206–23.
- [16] Pérez-Fortes M, Laínez-Aguirre JM, Bojarski AD, Puigjaner L. Optimization of pre-treatment selection for the use of woody waste in co-combustion plants. *Chemical Engineering Research and Design* [Internet]. Institution of Chemical Engineers, 2014 Jan, : 1–24.
- [17] Bergman P. Combined torrefaction and pelletization - The TOP process. *Analysis*. 2005.
- [18] Nocquet T. Torréfaction du bois et de ses constituants : expériences et modélisation des rendements en matières volatiles. Institut National Polytechnique de Toulouse, 2012. p. 1–205.
- [19] Militz H. Heat treatment technologies in Europe : Scientific background and technological state-of-art. Conference on “Enhancing the durability of lumber and engineered wood products.” Göttingen (Germany), 2002. p. 1–19.
- [20] Repellin V. Optimisation des paramètres durée et température d’un traitement thermique du bois. Modifications des propriétés d’usage du bois en relation avec les modifications physico- chimiques et ultrastructurales occasionnées par le traitement thermique. Université Jean Monnet de Saint-Etienne, 2006. p. 1–228.
- [21] Chaouch M. Effet de l’intensité du traitement sur la composition élémentaire et la durabilité du bois traité thermiquement - développement d’un marqueur de prédiction de la résistance aux champignons basidiomycètes. Université Henri Poincaré, 2011. p. 1–219.
- [22] Bergman PCA, Boersma AR, Kiel JHA, Prins MJ, Ptasinski KJ, Janssen FJJG. Torrefaction for entrained-flow gasification of biomass [Internet]. Acknowledgement/Preface. 2004 p. 78.
- [23] Triboulot P, Trouy-Triboulot M-C. Matériau bois. Structure et caractéristiques. *Techniques de l’ingénieur*. 2001, (C 925): 1–26.
- [24] Tumuluru JS, Sokhansanj S, Hess JR, Wright CT, Boardman RD. A review on biomass torrefaction process and product properties for energy applications. *Industrial biotechnology*. 2011, (October): 384–401.
- [25] Rousset P. Choix et validation expérimentale d’un modèle de pyrolyse pour le bois traité par haute température : de la micro-particule au bois massif. *Techniques*. Ecole Nationale du Génie Rural des Eaux et Forêts, 2004. p. 1–182.
- [26] Nocquet T, Dupont C, Commandre J, Gâteau M, Thiery S, Salvador S. Volatile species release during torrefaction of wood and its macromolecular constituents : Part 1 - Experimental study. *Energy*. Elsevier Ltd, 2014, 72: 180–7.

- [27] Chen W-H, Kuo P-C. Isothermal torrefaction kinetics of hemicellulose, cellulose, lignin and xylan using thermogravimetric analysis. *Energy*. Elsevier Ltd, 2011 Nov, 36(11): 6451–60.
- [28] Sarvaramini A, Assima GP, Larachi F. Dry torrefaction of biomass – Torrefied products and torrefaction kinetics using the distributed activation energy model. *Chemical Engineering Journal* [Internet]. Elsevier B.V., 2013 Aug, 229: 498–507.
- [29] Akgül M, Gümüşkaya E, Korkut S. Crystalline structure of heat-treated Scots pine [*Pinus sylvestris* L.] and Uludağ fir [*Abies nordmanniana* (Stev.) subsp. *bornmuelleriana* (Mattf.)] wood. *Wood Science and Technology* [Internet]. 2006 Oct 24, 41(3): 281–9.
- [30] Wikberg H, Liisa Maunu S. Characterisation of thermally modified hard- and softwoods by C CPMAS NMR. *Carbohydrate Polymers* [Internet]. 2004 Dec 7, 58(4): 461–6.
- [31] Melkior T, Jacob S, Gerbaud G, Hediger S, Le Pape L, Bonnefois L, Bardet M. NMR analysis of the transformation of wood constituents by torrefaction. *Fuel* [Internet]. Elsevier Ltd, 2011 Jul, 92(1): 271–80.
- [32] Singh T, Singh AP, Hussain I, Hall P. Chemical characterisation and durability assessment of torrefied radiata pine (*Pinus radiata*) wood chips. *International Biodeterioration & Biodegradation* [Internet]. Elsevier Ltd, 2013 Nov, 85: 347–53.
- [33] Hill SJ, Grigsby WJ, Hall PW. Chemical and cellulose crystallite changes in *Pinus radiata* during torrefaction. *Biomass and Bioenergy* [Internet]. Elsevier Ltd, 2013 Sep, 56: 92–8.
- [34] Ralph J, Lundquist K, Brunow G, Lu F, Kim H, Schatz PF, Marita JM, Hatfield RD, Ralph S a., Christensen JH, Boerjan W. Lignins : Natural polymers from oxidative coupling of 4-hydroxyphenyl- propanoids. *Phytochemistry Reviews*. 2004, 3(1/2): 29–60.
- [35] Windeisen E, Strobel C, Wegener G. Chemical changes during the production of thermo-treated beech wood. *Wood Science and Technology* [Internet]. 2007 Jun 13, 41(6): 523–36.
- [36] Rousset P, Lapierre C, Pollet B, Quirino W, Perre P. Effect of severe thermal treatment on spruce and beech wood lignins. *Annals of Forest Science* [Internet]. 2009 Jan, 66(1): 1–7.
- [37] Weiland JJ, Guyonnet R. Study of chemical modifications and fungi degradation of thermally modified wood using DRIFT spectroscopy. *Holz als Roh- und Werkstoff*. 2003, 61: 216–20.
- [38] Chen W-H, Lu K-M, Tsai C-M. An experimental analysis on property and structure variations of agricultural wastes undergoing torrefaction. *Applied Energy*. 2012 Dec, 100: 318–25.

- [39] Prins M, Ptasiński K, Janssen F. Torrefaction of wood Part 1. Weight loss kinetics. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* [Internet]. 2006 Aug, 77(1): 28–34.
- [40] Prins M, Ptasiński K, Janssen F. Torrefaction of wood Part 2. Analysis of products. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* [Internet]. 2006 Aug, 77(1): 35–40.
- [41] Wannapeera J, Worasuwanarak N. Upgrading of woody biomass by torrefaction under pressure. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*. 2012, 96: 173–80.
- [42] Casajus C, Marias F, Legros-Adrian J-M, Lefloch A-L. Torréfaction de canne de maïs dans une macro-balance : Influence des conditions opératoires. *Récents progrès en Génie des Procédés*. 2011, 101: 1–6.
- [43] Bates RB, Ghoniem AF. Biomass torrefaction: Modeling of volatile and solid product evolution kinetics. *Bioresource technology*. Elsevier Ltd, 2012 Nov, 124: 460–9.
- [44] Chen W-H, Hsu H-C, Lu K-M, Lee W-J, Lin T-C. Thermal pretreatment of wood (Lauan) block by torrefaction and its influence on the properties of the biomass. *Energy* [Internet]. Elsevier Ltd, 2011 May, 36(5): 3012–21.
- [45] Deng J, Wang G, Kuang J, Zhang Y, Luo Y. Pretreatment of agricultural residues for co-gasification via torrefaction. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* [Internet]. 2009 Nov, 86(2): 331–7.
- [46] Saleh SB, Hansen BB, Jensen PA, Dam-johansen K. Influence of biomass chemical properties on torrefaction characteristics. *Energy & Fuels* [Internet]. 2013, 27: 7541–8.
- [47] Saleh SB, Hansen BB, Jensen PA, Dam-johansen K. Efficient fuel pretreatment : simultaneous torrefaction and grinding of biomass. *Energy & Fuels*. 2013, 27: 7531–40.
- [48] Saddawi A, Jones J, Williams A, Coeur C Le. Commodity fuels from biomass through pretreatment and torrefaction: effects of mineral content on torrefied fuel characteristics and quality. *Energy & Fuels* [Internet]. 2012, 26: 6466–74.
- [49] White JE, Catallo WJ, Legendre BL. Biomass pyrolysis kinetics: A comparative critical review with relevant agricultural residue case studies. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* [Internet]. Elsevier B.V., 2011 May, 91(1): 1–33.
- [50] Ranzi E, Cuoci A, Faravelli T. Chemical kinetics of biomass pyrolysis. *Energy & Fuels*. 2008, 22(6): 4292–300.
- [51] Tapasvi D, Khalil R, Várhegyi G, Tran K-Q, Grønli M, Skreiberg Ø. Thermal decomposition kinetics of woods with an emphasis on torrefaction. *Energy & Fuels* [Internet]. 2013 Oct 17, 27(10): 6134–45.

- [52] Anca-couce A, Mehrabian R, Scharler R, Obernberger I. Kinetic scheme to predict product composition of biomass torrefaction. *Chemical Engineering Transactions*. 2014, 37: 43–8.
- [53] Gauthier G, Melkior T, Salvador S, Corbetta M, Frassoldati A, Pierucci S, Ranzi E, Bennadji H, Fisher EM. Pyrolysis of thick biomass particles : experimental and kinetic modelling. *Chemical Engineering Transactions*. 2013, 32: 601–6.
- [54] Blondeau J, Jeanmart H. Biomass pyrolysis at high temperatures: Prediction of gaseous species yields from an anisotropic particle. *Biomass and Bioenergy* [Internet]. 2012 Jun, 41: 107–21.
- [55] Cuoci A, Faravelli T, Frassoldati A, Granata S, Migliavacca G, Pierucci S, Ranzi E, Sommariva S. A general mathematical model of biomass devolatilization. 30th Meeting of the Italian section of the Combustion Institute. 2007. p. 1–6.
- [56] Klinger J, Bar-Ziv E, Shonnard D. Kinetic study of aspen during torrefaction. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* [Internet]. Elsevier B.V., 2013 Nov, 104: 146–52.
- [57] Chew JJ, Doshi V. Recent advances in biomass pretreatment – Torrefaction fundamentals and technology. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* [Internet]. Elsevier Ltd, 2011 Oct, 15(8): 4212–22.
- [58] Repellin V, Govin A, Rolland M, Guyonnet R. Modelling anhydrous weight loss of wood chips during torrefaction in a pilot kiln. *Biomass and Bioenergy* [Internet]. Elsevier Ltd, 2010 May, 34(5): 602–9.
- [59] Ratte J, Marias F, Vaxelaire J, Bernada P. Mathematical modelling of slow pyrolysis of a particle of treated wood waste. *Journal of hazardous materials*. 2009 Oct 30, 170(2-3): 1023–40.
- [60] Ratte J, Fardet E, Mateos D, Héry J-S. Mathematical modelling of a continuous biomass torrefaction reactor: TORSPYD™ column. *Biomass and Bioenergy* [Internet]. 2011 May, 35(8): 3481–95.
- [61] Cavagnol S, Sanz E, Nastoll W, Roesler JF, Zymła V, Perré P. Inverse analysis of wood pyrolysis with long residence times in the temperature range 210–290°C: Selection of multi-step kinetic models based on mass loss residues. *Thermochimica Acta* [Internet]. Elsevier B.V., 2013 Dec, 574: 1–9.
- [62] Di Blasi C, Lanzetta M. Intrinsic kinetics of isothermal xylan degradation in inert atmosphere. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* [Internet]. 1997 May, 40-41: 287–303.
- [63] Ren S, Lei H, Wang L, Bu Q, Chen S, Wu J. Thermal behaviour and kinetic study for woody biomass torrefaction and torrefied biomass pyrolysis by TGA. *Biosystems Engineering* [Internet]. IAgRE, 2013 Dec, 116(4): 420–6.

- [64] Shang L, Ahrenfeldt J, Holm JK, Bach LS, Stelte W, Henriksen UB. Kinetic model for torrefaction of wood chips in a pilot-scale continuous reactor. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* [Internet]. Elsevier B.V., 2014 May, 108: 109–16.
- [65] Joshi Y, de Vries H, Woudstra T, de Jong W. Torrefaction: Unit operation modelling and process simulation. *Applied Thermal Engineering* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Jan, : 1–6.
- [66] Peduzzi E, Boissonnet G, Haarlemmer G, Dupont C, Maréchal F. Torrefaction modelling for lignocellulosic biomass conversion processes. *Energy* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Jun, 70: 58–67.
- [67] Rousset P, Turner I, Donnot A, Perré P. Choix d'un modèle de pyrolyse ménagée du bois à l'échelle de la microparticule en vue de la modélisation macroscopique. *Annals of forest science* [Internet]. 2006, 63(2): 213–29.
- [68] Nocquet T, Dupont C, Commandre J-M, Grateau M, Thiery S, Salvador S. Volatile species release during torrefaction of biomass and its macromolecular constituents: Part 2 – Modeling study. *Energy* [Internet]. 2014 Jun, 72: 188–94.
- [69] Basu P, Sadhukhan AK, Gupta P, Rao S, Dhungana A, Acharya B. An experimental and theoretical investigation on torrefaction of a large wet wood particle. *Bioresource technology* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 May, 159: 215–22.
- [70] Perré P, Rémond R, Turner I. A comprehensive dual-scale wood torrefaction model: Application to the analysis of thermal run-away in industrial heat treatment processes. *International Journal of Heat and Mass Transfer* [Internet]. 2013 Sep, 64: 838–49.
- [71] Rath J, Wolfinger M, Steiner G, Krammer G, Barontini F, Cozzani V. Heat of wood pyrolysis. *Fuel* [Internet]. Elsevier, 2003, 82(1): 81–91.
- [72] Gomez C, Velo E, Barontini F, Cozzani V. Influence of secondary reactions on the heat of pyrolysis of biomass. *Industrial & Engineering Chemistry Research* [Internet]. 2009 Dec 2, 48(23): 10222–33.
- [73] Rousset P, Davrieux F, Macedo L, Perré P. Characterisation of the torrefaction of beech wood using NIRS: Combined effects of temperature and duration. *Biomass and Bioenergy*. 2011 Mar, 35(3): 1219–26.
- [74] Pierre F, Almeida G, Brito J. Influence of torrefaction on some chemical and energy properties of maritime pine and pedunculate oak. *BioResources* [Internet]. 2011, 6(Bourgeois 1989): 1204–18.
- [75] Van der Stelt M. Chemistry and reaction kinetics of biowaste torrefaction. Technische Universiteit Eindhoven, 2010. p. 1–263.

- [76] Prins MJ. Thermodynamic analysis of biomass gasification and torrefaction. Library. Technische Universiteit Eindhoven, 2005. p. 1–154.
- [77] Ohliger A, Förster M, Kneer R. Torrefaction of beechwood: A parametric study including heat of reaction and grindability. *Fuel* [Internet]. Elsevier Ltd, 2013 Feb, 104: 607–13.
- [78] Bates RB, Ghoniem AF. Biomass torrefaction: modeling of reaction thermochemistry. *Bioresource technology* [Internet]. 2013 Apr, 134: 331–40.
- [79] Granados D a., Velásquez HI, Chejne F. Energetic and exergetic evaluation of residual biomass in a torrefaction process. *Energy* [Internet]. 2014 Jun, 74: 181–9.
- [80] Chen W-H, Kuo P-C, Liu S-H, Wu W. Thermal characterization of oil palm fiber and eucalyptus in torrefaction. *Energy* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 May, 71: 40–8.
- [81] Rousset P, Macedo L, Commandré J-M, Moreira A. Biomass torrefaction under different oxygen concentrations and its effect on the composition of the solid by-product. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* [Internet]. Elsevier B.V., 2012 Jul, 96: 86–91.
- [82] Wang C, Peng J, Li H, Bi XT, Legros R, Lim CJ, Sokhansanj S. Oxidative torrefaction of biomass residues and densification of torrefied sawdust to pellets. *Bioresource technology*. Elsevier Ltd, 2013 Jan, 127: 318–25.
- [83] Chen W-H, Lu K-M, Liu S-H, Tsai C-M, Lee W-J, Lin T-C. Biomass torrefaction characteristics in inert and oxidative atmospheres at various superficial velocities. *Bioresource technology* [Internet]. Elsevier Ltd, 2013 Oct, 146: 152–60.
- [84] Eseltine D, Thanapal SS, Annamalai K, Ranjan D. Torrefaction of woody biomass (Juniper and Mesquite) using inert and non-inert gases. *Fuel* [Internet]. Elsevier Ltd, 2013 Nov, 113: 379–88.
- [85] Ibrahim RHH, Darvell LI, Jones JM, Williams A. Physicochemical characterisation of torrefied biomass. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* [Internet]. Elsevier B.V., 2013 Sep, 103: 21–30.
- [86] Pimchuai A, Dutta A, Basu P. Torrefaction of agriculture residue to enhance combustible properties. *Energy & Fuels* [Internet]. 2010 Sep 16, 24(9): 4638–45.
- [87] He X, Lau AK, Sokhansanj S, Lim CJ, Bi XT, Melin S, Keddy T. Moisture sorption isotherms and drying characteristics of aspen (*Populus tremuloides*). *Biomass and Bioenergy* [Internet]. Elsevier Ltd, 2013 Oct, 57: 161–7.
- [88] Sarvaramini A, Larachi F. Integrated biomass torrefaction – Chemical looping combustion as a method to recover torrefaction volatiles energy. *Fuel* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Jan, 116: 158–67.

- [89] Olek W, Majka J, Czajkowski Ł. Sorption isotherms of thermally modified wood. *Holzforschung* [Internet]. 2012 Jan 1, 67(2): 1–9.
- [90] Järvinen T, Agar D. Experimentally determined storage and handling properties of fuel pellets made from torrefied whole-tree pine chips, logging residues and beech stem wood. *Fuel* [Internet]. 2014 Aug, 129: 330–9.
- [91] Medic D, Darr M, Shah A, Rahn S. Effect of torrefaction on water vapor adsorption properties and resistance to microbial degradation of corn stover. *Energy & Fuels* [Internet]. 2012 Apr 19, 26(4): 2386–93.
- [92] Hill C a. S, Ramsay J, Keating B, Laine K, Rautkari L, Hughes M, Constant B. The water vapour sorption properties of thermally modified and densified wood. *Journal of Materials Science* [Internet]. 2011 Dec 6, 47(7): 3191–7.
- [93] Hakkou M, Pétrissans M, Gérardin P, Zoulalian A. Investigations of the reasons for fungal durability of heat-treated beech wood. *Polymer Degradation and Stability* [Internet]. 2006 Feb, 91(2): 393–7.
- [94] Mohareb A, Sirmah P, Pétrissans M, Gérardin P. Effect of heat treatment intensity on wood chemical composition and decay durability of *Pinus patula*. *European Journal of Wood and Wood Products*. 2011 Oct 27, 70(4): 519–24.
- [95] Miao Z, Grift TE, Hansen a. C, Ting KC. Energy requirement for comminution of biomass in relation to particle physical properties. *Industrial Crops and Products* [Internet]. Elsevier B.V., 2011 Mar, 33(2): 504–13.
- [96] Repellin V, Govin A, Rolland M, Guyonnet R. Energy requirement for fine grinding of torrefied wood. *Biomass and Bioenergy*. Elsevier Ltd, 2010 Jul, 34(7): 923–30.
- [97] Bridgeman TG, Jones JM, Williams A, Waldron DJ. An investigation of the grindability of two torrefied energy crops. *Fuel*. Elsevier Ltd, 2010 Dec, 89(12): 3911–8.
- [98] Van Essendelft DT, Zhou X, Kang BS-J. Grindability determination of torrefied biomass materials using the Hybrid Work Index. *Fuel* [Internet]. Elsevier Ltd, 2013 Mar, 105: 103–11.
- [99] Kokko L, Tolvanen H, Hämäläinen K, Raiko R. Comparing the energy required for fine grinding torrefied and fast heat treated pine. *Biomass and Bioenergy* [Internet]. 2012 Jul, 42: 219–23.
- [100] Phanphanich M, Mani S. Impact of torrefaction on the grindability and fuel characteristics of forest biomass. *Bioresource technology* [Internet]. Elsevier Ltd, 2011 Jan, 102(2): 1246–53.
- [101] Asadullah M, Adi AM, Suhada N, Malek NH, Saringat MI, Azdarpour A. Optimization of palm kernel shell torrefaction to produce energy densified bio-coal. *Energy Conversion and Management* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 May, .

- [102] Chen Y, Yang H, Yang Q, Hao H, Zhu B, Chen H. Torrefaction of agriculture straws and its application on biomass pyrolysis poly-generation. *Bioresource technology* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Mar, 156: 70–7.
- [103] Kim Y-H, Lee S-M, Lee H-W, Lee J-W. Physical and chemical characteristics of products from the torrefaction of yellow poplar (*Liriodendron tulipifera*). *Bioresource technology*. Elsevier Ltd, 2012 Jul, 116: 120–5.
- [104] Arias B, Pevida C, Feroso J, Plaza M, Rubiera F, Pis J. Influence of torrefaction on the grindability and reactivity of woody biomass. *Fuel Processing Technology* [Internet]. 2008 Feb, 89(2): 169–75.
- [105] Doassans-Carrère N, Muller S, Mitzkat M. REVE — a new industrial technology for biomass torrefaction: pilot studies. *Fuel Processing Technology* [Internet]. Elsevier B.V., 2014 Oct, 126: 155–62.
- [106] Satpathy SK, Tabil LG, Meda V, Naik SN, Prasad R. Torrefaction of wheat and barley straw after microwave heating. *Fuel* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 May, 124: 269–78.
- [107] Pilon G, Lavoie J. Characterization of switchgrass char produced in torrefaction and pyrolysis conditions. *BioResources* [Internet]. 2011, 6: 4824–39.
- [108] Peng JH, Bi HT, Sokhansanj S, Lim JC. Torrefaction and densification of different species of softwood residues. *Fuel* [Internet]. 2013 May, 111: 411–21.
- [109] Stelte W, Clemons C, Holm JK, Sanadi AR, Ahrenfeldt J, Shang L, Henriksen UB. Pelletizing properties of torrefied spruce. *Biomass and Bioenergy* [Internet]. Elsevier Ltd, 2011 Nov, 35(11): 4690–8.
- [110] Reza MT, Uddin MH, Lynam JG, Coronella CJ. Engineered pellets from dry torrefied and HTC biochar blends. *Biomass and Bioenergy* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Apr, 63: 229–38.
- [111] Peng JH, Bi HT, Lim CJ, Sokhansanj S. Study on density , hardness , and moisture uptake of torrefied wood pellets. *Energy & Fuels*. 2013, 27: 967–74.
- [112] Fisher EM, Dupont C, Darvell LI, Commandré J-M, Saddawi A, Jones JM, Grateau M, Nocquet T, Salvador S. Combustion and gasification characteristics of chars from raw and torrefied biomass. *Bioresource technology* [Internet]. Elsevier Ltd, 2012 Sep, 119: 157–65.
- [113] Pala M, Kantarli IC, Buyukisik HB, Yanik J. Hydrothermal carbonization and torrefaction of grape pomace: A comparative evaluation. *Bioresource technology* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Jun, 161: 255–62.
- [114] Du S-W, Chen W-H, Lucas J a. Pretreatment of biomass by torrefaction and carbonization for coal blend used in pulverized coal injection. *Bioresource technology* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Jun, 161: 333–9.

- [115] Li J, Brzdekiewicz A, Yang W, Blasiak W. Co-firing based on biomass torrefaction in a pulverized coal boiler with aim of 100% fuel switching. *Applied Energy*. Elsevier Ltd, 2012 Nov, 99: 344–54.
- [116] Werther J, Saenger M, Hartge E, Ogada T. Combustion of agricultural residues. *Energy and combustion*. 2000, 26: 1–27.
- [117] Xue G, Kwapinska M, Kwapinski W, Czajka KM, Kennedy J, Leahy JJ. Impact of torrefaction on properties of *Miscanthus x giganteus* relevant to gasification. *Fuel* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Apr, 121: 189–97.
- [118] Fryda L, Daza C, Pels J, Janssen A, Zwart R. Lab-scale co-firing of virgin and torrefied bamboo species *Guadua angustifolia* Kunth as a fuel substitute in coal fired power plants. *Biomass and Bioenergy* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Jun, 65: 28–41.
- [119] Keipi T, Tolvanen H, Kokko L, Raiko R. The effect of torrefaction on the chlorine content and heating value of eight woody biomass samples. *Biomass and Bioenergy* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Jul, 66: 232–9.
- [120] Prins M, Ptasiński K, Janssen F. More efficient biomass gasification via torrefaction. *Energy* [Internet]. 2006 Dec, 31(15): 3458–70.
- [121] Couhert C, Salvador S, Commandré J-M. Impact of torrefaction on syngas production from wood. *Fuel* [Internet]. Elsevier Ltd, 2009 Nov, 88(11): 2286–90.
- [122] Chen Q, Zhou J, Liu B, Mei Q, Luo Z. Influence of torrefaction pretreatment on biomass gasification technology. *Chinese Science Bulletin* [Internet]. 2011 May 5, 56(14): 1449–56.
- [123] Sun YJ, Jiang JC, Zhao SH, Hu YM, Zheng ZF. Review of torrefaction reactor technology. *Advanced Materials Research* [Internet]. 2011 Oct, 347-353: 1149–55.
- [124] Koppejan J, Sokhansanj S, Melin S, Madrali S. Status overview of torrefaction technologies. *IEA Bioenergy Task32*. 2012 p. 1–54.
- [125] Acharya B, Sule I, Dutta A. A review on advances of torrefaction technologies for biomass processing. *Biomass Conversion and Biorefinery*. 2012, 2(4): 349–69.
- [126] Li J, Zhang X, Pawlak-Kruczek H, Yang W, Kruczek P, Blasiak W. Process simulation of co-firing torrefied biomass in a 220MWe coal-fired power plant. *Energy Conversion and Management* [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Aug, 84: 503–11.
- [127] Casajus C. *Torréfaction de biomasses ligno-cellulosiques*. Université de Pau et des pays de l'Adour, 2010. p. 1–208.
- [128] Boateng AA. *Rotary kilns: transport phenomena and transport processes*. Butterworth-Heinemann, editor. 2008.

- [129] Henein H, Brimacombe J. Experimental study of transverse bed motion in rotary kilns. *Metallurgical and Materials*. 1983, 14: 191–205.
- [130] Henein H, Brimacombe JK, Watkinson AP. The modeling of transverse solids motion in rotary kilns. *Metallurgical and Materials*. 1983, 14: 207–20.
- [131] Mellmann J. The transverse motion of solids in rotating cylinders - forms of motion and transition behavior. *Powder Technology*. 2001, 118: 251–70.
- [132] Boateng AA, Barr P V. Modelling of particle mixing and segregation in the transverse plane of a rotary kiln. *Chemical Engineering Science*. 1996, 51(17): 4167–81.
- [133] Ding Y., Forster R, Seville JP., Parker D. Granular motion in rotating drums: bed turnover time and slumping–rolling transition. *Powder Technology [Internet]*. 2002 Apr, 124(1-2): 18–27.
- [134] Descoins N. Contribution à l'élaboration d'outils de simulation des fours tournants dédiés à la pyrolyse de déchets: modélisation dynamique du couplage transport de la charge - transferts de chaleur - réactions chimiques. Thèse de doctorat de l'Institut National Polytechnique de Toulouse, 2003. p. 1–278.
- [135] Hanrot F. Analyse physico-chimique et modélisation de la pyrolyse de grains de charbon en four tournant. Institut National Polytechnique de Lorraine, 1992.
- [136] Liu XY, Specht E. Mean residence time and hold-up of solids in rotary kilns. *Chemical Engineering Science [Internet]*. 2006 Aug, 61(15): 5176–81.
- [137] Thibault J, Alvarez PI, Blasco R, Vega R. Modeling the mean residence time in a rotary dryer for various types of solids. *Drying Technology [Internet]*. 2010 Sep 30, 28(10): 1136–41.
- [138] Bongo Njeng a. S, Vitu S, Clause M, Dirion J-L, Debacq M. Effect of lifter shape and operating parameters on the flow of materials in a pilot rotary kiln: Part I. Experimental RTD and axial dispersion study. *Powder Technology [Internet]*. Elsevier B.V., 2014 Apr, .
- [139] Debacq M, Vitu S, Ablitzer D, Houzelot J-L, Patisson F. Transverse motion of cohesive powders in flighted rotary kilns: experimental study of unloading at ambient and high temperatures. *Powder Technology [Internet]*. Elsevier B.V., 2013 Sep, 245: 56–63.
- [140] Sherritt RG, Chaouki J, Mehrotra AK, Behie LA. Axial dispersion in the three-dimensional mixing of particles in a rotating drum reactor. *Chemical Engineering Science [Internet]*. 2003 Jan, 58(2): 401–15.
- [141] Cleary P, Prakash M, Sinnott M, Rudman M, Das R. Large scale simulation of industrial, engineering and geophysical flows using particle methods. *Computational Methods in Applied Sciences*. 2011, 25: 88–111.

- [142] Sullivan JD, Maier CG, Ralston OC. Passage of solids particles through rotary cylindrical kilns. 1927 p. 1–42.
- [143] Chatterjee A, Sathe A. Flow of materials in rotary kilns used for sponge iron manufacture: Part I. Effect of some operational variables. *Metallurgical and Materials [Internet]*. 1983, 14: 375–81.
- [144] Sai PST, Surender GD, Damoradan AD, Suresh V, Philip ZG, Sankaran K. Residence time distribution and material flow studies in a rotary kiln. *Metallurgical and material*. 1990, 21B: 1005–11.
- [145] Saeman WC. Passage of solids through rotary kilns. *Chemical Engineering Progress*. 1951, 47(10): 508–15.
- [146] Afacan A, Masliyah JH. Solids hold-up in rotary drums. *Powder Technology [Internet]*. 1990 May, 61(2): 179–84.
- [147] Gao Y, Glasser BJ, Ierapetritou MG, Cuitino A, Muzzio FJ, Beeckman JW, Fassbender NA, Borghard WG. Measurement of residence time distribution in a rotary calciner. *AIChE Journal*. 2013, 59(11): 4068–76.
- [148] Aït Aissa A, Duchesne C, Rodrigue D. Longitudinal segregation of polymer powder in a rotating cylinder. *Powder Technology [Internet]*. Elsevier B.V., 2011 Feb, 207(1-3): 324–34.
- [149] Ingram A, Seville J, Parker D, Fan X, Forster R. Axial and radial dispersion in rolling mode rotating drums. *Powder Technology*. 2005 Oct, 158(1-3): 76–91.
- [150] Das Gupta S, Khakhar D, Bhatia S. Axial segregation of particles in a horizontal rotating cylinder. *Chemical Engineering Science*. 1991, 46(5/6): 1513–7.
- [151] Bridgwater J, Foo WS, Stephens DJ. Particle mixing and segregation in failure zones - Theory and experiment. *Powder Technology*. 1985, 41: 147–58.
- [152] Levenspiel O. *Chemical Reaction Engineering - Third Edition*. John Wiley & Sons, 1999.
- [153] Li S, Yan J, Li R, Chi Y, Cen K. Axial transport and residence time of MSW in rotary kilns: Part I. Experimental. *Powder technology [Internet]*. 2002, 126: 217–27.
- [154] Martin A. Interpretation of residence time distribution data. *Chemical Engineering Science [Internet]*. 2000, 55: 5907–17.
- [155] Renaud M, Thibault J, Alvarez PI. Influence of solids moisture content on the average residence time in a rotary dryer. *Drying Technology*. 2001, 19(9): 2131–50.
- [156] Renström R. Mean residence time and residence time distribution when sawdust is dried in continuous dryers. *Drying Technology [Internet]*. 2008 Nov 21, 26(12): 1457–63.

- [157] Houzelot J-L. Distribution des temps de séjour et efficacité des réacteurs chimiques. *Techniques de l'ingénieur*. 2013, (J 4 014): 1–14.
- [158] Hatzilyberis KS, Androutsopoulos GP, Salmas CE. Indirect thermal drying of lignite: design aspects of a rotary dryer. *Drying Technology* [Internet]. 2000 Oct, 18(9): 2009–49.
- [159] Hatzilyberis KS, Androutsopoulos GP. An RTD study for the flow of lignite particles through a pilot rotary dryer - Part1 - Bare drum case. *Drying technology*. 1999, 17: 745–57.
- [160] Song Y, Thibault J, Kudra T. Dynamic characteristics of solids transportation in rotary dryers. *Drying Technology* [Internet]. 2003 Jan 7, 21(5): 755–73.
- [161] Tscheng SH, Watkinson AP. Convective heat transfer in a rotary kiln. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*. 1979, 57: 433–43.
- [162] Gorog JP, Adams TN, Brimacombe JK. Regenerative heat transfer in rotary kilns. *Metallurgical and Materials Transactions B*. 1982, 13: 153–63.
- [163] Seghir-Ouali S, Saury D, Harmand S, Phillipart O, Laloy D. Convective heat transfer inside a rotating cylinder with an axial air flow. *International Journal of Thermal Sciences* [Internet]. 2006 Dec, 45(12): 1166–78.
- [164] Mujumdar KS, Ranade VV. Simulation of rotary cement kilns using a one-dimensional model. *Chemical Engineering Research and Design*. 2006, 84(A3): 165–77.
- [165] Ding Y., Forster R., Seville JP., Parker D. Some aspects of heat transfer in rolling mode rotating drums operated at low to medium temperatures. *Powder Technology* [Internet]. 2001 Nov, 121(2-3): 168–81.
- [166] Gorog JP, Brimacombe JK, Adams TN. Radiative heat transfer in rotary kilns. *Metallurgical and Materials Transactions B*. 1981, 12(1): 55–70.
- [167] Ginsberg T, Modigell M. Dynamic modelling of a rotary kiln for calcination of titanium dioxide white pigment. *Computers & Chemical Engineering* [Internet]. 2011 Nov, 35(11): 2437–46.
- [168] Sacadura J. *Initiation aux transferts thermiques*. Lavoisier, editor. 1980.
- [169] Wes G, Drinkenburg AAH, Stemerding S. Heat transfer in a horizontal rotary drum reactor. *Powder Technology*. 1976, 13: 185–92.
- [170] Li S-Q, Ma L-B, Wan W, Yao Q. A mathematical model of heat transfer in a rotary kiln thermo-reactor. *Chemical Engineering & Technology* [Internet]. 2005 Dec, 28(12): 1480–9.

- [171] Lehmberg J, Hehl M, Schügerl K. Transverse mixing and heat transfer in horizontal rotary drum reactors. *Powder Technology*. 1977, 18: 149–63.
- [172] Herz F, Mitov I, Specht E, Stanev R. Influence of operational parameters and material properties on the contact heat transfer in rotary kilns. *International Journal of Heat and Mass Transfer* [Internet]. Elsevier Ltd, 2012 Dec, 55(25-26): 7941–8.
- [173] Herz F, Mitov I, Specht E, Stanev R. Experimental study of the contact heat transfer coefficient between the covered wall and solid bed in rotary drums. *Chemical Engineering Science* [Internet]. Elsevier, 2012 Sep, 82: 312–8.
- [174] Waje S., Patel AK, Thorat BN, Mujumdar AS. Study of residence time distribution in a pilot-scale screw conveyor dryer. *Drying Technology*. 2007, 25: 249–59.
- [175] Wes J, Drinkenburg AAH, Stemerding S. Solids mixing and residence time distribution in a horizontal rotary drum reactor. *Powder Technology*. 1976, 13: 177–84.
- [176] Aspen-Technology. ASPEN-Plus. 2005.
- [177] Ahmed Hared I. Optimisation d'un procédé de pyrolyse en four tournant: application à la production de charbons actifs. Thèse de doctorat de l'Institut National Polytechnique de Toulouse, 2007. p. 1–171.
- [178] Green DW, Perry RH. *Perry's chemical engineers' handbook - Seventh edition*. McGraw-Hill, 1997.
- [179] Forest Product Laboratory. *Wood Handbook - Wood as an Engineering Material*. 2010.
- [180] Shah YT, Gardner TH. Biomass torrefaction : applications in renewable energy and fuels. *Encyclopedia of chemical processing*. 2012, .
- [181] Kamke F, Wilson J. Computer simulation of a rotary dryer - Part II: heat and mass transfer. *AIChE Journal*. 1986, 32(2): 269–75.
- [182] Shene C, Bravo S. Mathematical modelling of indirect contact rotary dryers. *Drying Technology* [Internet]. 1998 Jan, 16(8): 1567–83.
- [183] Fernandes N, Ataíde C, Barrozo M. Modeling and experimental study of hydrodynamic and drying characteristics of an industrial rotary dryer. *Brazilian Journal of Chemical engineering* [Internet]. 2009, 26(02): 331–41.
- [184] Castaño F, Rubio FR, Ortega MG. Modeling of a cocurrent rotary dryer. *Drying Technology* [Internet]. 2012 Jun 15, 30(8): 839–49.
- [185] Shene C, Cubillos F, Perez R, Alvarez PI. Modelling and simulation of a direct contact rotary dryer. *Drying Technology*. 1996, 14(10): 2419–33.

- [186] Arruda EB. Comparacao do desempenho do secador roto-fluidizado com o secador rotatorio convencional : secagem de fertilizantes. Universidade Federal de Uberlandia, 2008. p. 1–204.
- [187] Arruda EB, Lobato FS, Assis a. J, Barrozo M a. S. Modeling of fertilizer drying in roto-aerated and conventional rotary dryers. *Drying Technology* [Internet]. 2009 Oct 22, 27(11): 1192–8.
- [188] Sai P. Drying of solids in a rotary dryer. *Drying Technology* [Internet]. 2013 Jan 25, 31(2): 213–23.
- [189] Van Meel D. Adiabatic convection batch drying with recirculation of air. *Chemical Engineering Science*. 1958, 9: 36–44.
- [190] Jannot Y, Talla A, Nganhou J, Puiggali J-R. Modeling of banana convective drying by the drying characteristic curves (DCC) method. *Drying Technology*. 2004, 22(8): 1949–68.
- [191] Reverte C. Stratégie expérimentale pour la détermination de modèles stoechiocinétiques des réactions de dégradation thermique. Institut National Polytechnique de Toulouse, 2007. p. 1–232.
- [192] Deloye A. Combustibles solides. Charbon. Échantillonnage et essai, caractérisation. *Techniques de l'ingénieur*. 2007, (BE 8 532): 1–13.
- [193] Sing KSW. Reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface area and porosity. *Pure and applied chemistry*. 1982, 54(11): 2201–18.
- [194] Hill C a. S, Norton AJ, Newman G. The water vapour sorption properties of Sitka spruce determined using a dynamic vapour sorption apparatus. *Wood Science and Technology* [Internet]. 2010 Feb 16, 44(3): 497–514.
- [195] Arlabosse P, Rodier E, Ferrasse JH, Chavez S, Lecomte D. Comparison Between Static and Dynamic Methods for Sorption Isotherm Measurements. *Drying Technology* [Internet]. 2003 Jan 5, 21(3): 479–97.
- [196] Léonard A. Etude du séchage convectif de boues de station d'épuration - Suivi de la texture par microtomographie à rayons X. Université de Liège, 2002. p. 1–273.
- [197] Jannot Y. Du séchage des produits alimentaires tropicaux à la caractérisation thermophysique des solides. Université Bordeaux I, 2006.
- [198] Chatelet J. Systèmes optroniques - Application du laser à la granulométrie. *Techniques de l'ingénieur*. 1996, E4410: 1–6.

- [199] Robbe D, Roger B. Granulométrie des éléments fins par diffraction laser. présentation et évaluation de la méthode. [Internet]. BULLETION de LIAISON LAB. PONTS CHAUSS. 1987 p. 13–23.
- [200] Temmerman M, Jensen PD, Hébert J. Von Rittinger theory adapted to wood chip and pellet milling, in a laboratory scale hammermill. Biomass and Bioenergy [Internet]. 2013 Sep, 56: 70–81.
- [201] Dupont C. Vapogazeification de la biomasse : Contribution a l'étude de la phénoménologie entre 800 et 1000°C. Université Claude Bernard - Lyon 1, 2006. p. 1–260.
- [202] Guizani C, Escudero Sanz FJ, Salvador S. Effects of CO₂ on biomass fast pyrolysis: Reaction rate, gas yields and char reactive properties. Fuel [Internet]. Elsevier Ltd, 2014 Jan, 116: 310–20.

Annexes

I. Analyse par temps caractéristiques

L'objectif de cette analyse est d'évaluer la cohérence de l'utilisation de cinétiques intrinsèques dans le modèle de torréfaction en four tournant. Ceci nécessite donc d'identifier les phénomènes limitants du procédé. Les phénomènes devant être pris en compte sont d'une part les réactions de torréfaction et, d'autre part, les transferts thermiques au sein des particules. La comparaison des temps caractéristiques de ces deux phénomènes permettra de conclure sur l'hypothèse d'isothermicité des plaquettes de hêtre au cours de la transformation.

I.1. Définition des temps caractéristiques

Le temps caractéristique des réactions de torréfaction t_{torr} (s) est calculé suivant l'Équation A.1 [18,201,202].

$$t_{torr} = \frac{1}{k_{torr}} \quad \text{Équation A.1}$$

Avec k_{torr} (s^{-1}) la constante cinétique des réactions. Plusieurs constantes ayant été déterminées lors de l'élaboration du modèle cinétique, il a été décidé d'utiliser ici la constante $k_{V1} = 2,76 \cdot 10^6 \exp\left(\frac{-103 \cdot 10^3}{RT}\right)$. C'est en effet la constante la plus élevée. Elle représente donc le cas le plus défavorable pour l'identification du régime chimique.

Le temps caractéristique de diffusion de la chaleur au sein des plaquettes de bois est calculé suivant l'Équation A.2.

$$t_{int} = \frac{\rho_{part} C_{p,s} L_c^2}{\lambda_{part}} \quad \text{Équation A.2}$$

Où ρ_{part} ($kg \cdot m^{-3}$) est la masse volumique des particules, $C_{p,s}$ ($J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$) leur capacité thermique massique, L_c (m) leur longueur caractéristique et λ_{part} leur conductivité thermique ($W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$).

I.2. Calcul du nombre de pyrolyse dans le cas des plaquettes de hêtre utilisées

Le nombre de pyrolyse Py est un nombre adimensionnel défini comme le ratio entre le temps caractéristique des réactions et le temps caractéristique de diffusion de la chaleur au sein des particules. Il peut donc être calculé suivant l'Équation A.3 :

$$Py = \frac{t_{\text{torr}}}{t_{\text{int}}} = \frac{\lambda_{\text{part}}}{k_{\text{torr}} \rho_{\text{part}} C_{p,s} L_c^2} \quad \text{Équation A.3}$$

Les valeurs retenues pour les différents paramètres de l'Équation A.3 sont présentées dans le Tableau A.1.

Tableau A.1 : Paramètres de l'étude de temps caractéristiques.

λ_{part}	0,18	$\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$
ρ_{part}	650	kg/m^3
$C_{p,s}$	$103,1 + 3,867.T_s$	$\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$

La longueur caractéristique des particules est classiquement définie comme le rapport entre leur volume et leur surface [18,201]. Celle-ci a donc été calculée pour environ 200 particules donc les dimensions sont connues. La longueur caractéristique moyenne est alors de $5,54.10^{-4}$ m.

La Figure A.1 présente les valeurs du nombre de pyrolyse, Py , calculées pour différentes températures de torréfaction.

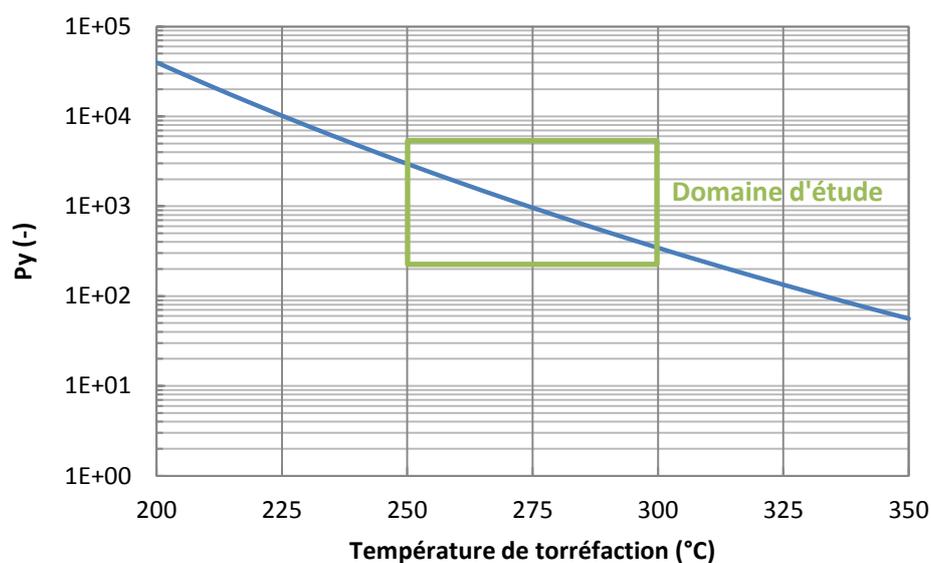


Figure A.1 : Évolution du nombre de pyrolyse avec la température de torréfaction.

Ainsi, les petites dimensions des particules utilisées dans ces travaux mènent à l'obtention de nombres de pyrolyse élevés. En effet, Py vaut 2963 et 344 pour des températures de traitement de 250 et 300 °C respectivement. Ceci signifie que le temps nécessaire aux transferts de chaleur intraparticulaires est négligeable devant les temps de réaction. Il est donc acceptable de considérer des particules homogènes en température et d'utiliser des cinétiques intrinsèques.

La **Figure A.2** a pour objectif d'identifier l'influence de la taille des particules sur le nombre de pyrolyse. Py a été calculé pour des températures de torréfaction de 250 et 300 °C et pour des longueurs caractéristiques situées entre 0,1 et 10 mm.

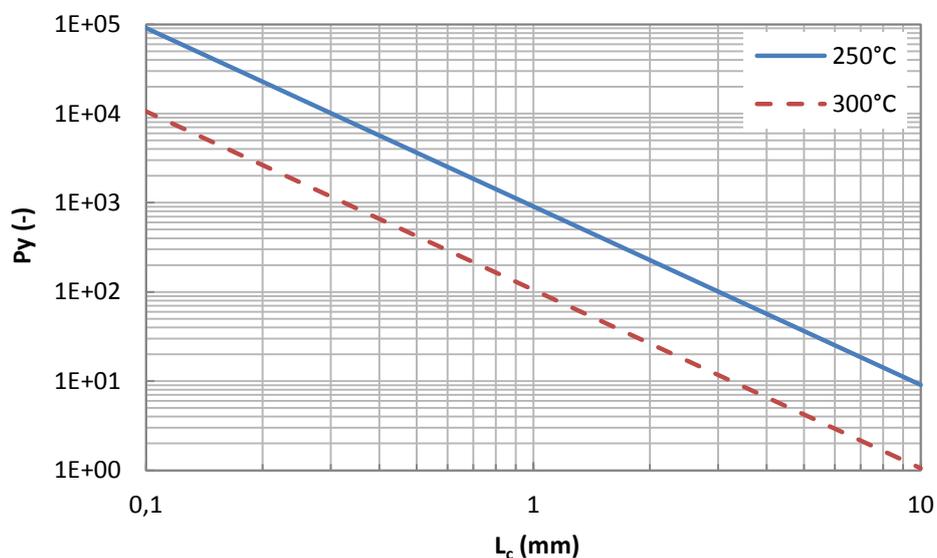


Figure A.2 : Évolution du nombre de pyrolyse avec la taille caractéristique des particules.

Il apparaît que Py devient faible (<10) lorsque la taille des particules atteint quelques millimètres (3 mm dans le cas d'une torréfaction à 300 °C et 10 mm dans le cas d'une torréfaction à 250 °C). Ceci confirme bien que les dimensions des plaquettes utilisées dans cette étude sont adaptées à l'hypothèse de gradients de température négligeables au sein des particules.

II. Établissement des équations constitutives du modèle

L'objectif de cette annexe est d'établir les bilans matière et énergie de manière classique afin de justifier les formulations utilisées dans l'ensemble du manuscrit. Ici, seuls les transferts de chaleur par contact paroi-solide et paroi-gaz sont considérés afin d'alléger l'écriture.

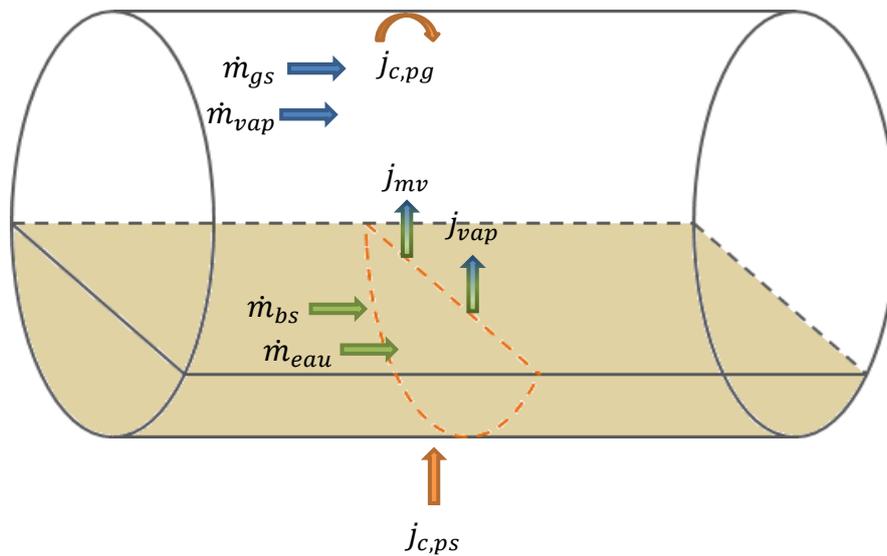


Figure A.3 : Représentation schématique des flux de matière et du flux de chaleur paroi-solide.

Les bilans sont réalisés sur la phase solide et la phase gaz considérées en régime permanent.

Soient :

- \dot{m}_{bs} le débit de bois sec (kg.s^{-1})
- \dot{m}_{liq} le débit d'eau liquide contenue dans le solide (kg.s^{-1})
- \dot{m}_{gs} le débit de gaz sec (kg.s^{-1})
- \dot{m}_{vap} le débit de vapeur d'eau (kg.s^{-1})
- j_{mv} la densité de flux de matières volatiles dégagées ($\text{kg.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$)
- j_{vap} la densité de flux de vapeur d'eau dégagée ($\text{kg.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$)
- $j_{c,ps}$ la densité de flux de chaleur échangée par contact paroi-solide (W.m^{-2})
- $j_{c,pg}$ la densité de flux de chaleur échangée par convection paroi-gaz (W.m^{-2})
- $S_{lin,ps}$ la surface spécifique linéaire de contact paroi-solide en m^2 de surface par m linéaire de cylindre (m)
- $S_{lin,pg}$ la surface spécifique linéaire de contact paroi-gaz en m^2 de surface par m linéaire de cylindre (m)

- $S_{lin,sg}$ la surface spécifique linéaire d'échange solide-gaz en m^2 de surface par m linéaire de cylindre (m)

II.1. Conservation de la masse

- Conservation de l'eau :

$$\frac{d\dot{m}_{liq}}{dz} = -j_{vap} \cdot S_{lin,sg} = \frac{-d\dot{m}_{vap}}{dz} \quad \text{Équation A.4}$$

- Conservation des autres espèces (bois sec et matières volatiles) :

$$\frac{d\dot{m}_{bs}}{dz} = -j_{mv} \cdot S_{lin,sg} = \frac{-d\dot{m}_{gs}}{dz} \quad \text{Équation A.5}$$

II.2. Conservation de l'énergie

II.2.1. Bilan sur la phase solide

L'équation de conservation de l'énergie sur la phase solide s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dz} (\dot{m}_{bs} h_{bs}(T_s) + \dot{m}_{liq} h_{liq}(T_s)) \\ = \frac{d}{dz} \left(\lambda_s S_s \frac{dT_s}{dz} \right) + j_{c,ps} S_{lin,ps} - j_{mv} S_{lin,sg} h_{mv}(T_s) - j_{vap} S_{lin,sg} h_{vap}(T_s) \end{aligned} \quad \text{Équation A.6}$$

Après dérivation du membre de gauche :

$$\begin{aligned} \dot{m}_{bs} \frac{dh_{bs}(T_s)}{dz} + h_{bs}(T_s) \frac{d\dot{m}_{bs}}{dz} + \dot{m}_{liq} \frac{dh_{liq}(T_s)}{dz} + h_{liq}(T_s) \frac{d\dot{m}_{liq}}{dz} \\ = \frac{d}{dz} \left(\lambda_s S_s \frac{dT_s}{dz} \right) + j_{c,ps} S_{lin,ps} - j_{mv} S_{lin,sg} h_{mv}(T_s) - j_{vap} S_{lin,sg} h_{vap}(T_s) \end{aligned} \quad \text{Équation A.7}$$

D'après le bilan de matière :

$$\begin{aligned} \dot{m}_{bs} \frac{dh_{bs}(T_s)}{dz} - j_{mv} \cdot S_{lin,sg} h_{bs}(T_s) + \dot{m}_{liq} \frac{dh_{liq}(T_s)}{dz} - j_{vap} \cdot S_{lin,sg} h_{liq}(T_s) \\ = \frac{d}{dz} \left(\lambda_s S_s \frac{dT_s}{dz} \right) + j_{c,ps} S_{lin,ps} - j_{mv} S_{lin,sg} h_{mv}(T_s) - j_{vap} S_{lin,sg} h_{vap}(T_s) \end{aligned} \quad \text{Équation A.8}$$

Après réarrangement, l'Équation A.8 s'écrit :

$$\begin{aligned} \dot{m}_{bs} \frac{dh_{bs}(T_s)}{dz} + \dot{m}_{liq} \frac{dh_{liq}(T_s)}{dz} \\ = \frac{d}{dz} \left(\lambda_s S_s \frac{dT_s}{dz} \right) + j_{c,ps} S_{lin,ps} - j_{mv} S_{lin,sg} (h_{mv}(T_s) - h_{bs}(T_s)) \\ - j_{vap} S_{lin,sg} (h_{vap}(T_s) - h_{liq}(T_s)) \end{aligned} \quad \text{Équation A.9}$$

En considérant les capacités thermiques du bois sec et de l'eau liquide constantes, il est possible d'écrire les termes enthalpiques sous la forme suivante :

$$\frac{dh_{bs}(T_s)}{dz} = C_{p,bs} \frac{dT_s}{dz} \quad \text{Équation A.10}$$

$$\frac{dh_{liq}(T_s)}{dz} = C_{p,liq} \frac{dT_s}{dz} \quad \text{Équation A.11}$$

L'Équation A.9 fait également apparaître un terme correspondant à la chaleur de réaction produite (ou consommée) lors de la torréfaction $\Delta H_{réac}$ et un terme correspondant à l'enthalpie de vaporisation de l'eau à la température du solide $L_{vap}(T_s)$.

$$h_{mv}(T_s) - h_{bs}(T_s) = \Delta H_{réac} \quad \text{Équation A.12}$$

$$h_{vap}(T_s) - h_{liq}(T_s) = L_{vap}(T_s) \quad \text{Équation A.13}$$

Donc l'équation de conservation devient :

$$\begin{aligned} (\dot{m}_{bs} C_{p,bs} + \dot{m}_{liq} C_{p,liq}) \frac{dT_s}{dz} \\ = \frac{d}{dz} \left(\lambda_s S_s \frac{dT_s}{dz} \right) + j_{c,ps} S_{lin,ps} - j_{mv} S_{lin,sg} \Delta H_{réac} - j_{vap} S_{lin,sg} L_{vap}(T_s) \end{aligned} \quad \text{Équation A.14}$$

En considérant que $\dot{m}_{liq} = X \dot{m}_{bs}$:

$$\dot{m}_{bs} (C_{p,bs} + X C_{p,liq}) \frac{dT_s}{dz} = \frac{d}{dz} \left(\lambda_s S_s \frac{dT_s}{dz} \right) + j_{c,ps} S_{lin,ps} - j_{mv} S_{lin,sg} \Delta H_{réac} - j_{vap} S_{lin,sg} L_{vap}(T_s) \quad \text{Équation A.15}$$

Cette équation peut alors être divisée par la section de passage du solide S_s :

$$\rho_s V_s (C_{p,bs} + X C_{p,liq}) \frac{dT_s}{dz} = \frac{d}{dz} \left(\lambda_s \frac{dT_s}{dz} \right) + \frac{j_{c,ps} S_{lin,ps}}{S_s} - \frac{j_{mv} S_{lin,sg} \Delta H_{réac}}{S_s} - \frac{j_{vap} S_{lin,sg} L_{vap}(T_s)}{S_s} \quad \text{Équation A.16}$$

En simplifiant l'écriture avec :

$$\frac{j_{c,ps} S_{lin,ps}}{S_s} = \frac{\Phi_s}{\Omega_s} \quad \text{Équation A.17}$$

$$\frac{j_{mv} S_{lin,sg} \Delta H_{réac}}{S_s} = \dot{\theta}_s \quad \text{Équation A.18}$$

$$\frac{j_{\text{vap}} S_{\text{lin,sg}} L_{\text{vap}}(T_s)}{S_s} = \rho_s R_w L_{\text{vap}} \quad \text{Équation A.19}$$

Ainsi, sous sa forme finale (utilisée dans le manuscrit), l'équation de conservation de l'énergie sur la phase solide s'écrit :

$$\rho_s (C_{p,bs} + X C_{p,liq}) V_s \frac{dT_s}{dz} = \frac{d}{dz} \left(\lambda_s \frac{dT_s}{dz} \right) + \frac{\Phi_s}{\Omega_s} - \dot{\theta}_s - \rho_s R_w L_{\text{vap}} \quad \text{Équation A.20}$$

II.2.2. Bilan sur la phase gaz

L'équation de conservation de l'énergie sur la phase gaz s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dz} (\dot{m}_{gs} h_{gs}(T_g) + \dot{m}_{\text{vap}} h_{\text{vap}}(T_g)) \\ = \frac{d}{dz} \left(\lambda_g S_g \frac{dT_g}{dz} \right) + j_{c,pg} S_{\text{lin,pg}} + j_{mv} S_{\text{lin,sg}} h_{mv}(T_s) + j_{\text{vap}} S_{\text{lin,sg}} h_{\text{vap}}(T_s) \end{aligned} \quad \text{Équation A.21}$$

En négligeant la conduction axiale et en dérivant le terme de gauche, il vient :

$$\begin{aligned} \dot{m}_{gs} \frac{dh_{gs}(T_g)}{dz} + h_{gs}(T_g) \frac{d\dot{m}_{gs}}{dz} + \dot{m}_{\text{vap}} \frac{dh_{\text{vap}}(T_g)}{dz} + h_{\text{vap}}(T_g) \frac{d\dot{m}_{\text{vap}}}{dz} \\ = j_{c,pg} S_{\text{lin,pg}} + j_{mv} S_{\text{lin,sg}} h_{mv}(T_s) + j_{\text{vap}} S_{\text{lin,sg}} h_{\text{vap}}(T_s) \end{aligned} \quad \text{Équation A.22}$$

D'après le bilan matière :

$$\begin{aligned} \dot{m}_{gs} \frac{dh_{gs}(T_g)}{dz} + j_{mv} S_{\text{lin,sg}} h_{gs}(T_g) + \dot{m}_{\text{vap}} \frac{dh_{\text{vap}}(T_g)}{dz} + j_{\text{vap}} S_{\text{lin,sg}} h_{\text{vap}}(T_g) \\ = j_{c,pg} S_{\text{lin,pg}} + j_{mv} S_{\text{lin,sg}} h_{mv}(T_s) + j_{\text{vap}} S_{\text{lin,sg}} h_{\text{vap}}(T_s) \end{aligned} \quad \text{Équation A.23}$$

Cette expression peut alors être réarrangée :

$$\begin{aligned} \dot{m}_{gs} \frac{dh_{gs}(T_g)}{dz} + \dot{m}_{\text{vap}} \frac{dh_{\text{vap}}(T_g)}{dz} \\ = j_{c,pg} S_{\text{lin,pg}} + j_{mv} S_{\text{lin,sg}} (h_{mv}(T_s) - h_{gs}(T_g)) \\ + j_{\text{vap}} S_{\text{lin,sg}} (h_{\text{vap}}(T_s) - h_{\text{vap}}(T_g)) \end{aligned} \quad \text{Équation A.24}$$

Comme la phase gaz est majoritairement composée de matières volatiles, il est supposé que $h_{gs} \approx h_{mv}$. Les termes enthalpiques peuvent alors être réécrits suivant les **Équations A.25 à A.28** en considérant les capacités thermiques du gaz et de la vapeur d'eau constantes:

$$\frac{dh_{gs}(T_g)}{dz} = C_{p,g} \frac{dT_g}{dz} \quad \text{Équation A.25}$$

$$\frac{dh_{\text{vap}}(T_g)}{dz} = C_{p,\text{vap}} \frac{dT_g}{dz} \quad \text{Équation A.26}$$

$$h_{\text{mv}}(T_s) - h_{\text{gs}}(T_g) = C_{p,\text{mv}}(T_s - T_g) \quad \text{Équation A.27}$$

$$h_{\text{vap}}(T_s) - h_{\text{vap}}(T_g) = C_{p,\text{vap}}(T_s - T_g) \quad \text{Équation A.28}$$

L'Équation A.24 prend donc la forme suivante :

$$\begin{aligned} (\dot{m}_{\text{gs}}C_{p,g} + \dot{m}_{\text{vap}}C_{p,\text{vap}}) \frac{dT_g}{dz} \\ = j_{c,\text{pg}}S_{\text{lin},\text{pg}} + j_{\text{mv}}S_{\text{lin},\text{sg}}C_{p,\text{mv}}(T_s - T_g) + j_{\text{vap}}S_{\text{lin},\text{sg}}C_{p,\text{vap}}(T_s - T_g) \end{aligned} \quad \text{Équation A.29}$$

Étant donné que $\dot{m}_{\text{vap}} = Y\dot{m}_{\text{gs}}$:

$$\dot{m}_{\text{gs}}(C_{p,g} + YC_{p,\text{vap}}) \frac{dT_g}{dz} = j_{c,\text{pg}}S_{\text{lin},\text{pg}} + j_{\text{mv}}S_{\text{lin},\text{sg}}C_{p,\text{mv}}(T_s - T_g) + j_{\text{vap}}S_{\text{lin},\text{sg}}C_{p,\text{vap}}(T_s - T_g) \quad \text{Équation A.30}$$

Cette équation peut alors être divisée par la section de passage du gaz S_g :

$$\rho_g V_g (C_{p,g} + YC_{p,\text{vap}}) \frac{dT_g}{dz} = \frac{j_{c,\text{pg}}S_{\text{lin},\text{pg}}}{S_g} + \frac{j_{\text{mv}}S_{\text{lin},\text{sg}}C_{p,\text{mv}}(T_s - T_g)}{S_g} + \frac{j_{\text{vap}}S_{\text{lin},\text{sg}}C_{p,\text{vap}}(T_s - T_g)}{S_g} \quad \text{Équation A.31}$$

L'écriture peut alors être simplifiée en faisant apparaître les termes du manuscrit :

$$\frac{j_{c,\text{pg}}S_{\text{lin},\text{pg}}}{S_g} = \frac{\Phi_g}{\Omega_g} \quad \text{Équation A.32}$$

$$\frac{j_{\text{mv}}S_{\text{lin},\text{sg}}C_{p,\text{mv}}(T_s - T_g)}{S_g} = \frac{(\dot{R}_{V1} + \dot{R}_{V2})C_{p,\text{mv}}(T_s - T_g)}{S_g} \quad \text{Équation A.33}$$

$$\frac{j_{\text{vap}}S_{\text{lin},\text{sg}}C_{p,\text{vap}}(T_s - T_g)}{S_g} = \frac{R_w \rho_s S_s C_{p,\text{vap}}(T_s - T_g)}{S_g} \quad \text{Équation A.34}$$

Ainsi, l'Équation à résoudre pour calculer le profil de température de la phase gaz est la suivante :

$$\rho_g (C_{p,g} + YC_{p,\text{vap}}) V_g \frac{dT_g}{dz} = \frac{\Phi_g}{\Omega_g} + \frac{(\dot{R}_{V1} + \dot{R}_{V2})C_{p,\text{mv}}(T_s - T_g)}{S_g} + \frac{R_w \rho_s S_s C_{p,\text{vap}}(T_s - T_g)}{S_g} \quad \text{Équation A.35}$$

Liste des figures

Figure 1 : Répartition (en %) de la consommation d'énergie primaire en France pour 2012 (d'après [1]).	23
Figure 2 : Répartition (en %) de la production d'énergies primaires renouvelables en France pour 2012 (d'après [1]).	24
Figure 3 : Les principales filières de valorisation thermochimique de la biomasse.	26
Figure 4 : Représentation schématique de la composition d'une paroi végétale (d'après [24]).	29
Figure 5 : Composition chimique de la cellulose (d'après [7]).	30
Figure 6 : Représentation schématique des phénols précurseurs des lignines (d'après [34]).	31
Figure 7 : Rendement en espèces volatiles après torréfaction du hêtre pendant 3h à différentes températures (d'après [18]).	33
Figure 8 : Evolution du rendement massique lors de la torréfaction de hêtre à différentes températures (d'après [18]).	34
Figure 9 : Modèle cinétique de torréfaction proposé par Repellin et al. [58].	39
Figure 10 : Principe de la détermination de H_r par bilan masse-énergie (d'après [75]).	42
Figure 11 : Isothermes de sorption de pin sylvestre brut (à gauche) et de pin sylvestre traité à 200 °C (à droite) (d'après [92]).	47
Figure 12 : Diagramme de Van Krevelen de différentes espèces de résineux bruts et torréfiés [108].	50
Figure 13 : a) Pression nécessaire à la pelletisation (P_x) et b) Force de compression à la rupture de pellets d'épicéa brut et torréfiés à 250, 275 et 300 °C (d'après [109]).	51
Figure 14 : Evolution de la surface spécifique et du diamètre moyen des pores avec l'augmentation de la température de torréfaction (d'après [122]).	54
Figure 15 : Représentation schématique des principaux modes de chauffage indirect : a) chauffage par rampe de brûleurs externes et b) chauffage par circulation de fluide caloporteur en double paroi.	58
Figure 16 : Représentation schématique d'un four tournant à chauffage direct contre-courant.	58
Figure 17 : Représentation schématique d'une section transversale de four tournant en mode rolling.	61
Figure 18 : Allure du profil de chargement a) sans diaphragme et b) avec diaphragmes (d'après [134]).	62

Figure 19 : Vues en coupe de cylindres équipés de releveurs a) droits et avec angles à b) 105 °; c) 90 ° et d) 75 ° (d’après [137]).	63
Figure 20 : Schéma de principe du réseau de neurones utilisé pour la modélisation du temps de passage (d’après [137]).	66
Figure 21 : Profil de chargement lors d’expériences avec des particules sphériques pour deux débits d’alimentation. h/R est le ratio hauteur du lit / rayon du cylindre et x est la distance à la sortie (d’après [147]).	67
Figure 22 : Schéma de la ségrégation radiale pour un solide constitué de particules de différentes tailles (d’après [132]).	68
Figure 23 : Fonction de distribution des temps de séjour obtenue par traçage de sable en four tournant (d’après [153]).	70
Figure 24 : Influence de la vitesse de rotation et de la rugosité de la paroi du cylindre sur le temps de séjour moyen de déchets municipaux dans un four tournant (d’après [153]).	71
Figure 25 : Principaux transferts thermiques intervenant dans une section de four tournant.	73
Figure 26 : Le four tournant pilote.	83
Figure 27 : Représentation schématique du four tournant pilote.	84
Figure 28 : Schémas de constitution du four électrique et position des thermocouples a) dans la longueur et b) en coupe.	85
Figure 29 : Comparaison du débit délivré par le couloir vibrant avec et sans système de régulation.	86
Figure 30 : Remplacement de la vanne papillon par une bride transparente avec injection d’azote.	87
Figure 31 : Représentation schématique du four tournant pilote modifié et localisation des points d’injection d’azote (flèches vertes).	88
Figure 32 : Pot de récupération conçu pour la torréfaction.	89
Figure 33 : Déroulement d’une expérience de torréfaction en four tournant et protocoles des phases critiques (rechargement de la trémie et changement de pot de récupération)...	90
Figure 34 : Évolution de la température à l’intérieur d’un pot de récupération au cours du remplissage et du refroidissement.	91
Figure 35 : Les trois types de biomasses testées pour l’injection dans le four tournant pilote : a) mélange de résineux, b) pin maritime et c) hêtre.	92
Figure 36 : Formation de voûtes dans un tube lisse.	93
Figure 37 : Répartition des dimensions des plaquettes de hêtre.	94
Figure 38 : Évolution de la température de coquille des différentes zones au cours d’un essai à 280 °C, avec $t_s=69$ min et $H=9,8$ %.	96

Figure 39 : Évolution de la température du lit au cours d'un essai long à 280 °C, avec $t_s=69$ min et $H=9,8$ %.....	96
Figure 40 : Comparaison du profil de température le long du four mesuré lors de deux essais dans les mêmes conditions opératoires à deux mois d'intervalle.....	97
Figure 41 : a) Présentation des traceurs colorés et b) schéma de principe de la DTS.	102
Figure 42 : Photographie réalisée pour l'identification du profil de chargement du cylindre.	103
Figure 43 : Représentation spatiale des jeux de paramètres expérimentaux étudiés (les points verts représentent les essais réalisés).	104
Figure 44 : Courbes de DTS obtenues pour les deux traceurs. Paramètres opératoires : a) $\alpha=2$ ° ; ω =variable ; $Q=4$ kg/h et b) α =variable ; $\omega=4$ tr/min ; $Q=8$ kg/h.	105
Figure 45 : Relation entre l'écart-type des DTS et le temps de séjour moyen.....	106
Figure 46 : Représentation graphique des fonctions de distribution des temps de séjour adimensionnalisées pour l'ensemble des essais.....	107
Figure 47 : Résultats de la procédure d'ajustement des modèles de Dispersion axiale et de Mélangeurs en cascade pour un essai à faibles temps de séjour (DTS3) et un essai à temps de séjour élevés (DTS7).....	108
Figure 48 : Comparaison des courbes DTS du bois brut (essai DTS3) et du bois torréfié (essai DTS9) obtenues avec différents traceurs.....	110
Figure 49 : Évolution de la masse moyenne des particules avec le temps de séjour pour deux essais.	111
Figure 50 : Comparaison du modèle de Saeman et du modèle adapté avec les résultats expérimentaux (les lignes en pointillés représentent une déviation de 5 %).	113
Figure 51 : Profils de chargement calculés par le modèle de Saeman et le modèle ajusté et comparaison avec les résultats expérimentaux pour l'essai DTS2.	114
Figure 52 : Comparaison entre les résultats expérimentaux et le modèle adapté pour différents taux de remplissage.....	114
Figure 53 : Profil de température de consigne utilisé dans le modèle pour un essai à 280 °C.	120
Figure 54 : Évolution de la température de la charge lors des essais de chauffe de bois sec et comparaison avec les résultats du modèle obtenus pour différents coefficients d'échange paroi-lit.....	124
Figure 55 : Représentation graphique de l'influence du diamètre des particules sur le coefficient χ (valeurs expérimentales tirées de [170]).	126
Figure 56 : Profils de température des différentes phases calculés par le modèle de transferts thermiques pour l'essai TH3.....	127

Figure 57 : Puissances thermiques échangées avec le lit de particules le long du four pour l'essai TH3.....	127
Figure 58 : a) Profils de température des différentes phases et b) puissances thermiques échangées avec le lit de particules, calculés par le modèle lors d'une simulation avec une température de consigne de 280 °C.	128
Figure 59 : Répartition (en %) de la puissance totale apportée aux plaquettes de bois. a) conditions de l'essai TH3 et b) simulation à 280 °C.	129
Figure 60 : Représentations schématiques a) d'une courbe de séchage et b) d'une courbe caractéristique.....	132
Figure 61 : Profils d'humidité mesurés le long du four pour l'ensemble des essais.	135
Figure 62 : Cinétiques de séchage déterminées pour les différents essais.	135
Figure 63 : Évolution de la vitesse de séchage avec la teneur en eau.....	136
Figure 64 : Courbe caractéristique du séchage des plaquettes de bois.	137
Figure 65 : Évaluation de l'adéquation modèle/expérience pour la vitesse initiale de séchage (les traits pointillés représentent une déviation de 10 %).....	138
Figure 66 : Profils de température et de teneur en eau calculés par le modèle et teneur en eau mesurée expérimentalement lors des essais a) SEC2 et b) SEC5.....	139
Figure 67 : Puissances reçue par le solide et consommée par le séchage, calculées par le modèle lors de la simulation de l'essai SEC5.	140
Figure 68 : Profil de température appliqué à la biomasse lors des essais en ATG.	142
Figure 69 : Évolution de la température de l'échantillon et du rendement massique au cours de l'essai CIN3.	143
Figure 70 : Évaluation de la répétabilité des expériences et validation du régime cinétique.	144
Figure 71 : Évolution du rendement massique sur sec lors de la torréfaction à différentes températures et avec différentes vitesses de chauffe.	145
Figure 72 : Schéma cinétique de Di Blasi & Lanzetta.	146
Figure 73 : Démarche adoptée pour la détermination des paramètres cinétiques.	147
Figure 74 : Graphique d'Arrhenius pour les quatre constantes de vitesse dans le domaine 250-310 °C pour les trois identifications.....	149
Figure 75 : Comparaison des rendements expérimentaux avec les rendements calculés après identification a) sur les courbes ATG et b) sur les courbes DTG.....	150
Figure 76 : Comparaison des courbes DTG obtenues expérimentalement et par calcul avec les deux jeux de paramètres.	151
Figure 77 : Évolution des rendements des différents pseudo-composants lors de la torréfaction à a) 250 °C, b) 270 °C, c) 290 °C et d) 310 °C.	153

Figure 78 : Représentation schématique du modèle de torréfaction en four tournant.	159
Figure 79 : Températures mesurées lors des essais TFT1 et TFT2.....	166
Figure 80 : Évolution a) du rendement massique et b) de la température mesurée maximale en fonction de la température de consigne lors des essais de torréfaction en four tournant.	167
Figure 81 : Influence du temps de séjour : profils de température le long du cylindre mesurés lors des essais TFT2 et TFT4.	168
Figure 82 : Influence du taux de remplissage : profils de température mesurés lors des essais TFT3 et TFT4.	169
Figure 83 : Évolution de la température du lit de plaquettes lors d'un essai de torréfaction réalisé dans les conditions de l'essai TFT8.	170
Figure 84 : Rendements expérimentaux et rendements calculés par le modèle avec et sans chaleur de réaction.	172
Figure 85 : Comparaison des profils de température calculés par le modèle avec les relevés de température expérimentaux pour un essai à faible débit (TFT3) et un essai à fort débit (TFT4).....	173
Figure 86 : Puissance délivrée par les résistances lors d'un blanc, lors de l'essai TFT3 et valeurs corrigées pour l'essai TFT3.	174
Figure 87 : Profils de puissance expérimentaux et calculés pour les essais a) TFT3 à faible débit de bois et b) TFT4 à fort débit de bois.	175
Figure 88 : Évolution des débits de pseudo-composés et du rendement massique le long du four pour les essais a) TFT3 et b) TFT6.....	177
Figure 89 : Évolution des coefficients de sensibilité réduits de la température.	179
Figure 90 : Coefficients de sensibilité réduits moyens de la température.....	180
Figure 91 : a) Coefficients de sensibilité réduits et b) coefficients de sensibilité réduits moyens du rendement.....	181
Figure 92 : Consommation (en %) des différentes étapes du procédé d'après la simulation de l'essai TFT3.	182
Figure 93 : Energie consommée par le solide et par l'installation en fonction du rendement calculé par le modèle.	183
Figure 94 : Influence de la perte de masse sur l'aspect visuel des plaquettes de bois.	190
Figure 95 : Positionnement des biomasses brute et torréfiées sur le diagramme de Van Krevelen. Comparaison avec des résultats issus de la littérature [21,77].	192
Figure 96 : a) Creusets et porte-creusets utilisés pour la détermination des teneurs en matières volatiles et en cendres et b) exemple de four à moufle.	194

Figure 97 : Évolutions de la teneur en matières volatiles et de la teneur en cendres lors de l'augmentation de la perte de masse. Comparaison avec les résultats de la littérature [77].	195
Figure 98 : a) Influence de la perte de masse sur le pouvoir calorifique supérieur de la biomasse et b) comparaison du rendement énergétique au rendement massique de la torréfaction.	196
Figure 99 : a) Porte-échantillons, b) Dispositif A200 (ANKOM, Macedon, États-Unis) et c) schéma de principe du protocole de détermination de la teneur en fibres.....	197
Figure 100 : Teneurs en fibres des biomasses brute et torréfiées (les teneurs en fibres ont été pondérées par le rendement massique de la torréfaction)... ..	199
Figure 101 : Évolution de la teneur en hémicellulose avec la perte de masse lors de la torréfaction.	200
Figure 102 : Représentation schématique de l'installation de mesure de DVS.	202
Figure 103 : Isothermes d'adsorption de la vapeur d'eau pour la biomasse brute et les trois biomasses torréfiées.	203
Figure 104 : Cycles adsorption-désorption de deux échantillons de bois torréfié et un échantillon de bois brut.	204
Figure 105 : Évolution de l'hystérésis en fonction de l'humidité relative pour deux échantillons de bois torréfié et pour le bois brut.	205
Figure 106 : Comparaison des résultats expérimentaux d'adsorption de vapeur d'eau avec les résultats des modèles pour le bois brut et le bois torréfié.	207
Figure 107 : Tracé des résidus en fonction de l'humidité d'équilibre mesurée.	208
Figure 108 : a) Installation de mesure de l'énergie de broyage constituée d'un broyeur à couteaux (à gauche) alimenté par un convoyeur à bande (à droite) et d'un wattmètre (non photographié) et b) détail du rotor de broyage.....	209
Figure 109 : Comparaison des signaux bruts et corrigés obtenus lors de la mesure d'énergie de broyage suivant les méthodes à faible et à forte puissances.	211
Figure 110 : Évolution de l'énergie nécessaire au broyage de la biomasse torréfiée en fonction de la perte de masse lors de la torréfaction.....	213
Figure 111 : Influence de l'humidité sur l'énergie de broyage de la biomasse brute.	214
Figure 112 : Représentation simultanée de l'impact de l'humidité et de la perte de masse sur l'énergie de broyage.....	215
Figure 113 : a) Échantillonneur à rifles et b) dépôt de particules fines dans le bac de récupération du broyeur.	217
Figure 114 : Influence de la perte de masse lors de la torréfaction sur la granulométrie du broyat. a) Distribution granulométrique et b) distribution granulométrique cumulée.	218

Figure 115 : Influence de l'humidité et de la perte de masse lors de la torréfaction sur la surface créée pendant l'étape de broyage.	220
Figure 116 : Évolution de l'énergie de broyage avec l'humidité de la biomasse brute et la perte de masse de la biomasse torréfiée.....	221
Figure 117 : Évolution de la constante de Von Rittinger avec l'humidité des plaquettes brutes et la perte de masse des plaquettes torréfiées.	222
Figure A.1 : Évolution du nombre de pyrolyse avec la température de torréfaction.	252
Figure A.2 : Évolution du nombre de pyrolyse avec la taille caractéristique des particules.	253
Figure A.3 : Représentation schématique des flux de matière et du flux de chaleur paroi-solide.....	254

Liste des tableaux

Tableau 1 : Réactions prises en compte dans le modèle d’Ance-Couce et al. (d’après [52]).	36
Tableau 2 : Les modèles cinétiques globaux les plus utilisés (d’après [56,57]).	37
Tableau 3 : Synthèse des chaleurs de torréfaction disponibles dans la littérature.	43
Tableau 4 : Synthèse des études sur la broyabilité du bois torréfié.	49
Tableau 5 : Propriétés de la biomasse brute et leurs effets sur le procédé de cocombustion. Mise en parallèle avec les propriétés de la biomasse torréfiée.	52
Tableau 6 : Présentation des principales technologies de torréfaction et leurs propriétés (d’après [9,124,125]).	55
Tableau 7 : Études à l’échelle pilote continu publiées.	56
Tableau 8 : Modes d’écoulement en four tournant (d’après [131]).	59
Tableau 9 : Caractéristiques dimensionnelles de la coquille chauffante (en m).	84
Tableau 10 : Caractéristiques des plaquettes de hêtre utilisées pour les expériences.	94
Tableau 11 : Résultats expérimentaux des essais de DTS et principaux résultats des modèles classiques.	106
Tableau 12 : Comparaison des résultats de DTS avec du bois brut et du bois torréfié.	111
Tableau 13 : Coefficients utilisés pour le calcul de la capacité thermique du diazote.	121
Tableau 14 : Coefficients utilisés pour le calcul de la conductivité thermique et de la viscosité dynamique du diazote.	121
Tableau 15 : Propriétés des différents éléments étudiés et valeurs utilisées pour les simulations.	121
Tableau 16 : Conditions opératoires des essais de chauffe de plaquettes sèches.	123
Tableau 17 : Paramètres des essais de séchage en four tournant.	134
Tableau 18 : Constantes de l’Équation 81.	138
Tableau 19 : Paramètres des essais ATG.	143
Tableau 20 : Paramètres cinétiques obtenus lors des trois identifications paramétriques.	148
Tableau 21 : Écarts absolus moyens et maximaux entre les résultats expérimentaux et les résultats du modèle pour les deux jeux de paramètres déterminés.	150
Tableau 22 : Résumé des équations constitutives du modèle de torréfaction en four tournant.	161
Tableau 23 : Composition massique des matières volatiles produites lors de la torréfaction (en %).	162

Tableau 24 : Coefficients utilisés pour le calcul des propriétés des matières volatiles [176].	163
Tableau 25 : Paramètres opératoires des essais de torréfaction en four tournant (TFT) et principaux résultats obtenus (rendement massique η , température mesurée maximale T_{\max} et numéro du thermocouple TC_{\max} ayant mesuré T_{\max}).	165
Tableau 26 : Composition élémentaire, composition immédiate et PCS de la biomasse brute et des biomasses torréfiées.	191
Tableau 27 : Paramètres des modèles d'adsorption obtenus après ajustement.....	207
Tableau 28 : Énergies de broyage obtenues par les deux méthodes expérimentales avec du bois brut et du bois torréfié.	212
Tableau A.1 : Paramètres de l'étude de temps caractéristiques.....	252

Doctorat de l'Université de Toulouse
Délivré par l'École des Mines d'Albi-Carmaux, conjointement avec l'INP Toulouse
École doctorale MEGeP
Spécialité Énergétique et Transferts
Laboratoire RAPSODEE
Soutenue le 02 décembre 2014
Baptiste COLIN

Modélisation de la torréfaction de plaquettes de bois en four tournant et validation expérimentale à l'échelle d'un pilote continu de laboratoire

Résumé :

La torréfaction est un traitement thermique à basse température (250 à 300 °C) en atmosphère inerte qui permet de modifier les propriétés de la biomasse. La biomasse torréfiée est alors plus dense énergétiquement, plus hydrophobe et plus fragile. Dans cette étude, un modèle numérique de torréfaction en four tournant à une dimension a été développé. Le transport des plaquettes de bois, les transferts thermiques, le séchage ainsi que les cinétiques de torréfaction ont été modélisés séparément. Après confrontation aux résultats expérimentaux, ces différents sous-modèles ont été assemblés dans un modèle global. Le modèle prédit alors l'évolution de la température et de la perte de masse des plaquettes le long du four. Les résultats numériques montrent une adéquation satisfaisante avec les valeurs obtenues lors d'expériences de torréfaction sur un four tournant pilote. Les solides torréfiés ont été analysés et leurs propriétés ont été corrélées à la perte de masse. Il a en particulier été démontré que l'énergie de broyage de la biomasse torréfiée était fortement réduite.

Mots clés : Biomasse, Torréfaction, Caractéristique de séchage, Cinétique, Distribution des temps de séjour, Broyabilité.

Modelling of wood chips torrefaction in a rotary kiln and experimental validation in a continuous pilot-scale rotary kiln

Abstract :

Torrefaction is a thermal treatment at low temperature (250-300°C) used to improve biomass properties. Torrefied biomass has a higher energy density, it is more hydrophobic and more brittle. In this study, a one-dimensional numerical model of torrefaction in a rotary kiln has been developed. The wood chips flow, the thermal transfers, the drying step and the torrefaction kinetics have been modelled separately. These submodels have been experimentally validated before being implemented together. The model can thus predict the temperature and the mass loss of wood chips along the kiln. These results are in good agreement with values obtained during torrefaction experiments in the pilot-scale rotary kiln. In parallel, torrefied biomass has been analysed in terms of composition, heating value and structural properties with emphasis on the decrease of grinding energy consumption.

Keywords : Biomass, Torrefaction, Drying characteristics, Kinetics, Residence time distribution, Grindability.