



HAL
open science

Gazéification en lit fixe co-courant : Etude des transitoires

Janett Bianca Ruiz Sanchez

► **To cite this version:**

Janett Bianca Ruiz Sanchez. Gazéification en lit fixe co-courant : Etude des transitoires. Environnement et Société. INSA de Lyon, 2023. Français. NNT : 2023ISAL0083 . tel-04690885

HAL Id: tel-04690885

<https://theses.hal.science/tel-04690885v1>

Submitted on 6 Sep 2024

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.



N°d'ordre NNT : 2023ISAL0083

**THESE de DOCTORAT DE L'INSA LYON,
membre de l'Université de Lyon**

**Ecole Doctorale N° 162
Mécanique, Energétique, Génie civil, Acoustique**

Spécialité : Thermique et Energétique

Soutenue publiquement le 24/10/2024, par :
Janett RUIZ

**Gazéification en lit fixe co-courant :
étude des transitoires**

Devant le jury composé de :

BOUALLOU, Chakib	Professeur	MINES Paris-PSL	Rapporteur
VAN DE STEENE, Laurent	Habilité à Diriger de Recherches	CIRAD	Rapporteur
FERRASSE, Jean-Henry	Professeur des Universités	Aix-Marseille Université	Président
VALIN, Sylvie	Docteur	CEA	Examinatrice
CLAUSSE, Marc	Professeur des Universités	INSA-LYON	Directeur de thèse
DUCOM, Gaëlle	Maître des conférences	INSA-LYON	Co-directeur de thèse

Département FEDORA – INSA Lyon - Ecoles Doctorales

SIGLE	ECOLE DOCTORALE	NOM ET COORDONNEES DU RESPONSABLE
CHIMIE	CHIMIE DE LYON https://www.edchimie-lyon.fr Sec. : Renée EL MELHEM Bât. Blaise PASCAL, 3e étage secretariat@edchimie-lyon.fr	M. Stéphane DANIELE C2P2-CPE LYON-UMR 5265 Bâtiment F308, BP 2077 43 Boulevard du 11 novembre 1918 69616 Villeurbanne directeur@edchimie-lyon.fr
E.E.A.	ÉLECTRONIQUE, ÉLECTROTECHNIQUE, AUTOMATIQUE https://edeea.universite-lyon.fr Sec. : Stéphanie CAUVIN Bâtiment Direction INSA Lyon Tél : 04.72.43.71.70 secretariat.edeea@insa-lyon.fr	M. Philippe DELACHARTRE INSA LYON Laboratoire CREATIS Bâtiment Blaise Pascal, 7 avenue Jean Capelle 69621 Villeurbanne CEDEX Tél : 04.72.43.88.63 philippe.delachartre@insa-lyon.fr
E2M2	ÉVOLUTION, ÉCOSYSTÈME, MICROBIOLOGIE, MODÉLISATION http://e2m2.universite-lyon.fr Sec. : Bénédicte LANZA Bât. Atrium, UCB Lyon 1 Tél : 04.72.44.83.62 secretariat.e2m2@univ-lyon1.fr	Mme Sandrine CHARLES Université Claude Bernard Lyon 1 UFR Biosciences Bâtiment Mendel 43, boulevard du 11 Novembre 1918 69622 Villeurbanne CEDEX sandrine.charles@univ-lyon1.fr
EDISS	INTERDISCIPLINAIRE SCIENCES-SANTÉ http://ediss.universite-lyon.fr Sec. : Bénédicte LANZA Bât. Atrium, UCB Lyon 1 Tél : 04.72.44.83.62 secretariat.ediss@univ-lyon1.fr	Mme Sylvie RICARD-BLUM Institut de Chimie et Biochimie Moléculaires et Supramoléculaires (ICBMS) - UMR 5246 CNRS - Université Lyon 1 Bâtiment Raulin - 2ème étage Nord 43 Boulevard du 11 novembre 1918 69622 Villeurbanne Cedex Tél : +33(0)4 72 44 82 32 sylvie.ricard-blum@univ-lyon1.fr
INFOMATHS	INFORMATIQUE ET MATHÉMATIQUES http://edinfomaths.universite-lyon.fr Sec. : Renée EL MELHEM Bât. Blaise PASCAL, 3e étage Tél : 04.72.43.80.46 infomaths@univ-lyon1.fr	M. Hamamache KHEDDOUCI Université Claude Bernard Lyon 1 Bât. Nautibus 43, Boulevard du 11 novembre 1918 69 622 Villeurbanne Cedex France Tél : 04.72.44.83.69 hamamache.kheddouci@univ-lyon1.fr
Matériaux	MATÉRIAUX DE LYON http://ed34.universite-lyon.fr Sec. : Yann DE ORDENANA Tél : 04.72.18.62.44 yann.de-ordenana@ec-lyon.fr	M. Stéphane BENAYOUN Ecole Centrale de Lyon Laboratoire LTDS 36 avenue Guy de Collongue 69134 Ecully CEDEX Tél : 04.72.18.64.37 stephane.benayoun@ec-lyon.fr
MEGA	MÉCANIQUE, ÉNERGÉTIQUE, GÉNIE CIVIL, ACOUSTIQUE http://edmega.universite-lyon.fr Sec. : Stéphanie CAUVIN Tél : 04.72.43.71.70 Bâtiment Direction INSA Lyon mega@insa-lyon.fr	M. Jocelyn BONJOUR INSA Lyon Laboratoire CETHIL Bâtiment Sadi-Carnot 9, rue de la Physique 69621 Villeurbanne CEDEX jocelyn.bonjour@insa-lyon.fr
ScSo	ScSo* https://edsciencesociales.universite-lyon.fr Sec. : Mélina FAVETON INSA : J.Y. TOUSSAINT Tél : 04.78.69.77.79 melina.faveton@univ-lyon2.fr	M. Bruno MILLY Université Lumière Lyon 2 86 Rue Pasteur 69365 Lyon CEDEX 07 bruno.milly@univ-lyon2.fr

*ScSo : Histoire, Géographie, Aménagement, Urbanisme, Archéologie, Science politique, Sociologie, Anthropologie

Remerciements

Tout d'abord, je tiens à exprimer ma gratitude envers mes encadrants de thèse, Gaëlle Ducom et Marc Clausse. Je vous suis reconnaissante pour la confiance accordée m'ayant permis de participer à ce projet pionnier pour l'établissement. Votre patience, disponibilité et engagement m'ont été d'un soutien inestimable pour surmonter les défis rencontrés. Je vous remercie pour votre dévouement sans faille, pour m'avoir aidé à persévérer dans les moments les plus difficiles.

Je souhaite également remercier M. Van de Steene et M. Bouallou d'avoir accepté de rapporter ma thèse, ainsi qu'à M. Ferrase pour avoir présidé mon jury de thèse. J'ai grandement apprécié les discussions scientifiques qui ont suivi ma présentation et qui m'ont permis de prendre du recul sur mon travail. Sylvie, je te remercie d'avoir examiné ce travail ; je suis très heureuse que tu as pu faire partie du jury et j'espère sincèrement que nos chemins se recroiseront.

Cette thèse fait partie du projet de recherche ECoGaz. Je tiens à remercier la Région Auvergne-Rhône-Alpes pour son soutien financier ainsi que le personnel de PROVADEMSE pour l'organisation et la réalisation de la campagne expérimentale de gazéification.

Je suis reconnaissante envers les chercheurs et les doctorants du laboratoire DEEP pour ces années partagées. Je pense particulièrement à Mathieu Gautier, Vincent Chatain, Hassen Benbelkacem et Gislain Lipeme Kouyi pour leurs conversations enrichissantes et leurs précieux conseils. Je souhaite également exprimer ma gratitude à mes collègues de bureau, Amine et Noémie. Ce fut un plaisir de partager non seulement le bureau, mais aussi les hauts et les bas de cette période avec vous. Je remercie également Violeta pour sa bonne humeur.

Depuis mon stage en 2017, le CETHIL m'a permis de nouer des relations qui ont fait de Lyon ma deuxième maison. Un grand merci à toi Mathilde avec qui j'ai commencé cette aventure, pour m'avoir accueillie dans ton bureau et ta maison, pour ton aide lors des nombreuses répétitions de présentations, pour ta patience et ton amitié. Merci Christophe pour m'avoir emmenée au salon du chiot et pour m'avoir préparé de si bons petits plats à de nombreuses occasions. Merci à Damien, mon support COMSOL non-officiel et mon soutien officiel dans des moments difficiles. Vero, gracias por esta amistad tan entrañable que me has ofrecido, por todas las llamadas, videollamadas y mensajes de apoyo. Elo et Julie, merci pour tous les moments géniaux que nous avons partagés ensemble : des weekends « sportifs », des voyages, des expos, des restaurants... et surtout les bars !

Enfin, je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance envers mon plus grand soutien pendant ces années, David. Merci pour tous les bons moments que nous avons partagés, et surtout pour ton soutien inconditionnel. Les soirées et les week-ends à Lyon se sont transformés en appels à l'aide depuis Paris. Sans toi, cette thèse n'aurait pas été possible.

Merci Julia. Merci de m'avoir accueillie dans ta famille pour Noël, d'être ma compagne de concerts et de voyages. Tu es toujours là pour moi, tu es une véritable soupe de sécurité qui me permet de relâcher la pression.

Je voudrais également remercier mes collègues du CRIGEN pour leur soutien et leur patience lors de la fin de cette thèse. J'ai eu la chance que cette période si difficile se déroule à vos côtés. Je remercie tous ceux qui ont contribué à la préparation de la soutenance et tous ceux qui m'ont accompagnée avec des conseils et de la bonne humeur : Mathilde Jégoux, Pierre Olivier, Maxime Hervy, Yilmaz Kara, Maxime Dufond, Laurent Baraton, Lina Maria Romero. Je tiens à remercier spécialement Fabien pour ses encouragements, pour éclaircir mes doutes, pour écouter mes plaintes maintes et maintes fois, et pour tous les verres et repas partagés durant cette période. Une mention spéciale à Oscar, je ne trouve pas les mots pour exprimer à quel point tu as été important pendant cette période où je ne voyais plus le bout du tunnel. Par respect pour le lecteur, je ne vais pas énumérer tous les délires qui nous ont accompagnés, mais nous savons qu'ils ont été bien nécessaires pour affronter ma nouvelle vie parisienne !

Para concluir, quiero expresar mi gratitud a todas las personas que me acompañaron desde el otro lado del Atlántico. Gracias a mis amigas Raque, Brenda, Rena e Ivette, por comprender mi falta de comunicación durante la tesis y por tantos años de amistad que persisten intactos a pesar de la distancia. Esta tesis no habría sido posible sin el apoyo de mi familia. A mi abuelita, tengo mucha suerte de que hayas podido acompañarme en este logro. A mi tía, a quien considero mi segunda madre, y a mis primos, que son como hermanos para mí, les doy las gracias por su constante apoyo y ánimo.

Agradezco también a mis padres, las personas más importantes en mi vida, por brindarme la oportunidad de realizar mis estudios y construir mi carrera en el extranjero. Esta tesis está dedicada especialmente a ustedes.

Résumé

La gazéification de combustibles alternatifs permet la production locale et non-intermittente d'énergie renouvelable et peut devenir une contribution majeure à la transition énergétique et à la promotion de l'économie circulaire et territoriale. Les réacteurs à lit fixe co-courant sont les mieux adaptés aux enjeux territoriaux liés à la valorisation des déchets. Dans ces réacteurs, le taux de conversion est élevé mais la conversion homogène du combustible est difficile à atteindre et représente une barrière à leur utilisation à des performances optimales. Dans ce contexte, le projet ECoGaz (valorisation Énergétique de COmbustibles alternatifs issus de déchets par GAZéification) vise à accroître les connaissances afin de développer l'utilisation de la gazéification pour la conversion de combustibles alternatifs dans ces réacteurs. Ainsi, le principal objectif de ce travail de thèse est de proposer un modèle numérique fiable de gazéification en lit fixe co-courant permettant de représenter avec justesse la conversion de combustibles complexes. Dans le modèle développé dans cette thèse, les phénomènes réactionnels fortement couplés à l'écoulement de la phase gaz et aux phénomènes de transfert thermique dans le milieu poreux sont simulés de manière satisfaisante. Le tassement a été pris en compte. Le caractère 2D du modèle permet d'observer et de comprendre des phénomènes difficiles à mesurer. Ces informations peuvent être précieuses pour comprendre certains dysfonctionnements des réacteurs à lit fixe. De plus, ce modèle pourrait être utilisé comme outil de dimensionnement du réacteur. L'influence de plusieurs paramètres opératoires pourrait être étudiée, tels que le diamètre du réacteur, la composition de l'agent oxydant, le ratio équivalent ou l'emplacement de l'injection. D'autre part, la composition du combustible et le diamètre des particules sont des paramètres d'entrée du modèle, qui permettent l'étude de différents intrants hétérogènes afin de valider la faisabilité de leur conversion dans un gazéifieur à lit fixe co-courant.

Abstract

The gasification of heterogenous fuels enables local, non-intermittent production of renewable energy and can become a major contribution to the energy transition and the promotion of circular and territorial economy. Fixed-bed downdraft reactors are best suited to local challenges of waste recovery. In these reactors, the conversion rate is high, but homogeneous fuel conversion is difficult to achieve and represents a barrier to their use at optimum performance. In this context, the ECoGaz project (valorisation Énergétique de COmbustibles alternatifs issus de déchets par GAZéification) aims to increase knowledge in order to develop

the use of gasification for the conversion of heterogenous fuels in fixed bed reactors. Thus, the main objective of this work is to propose a reliable numerical model of co-current fixed-bed gasification to accurately represent the conversion of complex fuels. In the model developed in this work, reaction phenomena strongly coupled to gas phase flow and heat and mass transfer in the porous medium are satisfactorily simulated. Bed compaction has also been included in the model. The 2D nature of the model makes it possible to observe and understand phenomena that are difficult to measure. This information can be invaluable in understanding certain reactor malfunctions. Furthermore, this model could be used as a reactor sizing tool. The influence of several operating parameters could be studied, such as reactor diameter, oxidizing agent composition, equivalent ratio or injection location. On the other hand, fuel composition and particle diameter are input parameters of the model, enabling the study of different heterogeneous inputs in order to validate the feasibility of their conversion in a co-current fixed-bed gasifier.

Table des matières

Nomenclature et abréviations.....	19
Introduction générale.....	27
Chapitre I - La gazéification de combustibles alternatifs dans la transition énergétique.....	33
I.1. Valorisation énergétique de la biomasse et des déchets : quels enjeux ?.....	33
I.1.1. La biomasse et les déchets	33
I.1.2. Part des énergies renouvelables dans le mix énergétique français.....	34
I.2. Conversion thermochimique de combustibles alternatifs	36
I.2.1. Combustion	37
I.2.2. Pyrolyse.....	38
I.2.3. Gazéification	40
I.2.4. Conclusion.....	41
I.3. Principe de la gazéification	43
I.4. Technologies de gazéification.....	44
I.4.1. Gazéification en lit fixe	45
I.4.1.1. Lit fixe co-courant.....	45
I.4.1.2. Lit fixe contre-courant.....	46
I.4.2. Gazéification en lit fluidisé	47
I.4.2.1. Lit fluidisé bouillonnant	48
I.4.2.2. Lit fluidisé circulant	49
I.4.3. Gazéification en lit entraîné	49
I.4.4. Gazéification indirecte	50
I.4.5. Technologies en développement	52
I.5. Positionnement, objectifs et enjeux de la thèse.....	53
Chapitre II - Modélisation de la gazéification en lit fixe : état de l'art.....	55
II.1. Modélisation à l'échelle du réacteur	56
II.1.1. Conservation de la matière	57
II.1.1.1. Phase gaz	57
II.1.1.2. Phase solide	57
II.1.2. Transformations thermochimiques.....	58
II.1.2.1. Séchage.....	58
II.1.2.2. Pyrolyse.....	60

II.1.2.3. Oxydation	62
II.1.2.4. Réduction	63
II.1.3. Conservation de la quantité de mouvement	63
II.1.4. Conservation de l'énergie.....	65
II.2. Modélisation à l'échelle de la particule.....	66
II.2.1. Mécanismes de conversion d'une particule poreuse	66
II.2.2. Modélisation de la conversion d'une particule	68
II.2.2.1. Modèles à cœur homogène.....	71
II.2.2.2. Modèles à cœur rétrécissant	72
II.2.2.3. Modèles semi-homogènes	74
II.2.3. Calcul de la diminution de la taille des particules.....	78
II.3. Approches pour la prise en compte du tassement	79
II.3.1. Modélisation par ralentissement de la phase solide	80
II.3.2. Modélisation par déformation du domaine de calcul	82
II.3.3. Modélisation par échange de matière entre cellules de calcul	85
II.4. Conclusion.....	87
Chapitre III - Modélisation de la gazéification de combustibles alternatifs	89
III.1. Description du modèle	89
III.1.1. Modèle réactionnel.....	90
III.1.1.1. Séchage.....	90
III.1.1.2. Pyrolyse.....	90
III.1.1.3. Oxydation et réduction	92
III.1.2. Bilans de matière	98
III.1.2.1. Bilans de matière en phase solide	98
III.1.2.2. Bilans de matière en phase gaz	98
III.1.3. Bilan de quantité de mouvement.....	99
III.1.4. Bilans thermiques.....	100
III.1.4.1. Bilan thermique de la phase solide.....	100
III.1.4.2. Bilan thermique de la phase gazeuse.....	102
III.1.5. Tassement du lit	103
III.2. Simulation numérique	103
III.2.1. Description des essais expérimentaux de la thèse de Barrio [36]	104
III.2.2. Influence de la géométrie et maillage	105

III.2.3. Conditions initiales et aux limites	106
III.2.4. Hypothèses simplificatrices entre l'expérience et la modélisation	108
III.3. Validation du modèle et analyse des résultats.....	109
III.3.1. Profils dynamiques de températures	110
III.3.2. Comparaison des profils de températures	114
III.3.3. Analyse des grandeurs dynamiques	119
III.3.3.1. Température des phases solide et gazeuse	119
III.3.3.2. Concentrations massiques des espèces solides.....	120
III.3.3.3. Fractions molaires des espèces gazeuses	123
III.3.3.4. Vitesse du gaz et perte de charge	128
III.3.4. Caractérisation des gradients radiaux.....	130
III.4. Conclusion.....	133
Chapitre IV. Etude de l'influence du diamètre de particule sur la dynamique de la gazéification	135
IV.1. Analyse de l'influence du diamètre initial de la particule sur la dynamique de la gazéification	140
IV.1.1. Profils de température des phases solide et gazeuse	141
IV.1.2. Conversion des particules.....	144
IV.1.3. Evolution de la concentration massique de la biomasse et du char	147
IV.2. Conclusion.....	149
Conclusion générale	151
Bibliographie.....	155
Annexes.....	163

Liste des figures

Figure I-1. Consommation d'énergie primaire par type d'énergie en France en 2020 (données corrigées des variations climatiques)[16]. Source : calculs Service des données et études statistiques	35
Figure I-2. Production primaire d'énergies renouvelables par filière en France en 2020 [16]. Source : calculs Service des données et études statistiques. IAA = industries agroalimentaires	35
Figure I-3. Filières de valorisation de combustibles alternatifs d'après [17].....	37
Figure I-4. Flux de matière et d'énergie de la combustion	37
Figure I-5. Flux de matière et d'énergie de la pyrolyse	39
Figure I-6. Flux de matière et d'énergie de la gazéification directe	40
Figure I-7. Etapes de conversion thermochimique lors de la gazéification	44
Figure I-8. Classification des technologies et leur gamme de performance	45
Figure I-9. Gazéifieur à lit fixe à co-courant.....	46
Figure I-10. Gazéifieur à lit fixe à contre-courant	47
Figure I-11. Gazéifieur à lit fluidisé bouillonnant.....	48
Figure I-12. Gazéifieur à lit fluidisé circulant.....	49
Figure I-13. Gazéifieur à lit entraîné.....	50
Figure I-14. Gazéification indirecte à deux étages.....	51
Figure I-15. Principe de gazéification étagée d'après [44]	53
Figure II-1. Représentation des différentes échelles de modélisation de la gazéification	55
Figure II-2. Séchage d'une particule solide	58
Figure II-3. Pyrolyse d'une particule solide	60
Figure II-4. Schéma réactionnel de pyrolyse avec réactions compétitives	61
Figure II-5. Schéma réactionnel de pyrolyse avec réaction de craquage	62
Figure II-6. Modes de transferts thermiques en lit fixe d'après [80]	65
Figure II-7. Mécanismes de conversion d'une particule poreuse	67
Figure II-8. Théorie des 3 zones.....	68
Figure II-9. Conversion d'une particule sous un régime chimique, d'après [83]	72
Figure II-10. Conversion d'une particule sous un régime diffusif externe, d'après [83].....	73
Figure II-11. Conversion d'une particule incluant la formation d'une couche de cendres	74
Figure II-12. Conversion d'une particule sous un régime diffusif interne.....	75
Figure II-13. Conversion d'une particule avec gradients de température, d'après [91].....	77

Figure II-14. Modélisation du tassement à partir de la vitesse d'écoulement du solide.....	82
Figure II-15. Tassement du lit par déformation du maillage, d'après [95]	84
Figure II-16. Tassement du lit par échange de matière entre mailles, d'après [93]	86
Figure III-1. Schéma réactionnel de pyrolyse adopté	90
Figure III-2. Schéma du dispositif expérimental.....	104
Figure III-3. Représentation du domaine de calcul	107
Figure III-4. Profils dynamiques modélisés (à gauche) et expérimentaux (à droite) dans [96].	110
Figure III-5. Profils de températures dynamiques expérimentaux et modélisés	111
Figure III-6. Profils de températures adimensionnalisés T1, T2, T3, T4.....	116
Figure III-7. Profils de températures adimensionnalisés T5, T6, T7	117
Figure III-8. Oscillations de la température T5 et des pourcentages molaires de CO ₂ et d'O ₂ lors de l'étape d'ignition	118
Figure III-9. Profil dynamique axial des températures des phases solide et gazeuse	119
Figure III-10. Profil dynamique axial de la concentration en humidité du combustible	120
Figure III-11. Profil dynamique axial des concentrations du char et de la biomasse sèche dans la phase solide	121
Figure III-12. Profil dynamique axial du diamètre des particules.....	122
Figure III-13. Profil axial dynamique du pourcentage molaire d'O ₂	123
Figure III-14. Profil axial dynamique du pourcentage molaire du CO ₂	124
Figure III-15. Profil axial dynamique du pourcentage molaire du CO	125
Figure III-16. Profil axial dynamique du pourcentage molaire d'H ₂	126
Figure III-17. Profil axial dynamique du pourcentage molaire du CH ₄	127
Figure III-18. Profil axial dynamique du pourcentage molaire des goudrons (tar).....	127
Figure III-19. Profil axial dynamique du pourcentage molaire d'H ₂ O	128
Figure III-20. Profil axial dynamique de la vitesse du gaz	129
Figure III-21. Profil axial dynamique de la pression	130
Figure III-22. Distribution radiale de la température à 1000 secondes (gauche) et 2000 secondes (droite).....	131
Figure III-23. Distribution radiale de la température, de la taille des particules et du pourcentage molaire d'oxygène (1000 secondes).....	132
Figure III-24. Distribution radiale de la température, de la taille des particules et du pourcentage molaire d'oxygène (2000 secondes).....	133
Figure IV-1. Évolution de la température solide et gaz pour un diamètre initial de 10 mm..	135

Figure IV-2. Pourcentages molaires des espèces gazeuses à 2000 secondes pour un diamètre initial de 10 mm.....	136
Figure IV-3. Pourcentages molaires des espèces gazeuses à 3000 secondes pour un diamètre initial de 10 mm.....	137
Figure IV-4. Concentration massique des espèces solides et diamètre des particules pour un diamètre initial de 10 mm.....	138
Figure IV-5. Température des phases solide et gazeuse, concentrations massiques des espèces solides et diamètre des particules pour un diamètre initial de 15 mm (1500 secondes)	140
Figure IV-6. Profil axial dynamique de la température du gaz et du solide pour un diamètre initial de particules de 6,9 mm	141
Figure IV-7. Profil axial dynamique de la température du gaz et du solide pour un diamètre initial de particules de 10 mm	142
Figure IV-8. Profil axial dynamique de la température du gaz et du solide pour un diamètre initial de particules de 15 mm	143
Figure IV-9. Influence de la taille initiale de la particule sur la température de la phase solide et gazeuse dans [67]	144
Figure IV-10. Profil axial dynamique du diamètre des particules pour un diamètre initial de 6,9 mm.....	145
Figure IV-11. Profil axial dynamique du diamètre des particules pour un diamètre initial de 10 mm.....	146
Figure IV-12. Profil axial dynamique du diamètre des particules pour un diamètre initial de 15 mm.....	146
Figure IV-13. Concentration massique des espèces solides pour une diamètre initial de 6,9 mm	147
Figure IV-14. Concentration massique des espèces solides pour une diamètre initial de 10 mm	148
Figure IV-15. Concentration massique des espèces solides pour une diamètre initial de 15 mm	149

Liste des tableaux

Tableau II-1. Équations exprimant le diamètre ou le volume instantané des particules	78
Tableau III-1. Coefficients stœchiométriques de la réaction de pyrolyse	92
Tableau III-2. Cinétiques des réactions dans la phase solide	96
Tableau III-3. Cinétiques des réactions homogènes	97
Tableau III-4. Caractéristiques du combustible gazéifié [36]	105
Tableau III-5. Conditions initiales	106
Tableau III-6. Conditions aux limites	107
Tableau III-7. Ecart relatif et absolu de la vitesse du front expérimentale et modélisée	112

Nomenclature et abréviations

Symbole	Unité	Nom
A_{b3}	m^2	Surface extérieure de la particule
A_j	Unité fonction de l'ordre de la réaction	Facteur pré-exponentiel de la loi d'Arrhenius, également appelé facteur de fréquence
A_p	$m^2 \cdot m^{-3}$	Rapport surface sur volume de la particule
A_{pv}	s^{-1}	Facteur pré-exponentiel dans une réaction de pyrolyse
A_s	m^2	Surface d'échange du solide (de la particule)
b	—	Constante de décroissance de la macroporosité lorsque la distance à la paroi augmente
Bi	—	Nombre de Biot
CF	—	Coefficient de Forchheimer
$C_{c,f}$	$mol \cdot m^{-3}$	Concentration de char dans le combustible initial
C_i	$mol \cdot m^{-3}$	Concentration d'une espèce gazeuse i
$C_{m,s}$	$kg_{eau} \cdot m^{-3}$	Concentration en eau à la surface du solide
$C_{m,g}$	$kg_{eau} \cdot m^{-3}$	Concentration en eau en phase gaz
$C_n H_m O_p$	-	Composition élémentaire initiale du combustible
C_p	$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$	Capacité thermique massique
$C_6 H_{6,2} O_{0,2}$	-	Goudrons
CH_4	-	Méthane
CO	-	Monoxyde de carbone
CO_2	-	Dioxyde de carbone
d_e	m	Diamètre équivalent
D_i	$m^2 \cdot s^{-1}$	Coefficient de diffusion du gaz i
$D_i^0(T_0)$	$m^2 \cdot s^{-1}$	Coefficient de diffusion du gaz i à la température normale $T_0 = 273,15 K$ et à la pression normale (1 atm)

d_p	m	Diamètre de la particule
Dr	m	Diamètre du réacteur
d_{sph}	m	Diamètre d'une sphère
d_u	m	Diamètre du cœur réactif de la particule
E_j	$J.mol^{-1}$	Énergie d'activation d'une réaction j
f	-	Facteur de forme
FRC	-	Facteur de réactivité du char
h	$W.m^{-2}.K^{-1}$	Coefficient de transfert de chaleur convectif
h_{nt}	$W.m^{-2}.K^{-1}$	Coefficient global de transfert thermique
H_2	-	Hydrogène
H_2O	-	Vapeur d'eau
ΔH_j	$kJ.kg^{-1}$	Variation d'enthalpie massique d'une réaction j
ΔH_{evap}	$J.kg^{-1}$	Enthalpie d'évaporation de l'eau
j	$kg.m^{-2}.s^{-1}$	Terme de transport par diffusion
k_d	s^{-1}	Constante de vitesse de la réaction de séchage
k_{eff}	$m.s^{-1}$	Coefficient de transfert de matière dans la couche de cendres
k_j	Unité fonction de l'ordre de la réaction	Constante de vitesse
k_j'	Unité fonction de l'ordre de la réaction	Constante de vitesse corrigée par le Facteur de réactivité du char
k_m	$m.s^{-1}$	Coefficient de transfert de matière
k_m^*	$m.s^{-1}$	Valeur maximale du coefficient de transfert de matière
L_{col}	m	Longueur caractéristique d'effondrement
m	kg	Masse
M	$kg.mol^{-1}$	Masse molaire
m_t	kg	Masse du char à un instant t

N_{air}	$kg.m^{-2}.s^{-1}$	Flux d'air calculé à partir du débit d'air et la section d'entrée d'air
Nu	—	Nombre de Nusselt
N_2	—	Azote
O_2	—	Oxygène
P	Pa	Pression
Pr	—	Nombre de Prandtl
Q	$W.m^{-3}$	Puissance thermique par unité de volume
r	m	Coordonnée selon l'axe radial
\tilde{R}_j	$kg.m^{-3}.s^{-1}$	Vitesse de réaction par volume de solide
\bar{R}_j	$kg.m^{-3}.s^{-1}$	Vitesse de réaction par volume de lit
R_j	$mol.m^{-3}.s^{-1}$	Vitesse de réaction par volume de lit
r_{b2}	$kg.s^{-1}$	Vitesse de pyrolyse du combustible sec
r_c	$kg.s^{-1}$	Vitesse d'oxydation du char
R_d	$kg.m^{-3}.s^{-1}$	Vitesse de séchage
R_{cchar}	$mol_{char}.m_s^{-3}.s^{-1}$	Somme des cinétiques des réactions hétérogènes
$r_{eff,j}$	$kg_{char}.s^{-1}$	Vitesse apparente de consommation du char
$R_{eff,j}$	$mol_{char}.m^{-3}.s^{-1}$ ou $kg_{char}.m^{-3}.s^{-1}$	Vitesse apparente d'une réaction j consommant du char
R_{evap}	$kg_{eau}.s^{-1}$	Vitesse de séchage
Re	—	Nombre de Reynolds
R_g	$J.mol^{-1}.K^{-1}$	Constante des gaz parfaits
$R_{app,i}$	—	Réactivité apparente du char
R_p	$kg.m^{-3}.s^{-1}$	Vitesse de la réaction de pyrolyse
S_{air}	m^2	Section d'entrée d'air
Sc	—	Nombre de Schmidt
Sh	—	Nombre de Sherwood
S_p	m^2	Surface de la particule

S_r	m^2	Surface réactive disponible pour les réactions
S_R	m^2	Section du réacteur
S_{Ri}	$kg.m^{-3}.s^{-1}$	Terme source de l'espèce i gazeuse
S_{si}	$kg.m^{-3}.s^{-1}$	Terme source de l'espèce i solide
S_x	$W.m^{-3}$	Terme source des bilans d'énergie
t	s	Temps
T	K	Température
T_{ass}	—	Tassement
U	$m.s^{-1}$	Vitesse
V	m^3	Volume
VFF	$m.s^{-1}$	Vitesse du front de réaction
ΔV_{col}	—	Tassement dû à l'effondrement
W	$kg.s^{-1}$	Débit massique
Y_i	—	Fraction massique de l'espèce i
X	—	Taux de conversion
x_C	—	Fraction massique de char produit pendant la réaction de pyrolyse
X_i	—	Fraction molaire de l'espèce i
X_p	—	Taux de conversion par pyrolyse
z	m	Coordonnée verticale du domaine

Symbole grec	Unité	Nom
β	—	Coefficient de l'effet de forme de la particule en conduction
γ	—	Fraction de char
δ_{shr}	—	Fraction du tassement attribuée à des mouvements continus

ε_b	—	Macroporosité
ε_∞	—	Porosité du lit loin de la paroi
ε	—	Emissivité
η_{col}	—	Nombre d'effondrements
θ	—	Fraction de solide
κ	m^2	Perméabilité du lit
λ	—	Ratio équivalent
λ	$W.m^{-1}.K^{-1}$	Conductivité thermique
λ^*	$W.m^{-1}.K^{-1}$	Conductivité thermique effective
λ_r	$W.m^{-2}.K^{-1}$	Contribution radiative
μ	$Pa.s$	Viscosité dynamique
μ_ε	—	Valeur moyenne de la macroporosité
ν	$mol_i.mol_f^{-1}$	Coefficient stœchiométrique
ρ	$kg.m^{-3}$	Masse volumique d'un solide
ρ	$kg.m_{gaz}^{-3}$	Concentration massique d'une espèce gazeuse
$\tilde{\rho}$	$kg.m_{solide}^{-3}$	Concentration massique d'une espèce solide
$\bar{\rho}$	$kg.m_{gaz}^{-3}$	Masse volumique du gaz
$\hat{\rho}$	$kg.m_{lit}^{-3}$	Masse volumique apparente d'un solide
σ	$W.m^{-2}.K^{-4}$	Constante de Stefan-Boltzmann
σ_ε	—	Écart-type de la macroporosité
τ	m	Hauteur de contraction du domaine de calcul
ν_c	$mol_{char}.mol_{oxydant}^{-1}$	Coefficient stœchiométrique des molécules de char consommées par la réaction
\emptyset	—	Facteur de sphéricité
χ	—	Teneur en cendres du combustible
ω	—	Fraction massique

Indice	Nom
0	Initial
∞	Ambient
<i>ac</i>	Après effondrement
<i>adim</i>	Adimensionnel
<i>air</i>	Air
<i>ash</i>	Cendres
<i>b</i>	Lit
<i>c</i>	Char
<i>c1</i>	Combustion du char
<i>c2</i>	Combustion des goudrons
<i>c3</i>	Combustion du méthane
<i>c4</i>	Combustion du monoxyde de carbone
<i>c5</i>	Combustion de l'hydrogène
<i>col</i>	Critique
<i>d</i>	Relatif au séchage
<i>e</i>	Entrée
<i>evap</i>	Évaporation
<i>f</i>	Combustible
<i>g</i>	Gaz
<i>g1</i>	Gazéification au dioxyde de carbone
<i>g2</i>	Gazéification à l'hydrogène
<i>g3</i>	Gazéification à la vapeur d'eau
<i>g4</i>	Reformage de méthane
<i>g5</i>	Reformage des goudrons
<i>i</i>	Espèce i
<i>init</i>	Initial
<i>j</i>	Réaction j

<i>m</i>	Humidité, eau
<i>m</i>	Nombre d'atomes d'hydrogène dans le combustible
<i>max</i>	Maximum / saturation
<i>min</i>	Minimum
<i>n</i>	Nombre d'atomes de carbone dans le combustible
<i>p</i>	Nombre d'atomes d'oxygène dans le combustible
<i>p</i>	Particule
<i>p1</i>	Pyrolyse du combustible en gaz
<i>p2</i>	Pyrolyse du combustible en goudrons
<i>p3</i>	Pyrolyse du combustible en char
<i>s</i>	Solide
<i>sg</i>	Entre gaz et solide
<i>shr</i>	Relatif au tassement
<i>tr</i>	glissement
<i>x</i>	Phase
<i>w</i> ou <i>wall</i>	Paroi
<i>wgs</i>	Réaction du gaz à l'eau

Introduction générale

La convention cadre des nations unies sur les changements climatiques (CCNUCC) définit les changements climatiques d'origine anthropique comme « les changements de climat qui sont attribués directement ou indirectement à une activité humaine altérant la composition de l'atmosphère mondiale et qui viennent s'ajouter à la variabilité naturelle du climat observée au cours de périodes comparables » [1].

Les principaux gaz à effet de serre (GES) liés aux activités humaines sont le dioxyde de carbone (CO_2), le méthane (CH_4), le protoxyde d'azote (N_2O) et des gaz fluorés. Or, les concentrations de CO_2 , CH_4 et N_2O dans l'atmosphère sont en constante augmentation depuis 1850 (ère industrielle) [2],[3]. D'après le groupe inter-gouvernemental d'experts sur l'évolution du climat (GIEC) [4], il est sans équivoque que cette augmentation est le résultat des activités humaines. Elle se traduit par un réchauffement global de la planète. En effet, les émissions de GES d'origine anthropique renforcent l'effet de serre naturel en modifiant les propriétés radiatives de l'atmosphère, ce qui entraîne un réchauffement de l'ensemble du système climatique terrestre.

Selon les dernières estimations du GIEC, pour la décennie 2011-2020, l'augmentation de la température à la surface du globe par rapport à 1850-1900 est de l'ordre de 1,09 °C. Le seuil de 1,5 °C (pour une période de 20 ans) devrait probablement être franchi au début des années 2030. De plus, c'est désormais un fait établi que les émissions de GES anthropiques ont conduit à une augmentation de la fréquence et/ou de l'intensité de certains phénomènes météorologiques et climatiques extrêmes depuis 1850, en particulier les extrêmes de températures tels que les canicules et, avec divers niveaux de probabilités, les fortes précipitations, les sécheresses et les cyclones tropicaux [4],[3]. D'autres phénomènes sont observés tels que le recul global des glaciers, l'élévation du niveau moyen global de la mer, l'acidification des océans ou des modifications importantes des écosystèmes.

Pour lutter contre ce changement climatique, plusieurs conventions ou accords internationaux visant à la réduction des GES ont été adoptés. Parmi ceux-ci, il est possible de citer la CCNUCC adoptée suite au Sommet de la Terre de Rio en 1992, le protocole de Kyoto (1997) et l'accord de Paris adopté par 195 nations lors de la conférence des parties COP21 à Paris le 12 décembre 2015. L'accord de Paris a pour principal objectif de limiter à 2 °C l'élévation de la température moyenne de la planète par rapport aux niveaux préindustriels, tout en poursuivant l'action menée pour la limiter à 1,5 °C [5].

La prise de conscience à l'échelle de l'Union Européenne (UE) s'est manifestée par le plan d'action « paquet climat-énergie » ou « plan climat » adopté en 2008 et révisé en 2014. Plus récemment, le « European Green Deal » (pacte vert pour l'Europe) est un ensemble d'initiatives politiques proposées à partir de 2019 par la Commission européenne et qui vise à faire de l'Europe le premier continent neutre pour le climat, avec la fin des émissions nettes de GES d'ici à 2050. Pour y parvenir, les 27 États membres de l'UE se sont engagés à réduire leurs émissions d'au moins 55 % d'ici à 2030, par rapport aux niveaux de 1990 [6].

En France, la loi relative à la transition énergétique pour la croissance verte (LTECV) publiée au Journal Officiel du 18 août 2015, ainsi que les plans d'action qui l'accompagnent visent à permettre à la France de contribuer plus efficacement à la lutte contre le dérèglement climatique et à la préservation de l'environnement, ainsi que de renforcer son indépendance énergétique tout en offrant à ses entreprises et ses citoyens l'accès à l'énergie à un coût compétitif. Entre autres, la LTECV vise à réduire les émissions de GES, réduire la consommation énergétique finale, réduire la consommation énergétique primaire d'énergies fossiles, augmenter la part des énergies renouvelables et réduire la quantité de déchets mis en décharge [7]. Introduite par la LTECV, la stratégie nationale bas-carbone (SNBC) est la feuille de route de la France pour lutter contre le changement climatique. Elle donne des orientations pour mettre en œuvre, dans tous les secteurs d'activité, la transition vers une économie bas-carbone, circulaire et durable. Adoptée pour la première fois en 2015, la SNBC a été révisée en visant d'atteindre la neutralité carbone en 2050. La nouvelle version de la SNBC a été adoptée en 2020 [8].

À toutes les échelles (internationale, européenne et française), l'énergie est la cible de la majorité des actions. En effet, en 2019, la production d'énergie était responsable de 77,1 % des émissions de GES dans l'UE des vingt-huit, les transports représentant un tiers de ces émissions. Les gaz émis par l'agriculture représentaient 10,5 %, les procédés industriels et l'utilisation des produits 9,1 % et la gestion des déchets 3,3 % [9]. Une forte proportion des émissions anthropiques de CO₂ provient de la combustion de combustibles fossiles, principalement le charbon, le pétrole et le gaz naturel. Il est donc urgent de trouver des solutions permettant de réduire la consommation de combustibles fossiles dont les ressources sont par ailleurs limitées. Ce constat est renforcé par la crise énergétique actuelle liée en grande partie à la guerre en Ukraine. Les énergies renouvelables (éolienne, solaire, hydroélectrique, marine, géothermique et issue de la biomasse) apparaissent ainsi comme des solutions de substitution aux combustibles fossiles ; elles permettent de diversifier l'approvisionnement énergétique et de

réduire la dépendance vis-à-vis des marchés des combustibles fossiles [10]. Chacune de ces énergies renouvelables a un rôle à jouer dans le mix énergétique.

Nous nous intéressons dans ce travail de thèse à la production d'énergie peu émettrice de GES à partir de combustibles alternatifs. Dans ce manuscrit, le terme « combustibles alternatifs » désigne la biomasse lignocellulosique (non fermentescible), les résidus de biomasse lignocellulosique, les boues de station d'épuration séchées et les déchets solides carbonés non recyclables tels que les déchets ménagers et assimilés, les déchets des collectivités, les déchets industriels, les déchets agricoles ou les combustibles solides de récupération (CSR). La filière conventionnelle de valorisation énergétique de ces combustibles alternatifs est l'incinération (ou combustion). Cependant, le procédé de gazéification est une alternative technologique à la combustion, moins polluante et plus efficace.

La gazéification est un procédé thermochimique qui consiste à chauffer un combustible solide carboné en présence d'une faible quantité d'un agent gazéifiant (souvent l'oxygène de l'air). Le combustible subit plusieurs transformations (séchage, pyrolyse, oxydation et réduction), au cours desquelles il est progressivement converti en un gaz que l'on appelle gaz de synthèse ou syngaz, riche en hydrogène et en monoxyde de carbone, à fort potentiel énergétique et polyvalent. En effet, le syngaz produit peut être valorisé suivant plusieurs filières : production de chaleur, d'électricité, cogénération, conversion en méthane pour l'injection réseau ou l'utilisation comme gaz carburant, production d'hydrogène, synthèse d'hydrocarbures liquides (biocarburants si le combustible est de la biomasse) ou de produits chimiques. Le syngaz est donc un vecteur énergétique prometteur ; la gazéification de combustibles alternatifs permet ainsi la production locale et non-intermittente d'énergie renouvelable et peut devenir une contribution majeure à la transition énergétique et à la promotion de l'économie circulaire et territoriale. Plusieurs technologies de gazéificateurs existent. Parmi celles-ci, les réacteurs à lit fixe co-courants, compte tenu de leur niveau de puissance (< 5MWth), sont les mieux adaptés aux enjeux territoriaux liés à la valorisation des déchets.

La gazéification est une technologie mature pour la conversion du charbon et du bois, mais l'utilisation de combustibles alternatifs nécessite encore des efforts de recherche et de développement. En effet, plusieurs verrous technologiques liés à la compréhension des mécanismes mis en jeu continuent de freiner le développement de cette filière. Parmi ces verrous, l'un des plus importants est lié à la compréhension des processus de gazéification. Ceux-ci sont rendus plus complexes par l'utilisation de combustibles alternatifs dont les

caractéristiques (composition, masse volumique apparente, granulométrie, comportement thermique en particulier) peuvent varier dans de larges gammes et être très hétérogènes. Dans ce contexte, le projet ECoGaz (valorisation Énergétique de COmbustibles alternatifs issus de déchets par GAZéification), financé par la Région Auvergne-Rhône-Alpes, visait à accroître les connaissances afin de développer l'utilisation de la gazéification pour la conversion de combustibles alternatifs dans des réacteurs à lit fixe.

Ainsi, le principal objectif de ce travail de thèse est de proposer un modèle numérique fiable de gazéification en lit fixe co-courant permettant de représenter avec justesse la gazéification de combustibles complexes. En particulier, ce modèle prend en compte le phénomène de tassement du lit.

Ce manuscrit de thèse est organisé en 4 chapitres.

Le premier chapitre présente le contexte de la valorisation énergétique de la biomasse et des déchets, le positionnement de la gazéification par rapport aux autres procédés thermo-chimiques, les différentes technologies de gazéification et les enjeux de la gazéification en lit fixe de combustibles alternatifs.

Le deuxième chapitre dresse un état de l'art des modèles de gazéification en lit fixe. Les modèles à l'échelle du réacteur sont décrits ainsi que ceux à l'échelle de la particule. Les différentes façons de modéliser le tassement du lit sont ensuite exposées.

Le troisième chapitre est consacré à la description du modèle et à sa validation grâce à des données expérimentales issues de la bibliographie. Dans la littérature, très peu de modèles valident les phénomènes transitoires en gazéification. La validation de la dynamique du procédé est réalisée à partir de l'avancement du front de réaction dans le réacteur depuis l'ignition. Pour ce faire, les profils dynamiques de températures expérimentales et simulées ont été comparés. Ensuite, la dynamique des concentrations des espèces solides, gazeuses et du diamètre des particules est analysée. Enfin, la distribution radiale des phénomènes de gazéification est présentée.

Le quatrième chapitre présente l'exploitation du modèle pour étudier l'influence de la taille des particules sur la dynamique de la gazéification et la distribution radiale des phénomènes observés. Deux diamètres différents ont été étudiés. Leur influence sur les températures des phases solides et gazeuses, sur la conversion des particules et la concentration des espèces solides est analysée.

Cette thèse se termine par une conclusion générale qui résume les principaux apports de ce travail, et des perspectives concernant l'utilisation du modèle développé et les améliorations possibles sont proposées.

Chapitre I - La gazéification de combustibles alternatifs dans la transition énergétique

I.1. Valorisation énergétique de la biomasse et des déchets : quels enjeux ?

I.1.1. La biomasse et les déchets

La définition du terme « biomasse » a évolué dans le temps. D'autre part, plusieurs définitions peuvent être trouvées. Par exemple, le Larousse propose 3 définitions parmi lesquelles « Masse vivante, considérée du point de vue de l'énergie que l'on peut en obtenir par combustion ou fermentation (gaz de broussaille, gaz de fumier, feu de bois) » et « Partie biodégradable des déchets et résidus agricoles, industriels et ménagers, utilisable comme énergie. » [11]. Dans l'article L211-2 du Code de l'énergie, la biomasse est définie comme « la fraction biodégradable des produits, des déchets et des résidus d'origine biologique provenant de l'agriculture, y compris les substances végétales et animales, de la sylviculture et des industries connexes, y compris la pêche et l'aquaculture, ainsi que la fraction biodégradable des déchets, notamment les déchets industriels ainsi que les déchets ménagers et assimilés lorsqu'ils sont d'origine biologique » [12]. Ces définitions peuvent donc être très larges et incluent souvent certains déchets. Une grande partie de la biomasse est de type lignocellulosique. Dans ce cas, ses principaux constituants sont des polymères : la cellulose, les hémicelluloses et la lignine. Elle est généralement difficilement biodégradable et ne fait pas partie de la chaîne alimentaire humaine.

En ce qui concerne les déchets à proprement parler, d'après l'article L541-1-1 du Code de l'environnement, un déchet est « toute substance ou tout objet, ou plus généralement tout bien meuble, dont le détenteur se défait ou dont il a l'intention ou l'obligation de se défaire ». De plus (article L541-1), une hiérarchie des modes de traitement des déchets doit être mise en œuvre. Elle consiste à privilégier, dans l'ordre : a) La préparation en vue de la réutilisation ; b) Le recyclage ; c) Toute autre valorisation, notamment la valorisation énergétique ; d) L'élimination [13]. Les déchets considérés dans cette thèse sont donc des déchets qui ne sont pas réutilisés ou recyclés. Parmi eux, les CSR sont des combustibles solides préparés à partir de déchets non dangereux en vue d'une valorisation énergétique, généralement par incinération ou co-incinération. Ils sont triés, traités, homogénéisés et améliorés afin d'atteindre une qualité pouvant faire l'objet d'échanges commerciaux entre les producteurs et les utilisateurs [14]. Le

lecteur désireux d'en savoir plus sur les déchets et les CSR peut consulter la thèse de Gwendal Vonk [15].

La biomasse et les déchets sont une source d'énergie qui peut souvent être considérée comme renouvelable (dans le cas des déchets biogéniques) et qui présente l'avantage incontestable de pouvoir être stockée. Par conséquent, elle ne souffre pas d'intermittence. De plus, la biomasse et les déchets permettent une production d'énergie décentralisée. La valorisation énergétique de la biomasse et des déchets peut être réalisée par voie biologique (ou biochimique) ou par voie thermochimique.

Les procédés de conversion biologique concernent la fraction la plus facilement biodégradable (fermentescible). Ils utilisent des microorganismes pour convertir l'intrant. Le procédé le plus développé est la digestion anaérobie, également appelée méthanisation, qui permet la production de biogaz riche en CH₄ (et en CO₂). La biomasse et les déchets traités sont généralement assez humides. La biomasse moins facilement biodégradable (de type lignocellulosique) peut être convertie par voie biochimique, au cours de laquelle la cellulose et les hémicelluloses sont transformées en sucres par des enzymes. Les sucres produits sont ensuite transformés principalement en éthanol par fermentation.

La voie thermochimique s'applique à la biomasse et aux déchets carbonés plus récalcitrants donc moins facilement biodégradables. Les intrants concernés sont généralement relativement secs. La biomasse lignocellulosique et les déchets solides carbonés secs ou de type CSR sont donc particulièrement adaptés à une valorisation par conversion thermochimique.

Dans ce manuscrit de thèse, nous nous intéressons à la biomasse et aux déchets susceptibles d'être convertis par voie thermochimique. Par la suite, ils sont regroupés sous l'appellation « combustibles alternatifs ».

I.1.2. Part des énergies renouvelables dans le mix énergétique français

La consommation d'énergie primaire par type d'énergie en France en 2020 est montrée sur la Figure I-1. Le total s'élève à 2651 TWh, dont 348 TWh (13,1 %) pour les énergies renouvelables. Les énergies renouvelables constituent ainsi la quatrième source d'énergie primaire en 2020 derrière le nucléaire (39,2 %), les produits pétroliers (27,5 %) et le gaz naturel (16,9 %). Un important développement des énergies renouvelables est donc nécessaire afin d'atteindre la neutralité carbone en 2050 comme prévu par la SNBC.

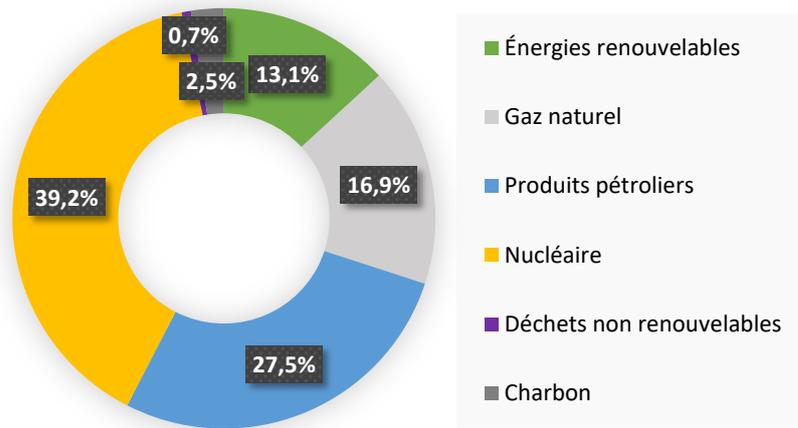


Figure I-1. Consommation d'énergie primaire par type d'énergie en France en 2020 (données corrigées des variations climatiques)[16]. Source : calculs Service des données et études statistiques

D'autre part, la production primaire d'énergies renouvelables, qui correspond à l'ensemble des énergies renouvelables primaires produites en France, s'élevait à 322 TWh en 2020. La répartition par filière est montrée sur la Figure I-2. Les principales énergies renouvelables primaires produites en France sont le bois-énergie (106 TWh en 2020), utilisé principalement pour le chauffage, et la production d'électricité hydraulique (62 TWh soit 19,3 % en 2020). À cette production s'ajoutent notamment celles d'énergie éolienne (12,7 %), de chaleur renouvelable issue des pompes à chaleur (10,1 %) et de biocarburants (8,4 %).

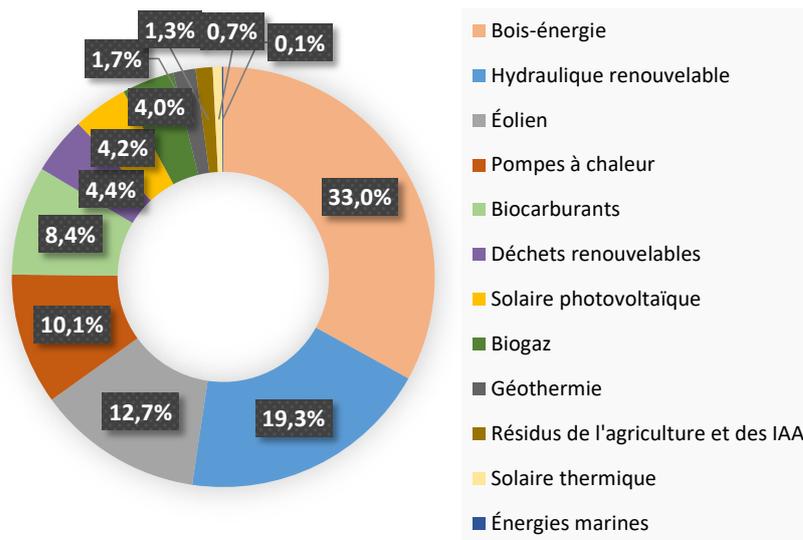


Figure I-2. Production primaire d'énergies renouvelables par filière en France en 2020 [16]. Source : calculs Service des données et études statistiques. IAA = industries agroalimentaires

Si l'on additionne les contributions du bois-énergie, des biocarburants, des déchets renouvelables, du biogaz et des résidus de l'agriculture et des industries agroalimentaires, il apparaît que la biomasse et les déchets représentaient 51,1 % des énergies renouvelables primaires produites en France en 2020. Cela montre le potentiel de ces ressources, qui devraient contribuer de manière significative au développement des énergies renouvelables en France et dans le reste du monde.

I.2. Conversion thermochimique de combustibles alternatifs

Les procédés thermochimiques utilisent principalement la chaleur (ou la pression) comme force motrice pour réaliser des transformations physiques et chimiques de la matière. Lors de la conversion thermochimique, les transformations les plus importantes ont lieu dans la phase condensée : la dépolymérisation et la décomposition des composés solides du combustible en liquides, gaz, vapeurs et résidus solides. Cependant, les réactions secondaires des espèces gazeuses peuvent aussi être déterminantes pour la composition finale du produit.

Les principaux procédés de conversion thermochimique peuvent être distingués selon le facteur d'agent oxydant (également appelé ratio équivalent) mis en jeu (λ), représentant le rapport entre la quantité d'agent oxydant introduite et la quantité stœchiométrique d'agent oxydant nécessaire pour réaliser la conversion :

- Combustion : $\lambda > 1$ pour assurer une combustion complète ;
- Gazéification : $\lambda < 1$ correspondant à une oxydation partielle ;
- Pyrolyse : $\lambda = 0$ caractéristique d'un milieu inerte.

Les produits obtenus lors de chaque procédé et leur valorisation sont différents. La combustion permet de produire de la chaleur à haute température et des sous-produits solides et gazeux (cendres, fumées) non valorisables. La gazéification produit un gaz à haut potentiel énergétique et, dans certains cas, le résidu solide (char réactif) peut être valorisé. La pyrolyse produit un liquide combustible et des co-produits gazeux et solides ayant également un potentiel énergétique. Les applications de ces produits sont variées : production de chaleur, d'électricité ou de combustibles de deuxième génération (méthane, hydrogène, éthanol, méthanol) (Figure I-3).

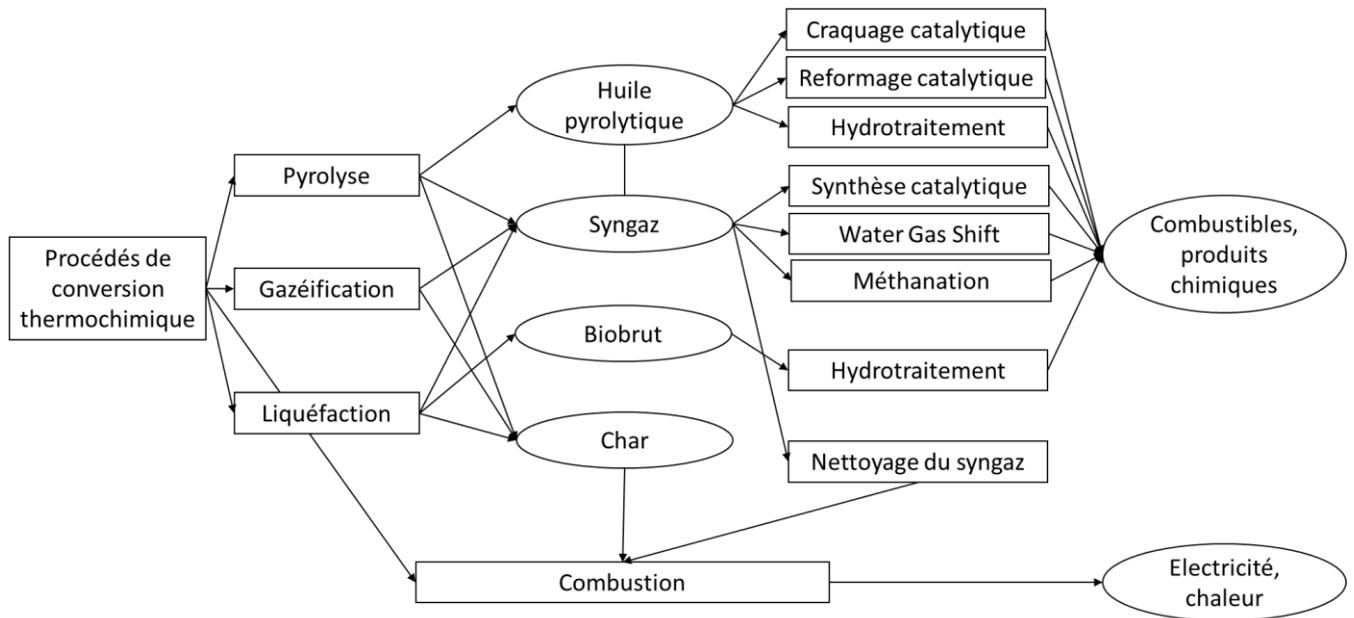


Figure I-3. Filières de valorisation de combustibles alternatifs d'après [17]

I.2.1. Combustion

Actuellement, la filière conventionnelle de valorisation énergétique des combustibles alternatifs est la combustion (ou incinération). La combustion est une réaction d'oxydation exothermique d'un combustible à haute température, réalisée en présence d'un gaz comburant (généralement de l'air) également appelé agent oxydant. Ce procédé permet de produire de la chaleur à moyenne ou haute température (de 800 °C à 1600 °C), couramment utilisée pour des applications de chauffage industriel, de production de vapeur et de génération d'électricité par cogénération (cycle de Rankine).

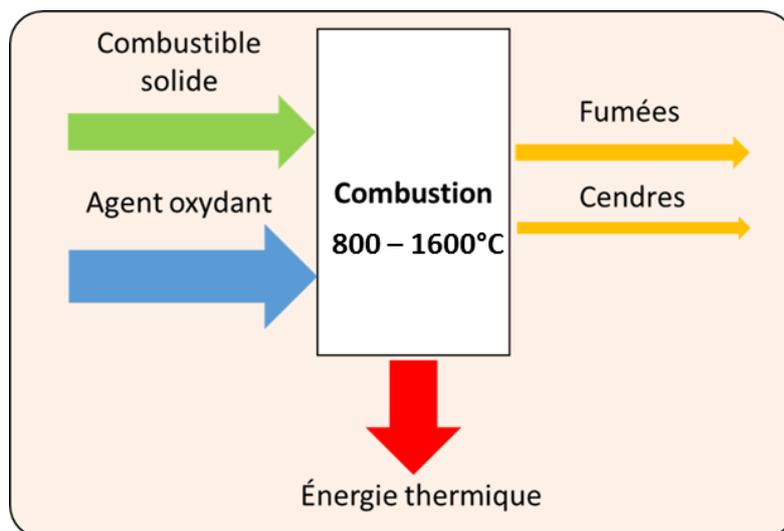


Figure I-4. Flux de matière et d'énergie de la combustion

Dans le cas idéal (Figure I-4), l'énergie chimique contenue dans le combustible est complètement convertie en énergie thermique. Les fumées produites sont uniquement composées de dioxyde de carbone et de vapeur d'eau. Des cendres sont également produites. Pour assurer la combustion complète, la quantité de gaz comburant est toujours supérieure à celle requise par la stœchiométrie de la réaction. Toutefois, chaque mole de gaz comburant excédentaire augmente la quantité de matière à chauffer sans modifier la quantité d'énergie produite. Par conséquent, plus l'excès d'air utilisé est grand, plus le potentiel de valorisation énergétique du combustible est faible.

A contrario, dans le cas d'une combustion incomplète, des composés particulièrement toxiques pour l'homme et pour l'environnement sont émis tels que du monoxyde de carbone, des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), des oxydes de soufre (SO₂) et des particules toxiques (suies, goudrons) [17]. Un enjeu de la conception des systèmes de combustion consiste donc à respecter les normes en vigueur en matière d'émissions polluantes tout en restant compétitif [18].

Actuellement, les technologies de combustion sont matures, largement développées et commercialement disponibles. La capacité de production d'électricité à partir de la combustion de biomasse propre est de 10 GWe aux Etats-Unis ; ce chiffre est 5 fois plus élevé au niveau mondial [19]. De plus, l'incinération est la voie la plus répandue pour la valorisation énergétique des déchets : en Europe en 2018, il existait 650 unités d'incinération [20]. Cependant, l'encrassement et la corrosion [21] des surfaces de transfert thermique réduisent l'efficacité et la durée de vie utile des unités d'incinération de biomasse et déchets. De plus, dans le cas de l'incinération d'ordures ménagères contenant une forte proportion de déchets organiques humides, le rendement énergétique est nettement inférieur à celui des centrales thermiques utilisant d'autres combustibles tels que le charbon [15].

I.2.2. Pyrolyse

La pyrolyse (également appelée dévolatilisation) consiste à convertir le combustible solide en un résidu carboné (appelé coke de pyrolyse ou char), en composés liquides et en un gaz en proportions variables selon le type de combustible, la vitesse de chauffe, la température et le temps de séjour (Figure I-5). Ce procédé globalement endothermique a lieu dans une atmosphère inerte à des températures variant entre 350 et 600 °C et met en jeu des milliers de réactions élémentaires se produisant dans les 3 phases (liquide, solide, gaz), incluant une

centaine d'espèces volatiles [22]. La pyrolyse peut être classifiée comme rapide ou lente selon les conditions opératoires [23].

La pyrolyse lente est réalisée entre 350 – 450 °C et se caractérise par des vitesses de chauffe lentes et des temps de séjour longs (heures). L'objectif est la production de coke de pyrolyse pour sa valorisation, par exemple comme matériau filtrant ou fertilisant agricole. Dans le cas où le coke a été produit à partir de déchets, la majorité des composés chlorés et soufrés et les métaux lourds initialement contenus dans le déchet traité se retrouvent dans le résidu solide. Le coke doit alors être épuré (lavage, décendrage) avant son utilisation ultérieure. La pyrolyse peut permettre par exemple la récupération de métaux non oxydés dans le traitement des résidus de broyage automobile ou des déchets électriques et électroniques [24]. Les co-produits de la pyrolyse lente sont des gaz volatils, souvent brûlés pour alimenter en chaleur les installations de pyrolyse, assurant l'auto-thermicité du procédé.

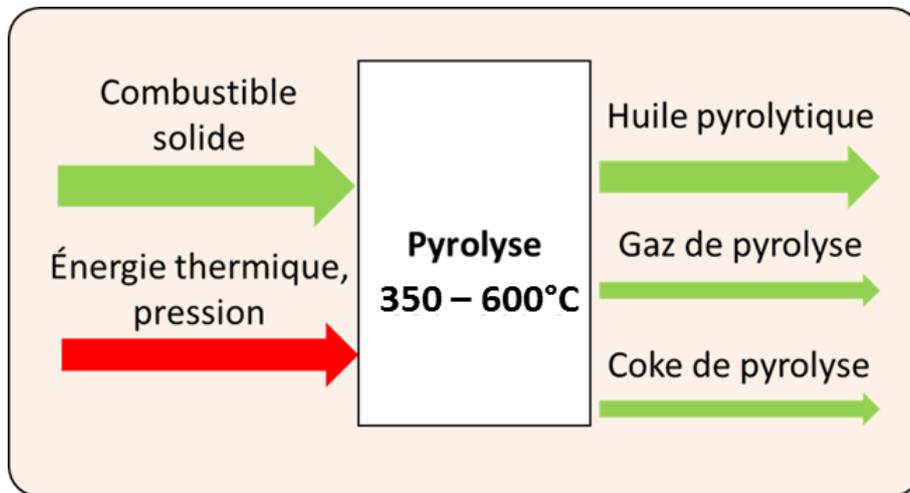


Figure I-5. Flux de matière et d'énergie de la pyrolyse

Dans le cas de la pyrolyse rapide, les vitesses de chauffe sont rapides, le temps de séjour est court (1 à 5 secondes) et la température est contrôlée aux alentours de 500 °C avec un refroidissement rapide des vapeurs de pyrolyse pour produire de l'huile pyrolytique (Figure I-5). L'huile pyrolytique est un liquide visqueux et acide, riche en énergie, composé d'un mélange complexe de composés oxygénés tels que des acides carboxyliques, des aldéhydes et des alcools. Elle est couramment valorisée dans des moteurs ou des turbines pour la production de chaleur et d'électricité, et comme matière première pour la production de combustible pour le transport ou de produits chimiques organiques [17]. Le rendement massique peut atteindre 80 % [24].

Le développement de la pyrolyse est limité par un manque de compréhension des fonctions chimiques présentes dans les combustibles, dans l'huile pyrolytique ainsi que dans les produits intermédiaires. Ces fonctions sont extrêmement sensibles à la température et leur transformation dans le temps est incessante [17]. Une meilleure compréhension de la chimie en phase condensée est critique pour améliorer la qualité de l'huile pyrolytique et le coût global de la pyrolyse.

I.2.3. Gazéification

La gazéification est un procédé thermochimique complexe dans lequel un combustible solide carboné est converti en un combustible gazeux appelé gaz de synthèse ou syngaz, par chauffage sous une atmosphère partiellement oxydante à des températures comprises entre 700 et 1000 °C, grâce à l'action d'un agent oxydant (également appelé agent gazéifiant) (Figure I-6). L'énergie thermique nécessaire pour réaliser la gazéification peut être apportée par oxydation partielle des réactifs et des produits (gazéification directe) ou par transfert thermique à partir d'une source de chaleur externe (gazéification indirecte, voir section I.4.4). Un résidu solide carboné appelé char et des cendres sont également produits. Le gaz de synthèse est principalement composé d'hydrogène (H_2), de monoxyde de carbone (CO), de dioxyde de carbone (CO_2) et de méthane (CH_4), ainsi que de vapeur d'eau (H_2O). Le syngaz contient également des hydrocarbures légers et lourds. Ces derniers sont appelés goudrons et désignent un large éventail de composés organiques qui se présentent sous forme vapeur à la température de gazéification, mais qui se condensent à des températures comprises entre 250 et 300 °C. Enfin, des polluants tels que le sulfure d'hydrogène (H_2S) ou l'ammoniac (NH_3) sont parfois présents dans le syngaz.

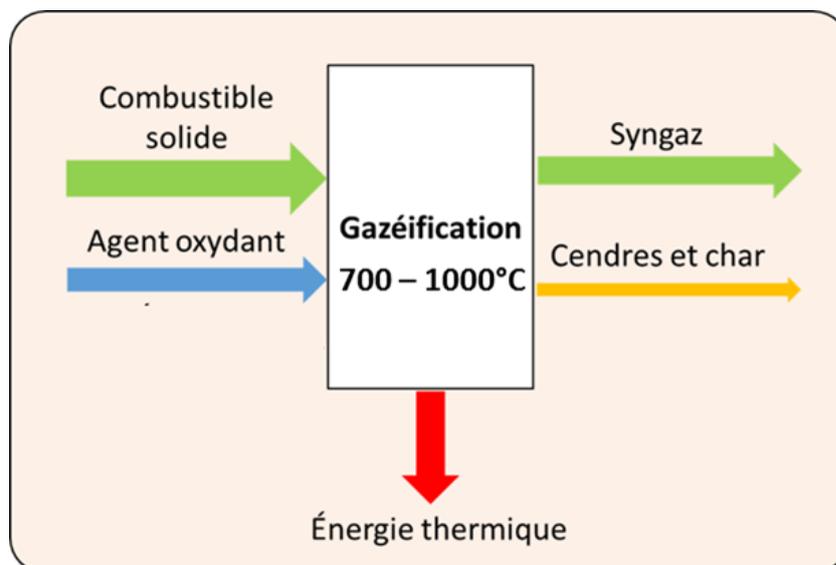


Figure I-6. Flux de matière et d'énergie de la gazéification directe

La composition du syngaz dépend de plusieurs facteurs :

- les propriétés physiques et chimiques du combustible (granulométrie, masse volumique apparente, composition, taux d'humidité, teneur en polluants, etc.) ;
- les conditions opératoires (température, pression, ratio agent oxydant/combustible, etc.) ;
- l'agent oxydant : selon le type de gazéification envisagée (directe ou indirecte), l'agent oxydant peut être de l'air, de l'oxygène pur, de la vapeur d'eau ou du dioxyde de carbone ; l'agent oxydant a principalement un effet sur la teneur du syngaz en azote et en hydrogène ;
- le type de gazéifieur : chaque technologie permet d'atteindre un taux de conversion et un rendement énergétique spécifiques, d'opérer dans certaines conditions opératoires, et de traiter des charges ayant des caractéristiques spécifiques.

Les domaines d'utilisation du gaz de synthèse sont la production de chaleur et d'électricité, la production de gaz naturel synthétique par méthanation (méthanation catalytique ou biométhanation), la production de combustibles liquides (synthèse de Fischer-Tropsch, production de méthanol ou de méthoxyméthane (diméthyléther)) et la synthèse chimique. Il est important de préciser que chaque application nécessite une composition de syngaz spécifique (concentration minimale ou maximale de certains composés), ainsi qu'une teneur limitée en goudrons et polluants.

I.2.4. Conclusion

Comme mentionné précédemment, la principale filière de valorisation énergétique des combustibles alternatifs est actuellement la combustion. Une comparaison entre les procédés de combustion et de gazéification est ensuite présentée. Plusieurs avantages de la gazéification par rapport à la combustion pour les déchets solides ont été identifiés dans la littérature ([24],[25]), dont les suivants :

- Le gaz de synthèse permet d'envisager plus d'applications que la combustion directe.
- La production d'électricité est possible dans des installations à petite et moyenne échelles (< 330 t/j). A ces échelles, une installation de combustion directe n'est pas rentable.
- Les gazéifieurs permettent de traiter des déchets à fort pouvoir calorifique inférieur (PCI) ($PCI > 14 \text{ MJ/kg}$), de type CSR. La combustion de ces déchets dans des fours à

grilles conventionnels risque d'endommager la grille (apparition de points chauds et de dards thermiques) et nécessite l'utilisation de grilles refroidies.

- La température de fonctionnement étant plus faible, la volatilisation des métaux lourds et des alcalins, est limitée.
- L'atmosphère réductrice de la gazéification diminue les émissions de dioxines, furanes et oxydes d'azote (NO_x).
- Le gaz de synthèse généré par la gazéification est plus facile à manipuler et à brûler que les déchets solides hétérogènes.
- La combustion homogène (syngaz-air) permet de réduire l'excès d'air par rapport à la combustion hétérogène (combustible solide-air) et éventuellement de réaliser des flammes pré-mélangées. La réduction d'excès d'air limite également les pertes de chaleur au niveau de la cheminée (dans une chaudière) et augmente ainsi l'efficacité de la récupération d'énergie.
- Les fumées produites par combustion de syngaz contiennent un ballast d'azote moins important que les fumées de combustion facilitant le traitement. En effet, l'atmosphère réductrice de gazéification ainsi que la réduction d'excès d'air de combustion permettent une réduction d'environ 30%v par rapport aux fumées de combustion d'un solide.
- Les installations de gazéification peuvent être modulaires, ce qui permet de modifier la capacité de traitement des déchets solides.

De plus, les installations de combustion et d'incinération sont à l'origine de l'émission de particules fines ayant de graves répercussions sur la qualité de l'air, le climat et la santé [26],[27].

Des inconvénients de la gazéification peuvent également être mentionnés. Par exemple [25] :

- le syngaz est toxique et potentiellement explosif, ce qui engendre des problématiques de sécurité ;
- les installations ont tendance à être plus complexes et plus difficiles à exploiter et à entretenir car la matière première est convertie en plusieurs étapes : gazéification, épuration du syngaz (complexité d'épuration en fonction de l'application) et valorisation du syngaz ;
- le traitement du gaz de synthèse peut être très coûteux et prohibitif pour des installations à petite échelle ;

- la variabilité de la qualité du gaz de synthèse (PCI, teneur en goudrons, poussières et/ou polluants) peut compromettre l'efficacité du procédé et le contrôle des émissions ;
- la présence de goudrons peut être problématique.

Malgré ces inconvénients, la gazéification présente de nombreux avantages et est une alternative à la combustion particulièrement prometteuse. Ainsi, la suite de ce manuscrit concerne la gazéification.

I.3. Principe de la gazéification

Le procédé de gazéification a été développé à partir de la fin du XVIII^e siècle par Philippe Lebon. A cette époque, le syngaz était utilisé pour alimenter les thermolampes pour l'éclairage urbain et le chauffage, notamment de la ville de Paris. Ce système a été ensuite amélioré et est devenu le précurseur du moteur à combustion interne, appelé gazogène. En 1920, Georges Imbert a modifié le gazogène pour faire face à la pénurie de carburants conventionnels pendant la seconde guerre mondiale. Plus tard, durant la crise pétrolière des années 1970, le syngaz a été utilisé pour la production d'électricité et de combustibles liquides par synthèse Fischer-Tropsch [28]. Cependant, avec la baisse des prix du gaz naturel et du pétrole, la gazéification a perdu en compétitivité économique. Actuellement, la gazéification est une solution prometteuse pour la production de combustibles gazeux et liquides renouvelables, qui se substituent respectivement au gaz naturel et aux combustibles liquides provenant du pétrole [14].

La gazéification, également appelée pyrogazéification, est un procédé complexe qui met en jeu des phénomènes fortement couplés : transferts de matière et de chaleur, réactions chimiques homogènes (gaz/gaz) et hétérogènes (solide/gaz), écoulement gazeux et écoulement solide.

Comme l'illustre la Figure I-7, pendant la gazéification, le combustible subit une série de transformations thermochimiques. Il n'existe pas de limites clairement définies entre ces phénomènes mais ils peuvent être identifiés selon la température à laquelle ils se déroulent.

Le séchage est une étape endothermique pendant laquelle l'humidité du combustible s'évapore, entraînant un dégagement de vapeur d'eau.

Pendant l'étape de pyrolyse (également appelée dévolatilisation), globalement endothermique, le combustible est chauffé, ce qui entraîne la vaporisation des composés volatils. Les gaz produits sont principalement : CO, H₂, CO₂, CH₄, des hydrocarbures légers et de la vapeur d'eau. La pyrolyse entraîne également la production de goudrons et d'un résidu solide poreux

appelé char (principalement composé de carbone et de cendres) qui continuera à réagir avec la phase gazeuse à des températures plus élevées.

L'oxydation (combustion) se produit grâce à l'introduction d'un agent oxydant et a pour but de fournir de la chaleur pour les réactions de séchage, de dévolatilisation et de réduction. L'oxydation partielle des gaz de pyrolyse combustibles et du char entraîne la formation de CO₂ et de vapeur d'eau.

La réduction (gazéification) implique plusieurs réactions homogènes et hétérogènes qui sont à l'origine de la production de CO et de H₂. Ces réactions sont principalement endothermiques.

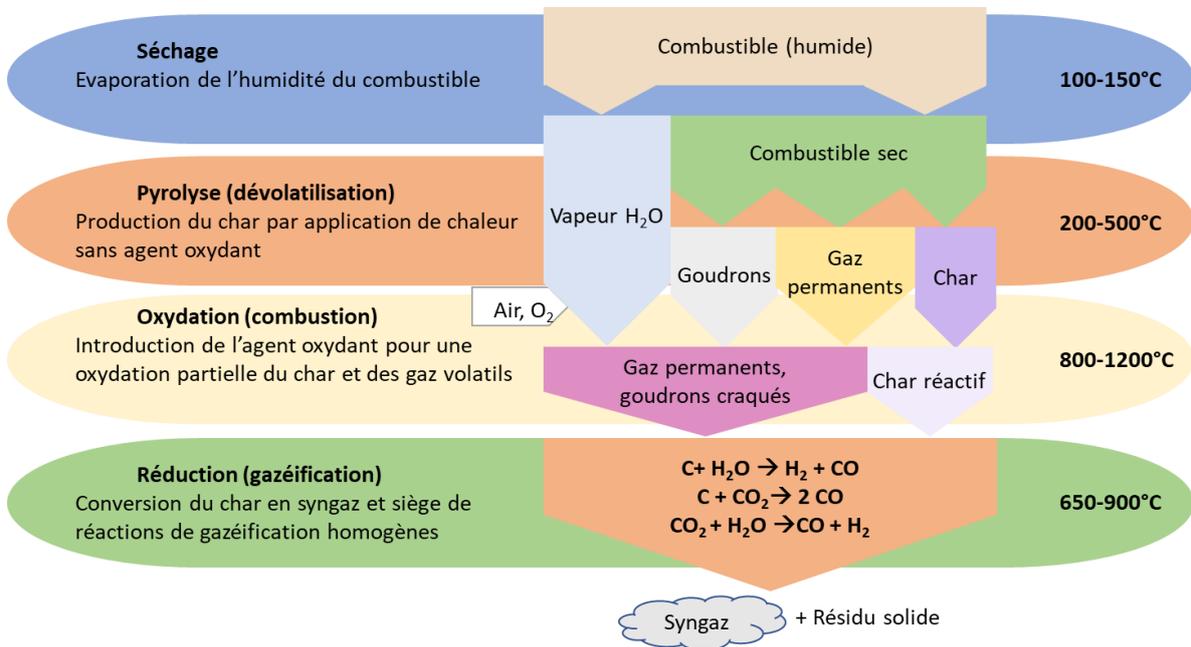


Figure I-7. Etapes de conversion thermochimique lors de la gazéification

I.4. Technologies de gazéification

Dans un réacteur de gazéification, la charge solide est mélangée à un agent oxydant (dans une configuration de gazéification directe, également appelée gazéification autothermique) ou avec un matériau transportant de la chaleur (dans le cas de la gazéification indirecte, également appelée gazéification allothermique). Le type de gazéifieur et le mode de gazéification influencent la qualité du gaz produit en termes de composition et de teneur en goudrons et particules. En conséquence, la technologie choisie a aussi un impact sur les étapes ultérieures de nettoyage et de mise aux spécifications du syngaz. Le procédé de gazéification peut être réalisé dans un réacteur unique ou traité comme un procédé étagé dans plusieurs réacteurs.

Les technologies de gazéification sont présentées ici selon le mode de transport de la phase solide. Les configurations les plus connues suivant cette classification sont les réacteurs à lit fixe (co-courant et contre-courant), les réacteurs à lit fluidisé (bouillonnant ou circulant) et les réacteurs à flux entraîné. Les technologies de gazéification offrent une gamme de capacités allant de quelques kilowatts (lit fixe co-courant) jusqu'à plusieurs gigawatts (lit entraîné), comme le montre la Figure I-8 [29],[30] .

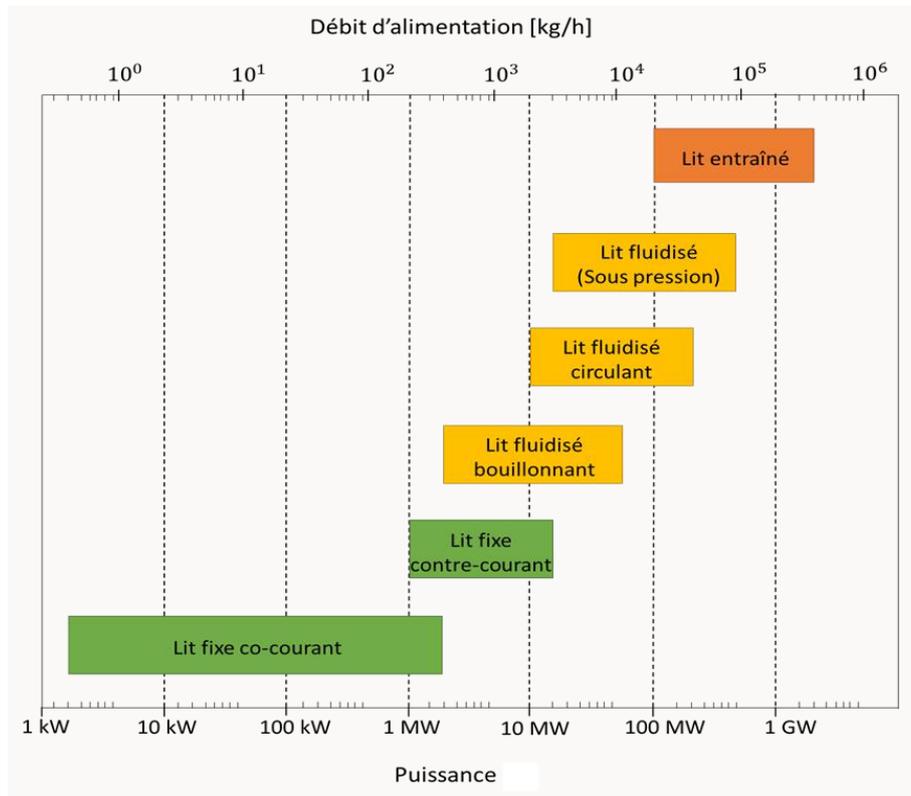


Figure I-8. Classification des technologies et leur gamme de performance

I.4.1. Gazéification en lit fixe

Les gazéificateurs à lit fixe sont les réacteurs les plus anciens et ont été utilisés historiquement pour des installations de petite échelle [31]. Leur construction, opération et maintenance sont relativement simples. Les réacteurs à lit fixe peuvent être classifiés comme co-courant ou contre-courant, selon le sens d'écoulement de la phase solide et de la phase gazeuse.

I.4.1.1. Lit fixe co-courant

Dans le cas d'un gazéificateur à co-courant (Figure I-9), le solide et le gaz s'écoulent dans le même sens. Le combustible solide est alimenté par le haut du réacteur et l'agent oxydant à une hauteur intermédiaire. Dans cette configuration, le solide s'écoule lentement vers le bas du réacteur, subissant des transformations thermochimiques consécutives (séchage, pyrolyse, oxydation, réduction). Les résidus solides (particules (char) non consommées et cendres) et le gaz de

synthèse sont extraits au niveau de la grille, en bas du réacteur. Avant de quitter le réacteur, le syngaz s'écoule à travers le lit de char chaud. Cette étape permet le craquage des goudrons mais diminue l'efficacité énergétique du procédé car le syngaz chaud contient une forte quantité de chaleur. Dans certaines configurations, la zone d'injection de l'air présente une réduction de diamètre (« *throat* » en anglais) permettant d'homogénéiser la température, d'atteindre de meilleures conditions de mélange, et réduisant la concentration de goudrons dans le syngaz. En effet, un désavantage des réacteurs co-courant est la difficulté d'obtenir une conversion homogène du solide. Plusieurs phénomènes physiques liés à l'évolution morphologique du lit peuvent nuire à l'efficacité de la conversion, comme l'apparition de passages préférentiels [32],[33],[34]. Pour cette raison, les réacteurs à co-courant sont très sensibles aux caractéristiques de la charge, comme la taille des particules [35]. De plus, leur capacité est soumise à des limites de sécurité et de performance. Ainsi, la puissance des gazéificateurs à lit fixe ne dépasse généralement pas 1 MW puisque l'augmentation du diamètre du réacteur rend difficile l'obtention d'une conversion homogène et la création d'une zone chaude permettant le craquage des goudrons [36].

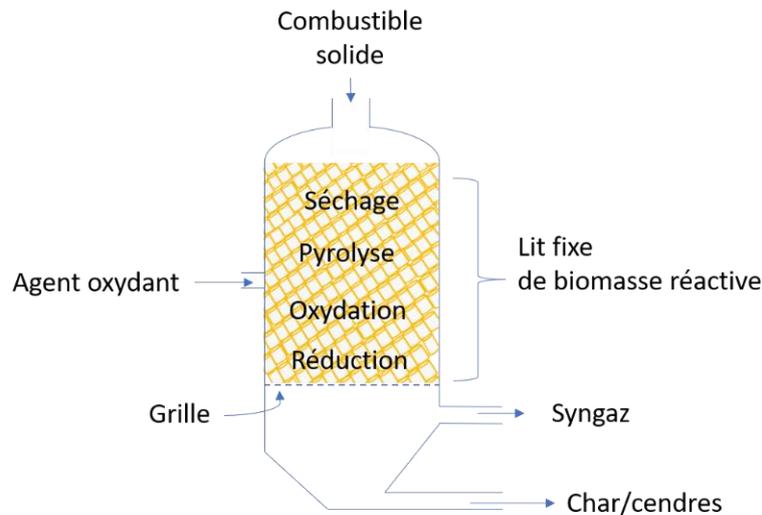


Figure I-9. Gazéificateur à lit fixe à co-courant

I.4.1.2. Lit fixe contre-courant

Dans un gazéificateur à lit fixe contre-courant (Figure I-10), contrairement aux réacteurs à co-courant, l'agent oxydant est introduit par le bas du réacteur (au niveau de la grille) et le syngaz produit est récupéré en haut du réacteur. L'alimentation en solide reste inchangée : le combustible solide est introduit par le haut. Dans cette configuration, immédiatement au-dessus de la grille, le char solide qui s'est formé plus haut dans le gazéificateur est brûlé par combustion.

Les cendres tombent à travers la grille et les gaz chauds montent et sont réduits. Plus haut dans le gazéifieur, le combustible est pyrolysé et, dans la zone supérieure, séché. Le syngaz chaud s'écoule à travers les zones plus froides (séchage et pyrolyse), échangeant de l'énergie thermique avec le combustible avant de quitter le réacteur par le haut, à une température comprise entre 200 et 300 °C [37]. Les gazéifieurs à contre-courant sont plus flexibles aux caractéristiques de la charge (taux d'humidité, granulométrie) [38]. Cependant, le syngaz produit par gazéification à contre-courant a une teneur en goudrons (formés lors de la phase de pyrolyse) plus importante que celui produit dans un réacteur à co-courant. En effet, le syngaz ne traversant pas de zone chaude avant d'être évacué, il n'y a pas de possibilité de craquage thermique des goudrons. Le gaz nécessite donc un nettoyage poussé pour des applications autres que la combustion directe.

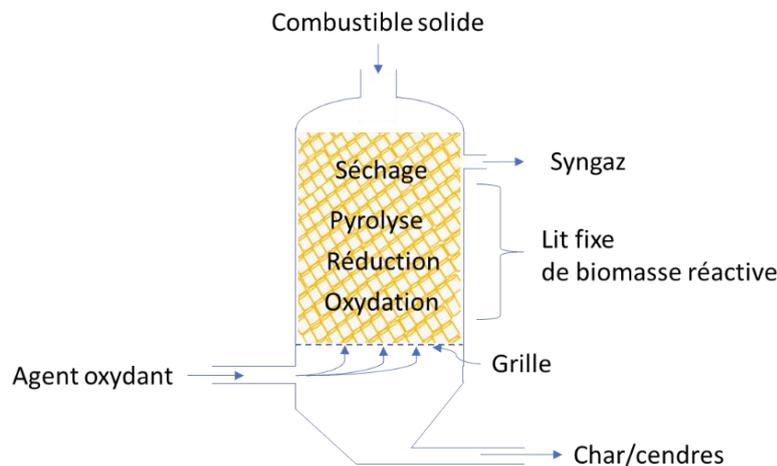


Figure I-10. Gazéifieur à lit fixe à contre-courant

I.4.2. Gazéification en lit fluidisé

Dans un gazéifieur à lit fluidisé (Figure I-11 et Figure I-12), le combustible solide est fluidisé par l'introduction du gaz oxydant (air le plus souvent) à haute vitesse dans un lit constitué de particules de faible diamètre. Le solide se comporte alors comme un fluide. Des matériaux granulaires inertes sont souvent utilisés, comme le sable ou l'alumine ; toutefois, des matériaux ayant des propriétés catalytiques comme l'olivine ou la dolomite sont également employés [38]. L'air est injecté dans la partie basse du réacteur à l'aide d'un distributeur d'air pour assurer l'homogénéité de la fluidisation du lit. Le combustible est souvent introduit à l'aide d'une vis sans fin dans la partie basse du réacteur, permettant un meilleur mélange avec le matériau granulaire. Du combustible peut également être introduit par le haut du réacteur mais les particules risquent d'être entraînées hors du réacteur sans être converties [39]. Le principal

avantage des lits fluidisés est leur taux de mélange élevé, résultant en un bon transfert thermique et une conversion du carbone élevée et homogène. En effet, ce type de réacteur est flexible aux caractéristiques de la charge : distribution granulométrique, taux de cendres et humidité [35],[37]. Les lits fluidisés se profilent comme une technologie adaptée pour la valorisation des charges hétérogènes de type déchets. Malgré ces avantages, la température d'opération des lits fluidisés doit être maintenue inférieure à la température de fusion des cendres, mais doit être suffisamment élevée pour éviter la formation de goudrons (minimum 700 °C). Dans le cas où cette condition n'est pas respectée, la fusion des cendres peut provoquer l'agglomération du matériau granulaire, anéantissant la fluidisation du solide. Dans ce cas, le réacteur doit être arrêté, complètement vidé et le matériau granulaire remplacé [33].

Les 2 principaux types sont le lit fluidisé bouillonnant et le lit fluidisé circulant.

I.4.2.1. Lit fluidisé bouillonnant

Dans un lit fluidisé bouillonnant (Figure I-11), la fluidisation du lit permet d'assimiler le solide à un liquide en ébullition. Le solide est maintenu en suspension par le gaz dans un volume de lit défini. La partie haute du réacteur (appelée freeboard) est souvent plus large que le reste du réacteur. Cette différence de taille permet de diminuer la vitesse du gaz et d'assurer le retour des particules vers le lit, mais aussi d'augmenter le temps de séjour des particules dans le réacteur. En comparaison avec les réacteurs à lit fixe, le contenu en goudrons et particules dans le gaz produit est modéré.

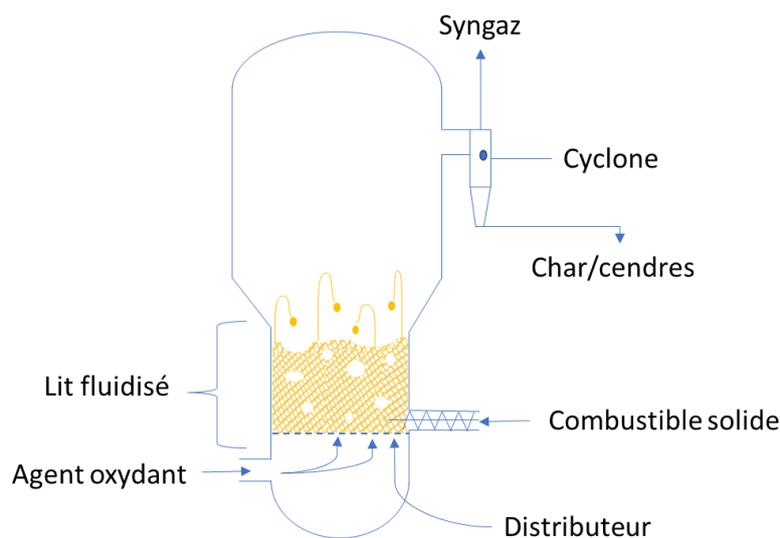


Figure I-11. Gazéifieur à lit fluidisé bouillonnant

I.4.2.2. Lit fluidisé circulant

Dans un gazéifieur à lit fluidisé circulant (Figure I-12), la vitesse de fluidisation est plus importante que celle dans un réacteur à lit bouillonnant. Le régime de fluidisation est donc considéré comme turbulent [40]. La vitesse du gaz est telle que la charge solide et le matériau granulaire sortent du gazéifieur avec le gaz de synthèse. Dans ces conditions, un cyclone primaire est nécessaire pour réinjecter le solide dans le réacteur. Le syngaz obtenu peut avoir une quantité considérable de poussières, particules fines et goudrons, provoquant l'encrassement des équipements en aval. La régulation de la fluidisation du lit est complexe. La circulation du solide est régulée selon le besoin du procédé en énergie thermique ou pour maintenir la température inférieure à celle de fusion des cendres.

Ce type de réacteur peut être facilement extrapolable en taille ; il est flexible aux caractéristiques de la charge et le taux de conversion du carbone est élevé. Un désavantage de cette technologie est le risque d'érosion de la surface des matériaux granulaires à cause des hautes vitesses de fluidisation.

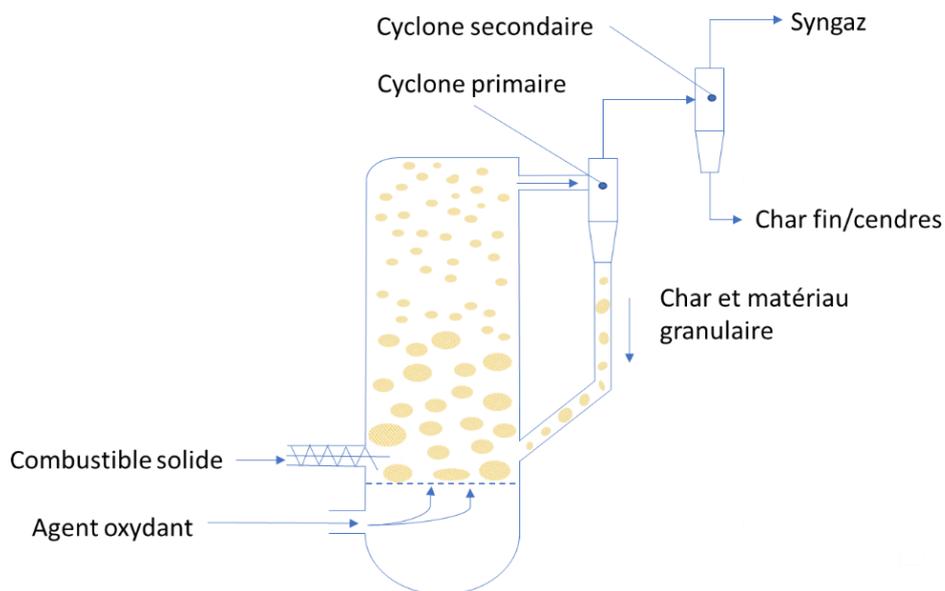


Figure I-12. Gazéifieur à lit fluidisé circulant

I.4.3. Gazéification en lit entraîné

Dans un gazéifieur à lit entraîné (Figure I-13), le combustible solide pulvérisé est mélangé à un agent oxydant à haute pression dans la partie haute du réacteur. Un front de réaction s'établit près de l'entrée du gazéifieur à très haute température (entre 1300 et 1800 °C). Grâce aux hautes températures atteintes, la destruction des goudrons est quasi-totale, et la composition du syngaz

est proche de celle à l'équilibre thermodynamique [17],[33]. Les conditions opératoires des lits à flux entraîné demandent un matériau de construction adéquat. En général, des matériaux réfractaires sont utilisés pour résister aux hautes températures. Cependant, ces matériaux augmentent le temps de démarrage et d'arrêt du réacteur. Ces réacteurs sont conçus pour résister à la fusion des cendres contenues dans la charge. Les cendres fondues s'écoulent sur les parois du réacteur jusqu'en bas du réacteur où elles sont refroidies par un quench à eau et retirées vitrifiées. Une technologie alternative consiste à mettre en place un système de refroidissement des parois. Une partie des cendres fondues se condense sur les parois froides, formant une couche protectrice et isolante des parois. Le reste des cendres fondues s'écoule sur cette couche sans abîmer les parois [33].

Un désavantage de cette technologie est le coût élevé de prétraitement du combustible. En effet, ce type de réacteur nécessite une taille de particules comprise entre 100 μm et 1 mm, avec un taux d'humidité réduit au minimum.

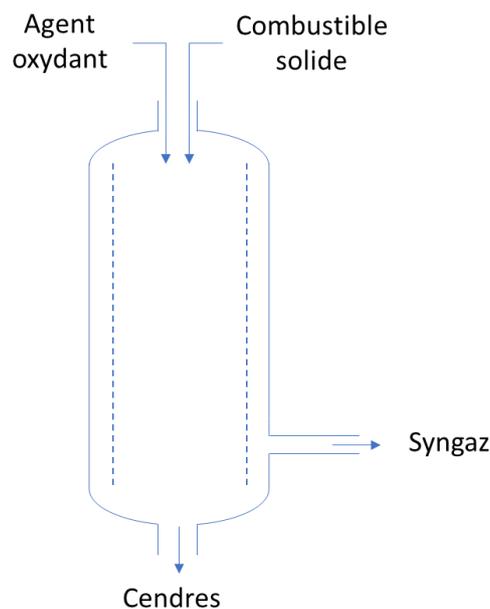


Figure I-13. Gazéifieur à lit entraîné

I.4.4. Gazéification indirecte

Les technologies de gazéification peuvent être aussi classifiées selon le mode d'apport en énergie thermique nécessaire pour les réactions de gazéification.

Les réacteurs où de l'air ou de l'oxygène pur est injecté sont appelés gazéifieurs à oxydation partielle ou réacteurs de gazéification directe (autothermique). Dans ce cas, les réactions

d'oxydation fournissent la chaleur nécessaire. L'utilisation de l'air comme agent oxydant présente le désavantage de diluer le syngaz du fait de la présence de l'azote. Le PCI moyen du syngaz obtenu est compris entre 4 et 6 MJ/Nm³ [17],[37]. Le PCI peut être amélioré jusqu'à 14 MJ/Nm³ si de l'oxygène pur est utilisé [17], mais la production de l'oxygène pur augmente le prix de construction et d'exploitation de l'installation.

Au contraire, lors de la gazéification indirecte (allothermique), l'apport de chaleur est fait à partir d'un transfert thermique par contact (chauffage des parois par exemple) ou en introduisant un vecteur de chaleur. Dans ce cas, le syngaz n'est pas dilué par la présence d'azote ou de dioxyde de carbone, co-produit des réactions d'oxydation. Le pouvoir calorifique supérieur (PCS) du syngaz obtenu dans ces conditions est de 17 à 19 MJ/Nm³ [41]. Les configurations les plus courantes sont composées de 2 réacteurs qui séparent les étapes de combustion et de réduction (Figure I-14). Dans un premier réacteur, le combustible est mélangé à de la vapeur d'eau et à un matériau granulaire. Le résidu solide et le matériau granulaire sont ensuite injectés dans un deuxième réacteur alimenté par de l'air pour réaliser la combustion. Le matériau chaud est ensuite réinjecté dans le premier réacteur de gazéification pour fournir de la chaleur et maintenir le procédé. Dans ces conditions, la température de gazéification est limitée par la température de combustion atteinte dans le deuxième réacteur. Les températures d'opération des réacteurs de gazéification indirecte peuvent aller de 650 °C jusqu'à 1500 °C. La majorité des réacteurs sont opérés à des températures comprises entre 650 et 850 °C à cause de la complexité de l'introduction de matière chaude.

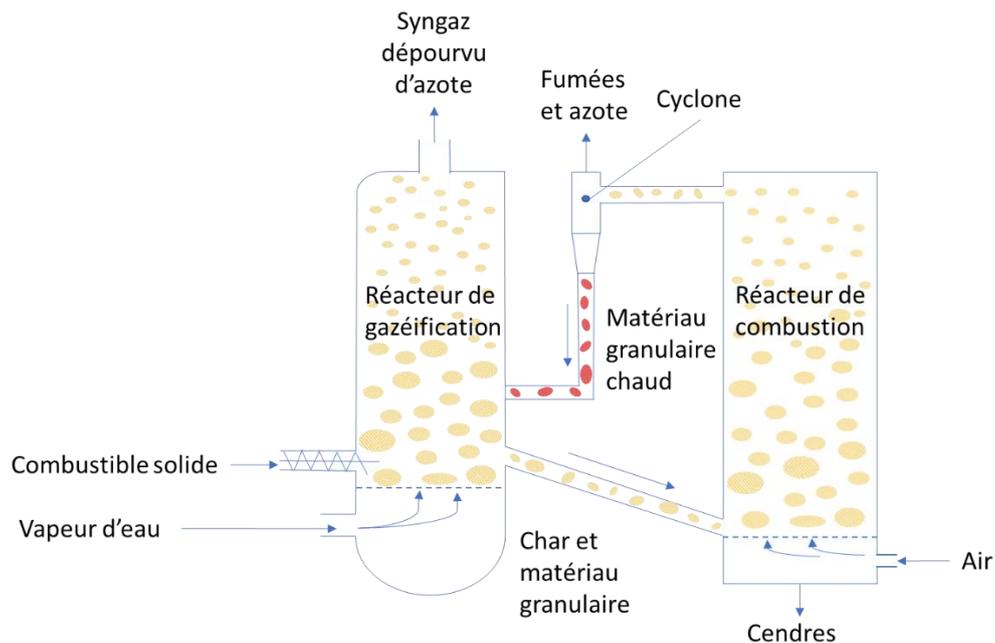


Figure I-14. Gazéification indirecte à deux étages

I.4.5. Technologies en développement

D'autres technologies cherchent à limiter les étapes de séparation et de mise aux spécifications du syngaz. Dans cette optique, l'université de Chalmers (Göteborg, Suède) étudie une configuration où le matériau granulaire est remplacé par un matériau permettant de capter le CO₂ [42]. De l'oxyde de calcium (CaO) capte le CO₂ à l'intérieur du réacteur de gazéification et modifie l'équilibre de la réaction du gaz à l'eau ($\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$) produisant un gaz de synthèse avec un contenu en hydrogène d'environ 60 % massique et une teneur faible en goudrons puisque le calcium a un effet catalytique sur le craquage [43].

La gazéification étagée est aussi développée : les étapes de séchage, pyrolyse, combustion, gazéification sont réalisées dans des réacteurs différents. Dans ces configurations, la température est mieux maîtrisée à chaque étape, optimisant la conversion thermochimique. La réinjection de chaleur fatale dans le procédé est aussi possible, améliorant le rendement énergétique. De plus, l'utilisation de différents agents oxydants améliore la qualité du syngaz. Par exemple, Bioshare Cortus Energy a développé la technologie WoodRoll® [44]. Le principe de ce procédé est illustré dans la Figure I-15. La gazéification étagée WoodRoll® est composée des étapes suivantes :

- Le combustible est séché et pyrolysé dans 2 réacteurs différentes (étapes 1 et 2).
- Les produits de la pyrolyse sont séparés. D'une part, les produits volatils sont brûlés pour alimenter en chaleur le réacteur de gazéification (étape 3). D'autre part, le char est broyé avant d'être injecté dans le réacteur de gazéification (étape 4).
- Le refroidissement du syngaz permet de produire de la vapeur d'eau utilisée comme agent de gazéification (étape 5).
- La chaleur fatale de gazéification est valorisée dans les étapes de séchage et de pyrolyse (étape 6).

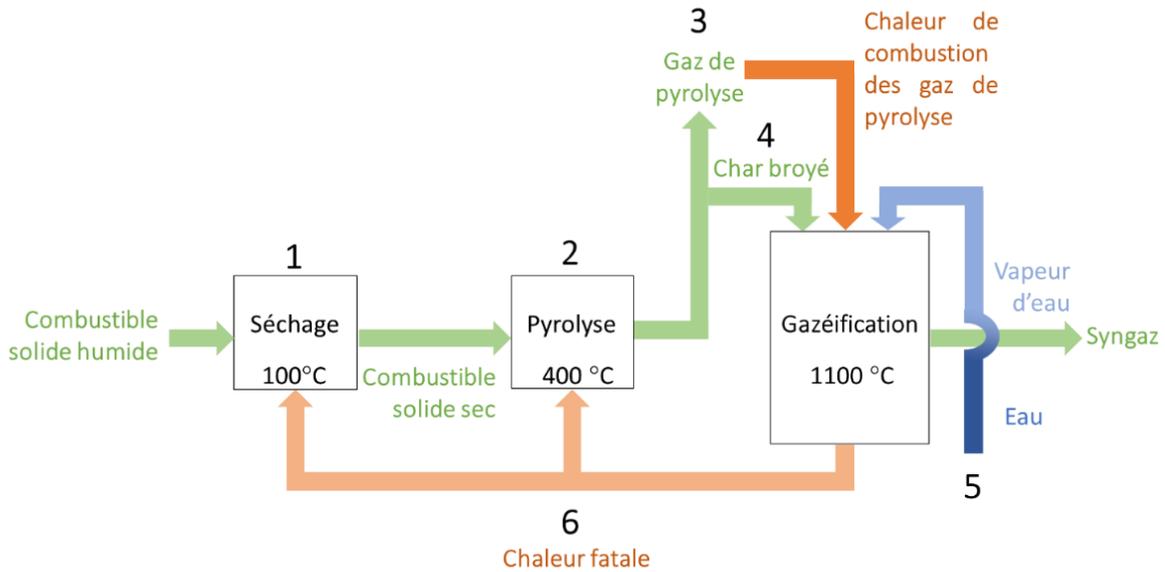


Figure I-15. Principe de gazéification étagée d'après [44]

I.5. Positionnement, objectifs et enjeux de la thèse

Comme mentionné dans l'introduction, les gazéificateurs à lit fixe co-courants sont les mieux adaptés aux enjeux territoriaux liés à la valorisation des déchets. Dans ces réacteurs, le taux de conversion est élevé mais la conversion homogène du combustible est difficile à atteindre (cf. § I.4.1.1). En effet, au fur et à mesure de la conversion, la morphologie des particules et du lit est modifiée et peut faire l'objet de transformations irrégulières. Le rétrécissement des particules se produit pendant le séchage et la pyrolyse, mais plus encore pendant les étapes de combustion et de gazéification, en raison des réactions hétérogènes. D'autres modifications de la structure des particules sont dues à la fissuration, au gonflement ou à la fragmentation [45]. À l'échelle du lit, au fur et à mesure de la consommation des particules de combustible, la porosité du lit est modifiée, provoquant parfois des défauts d'écoulement tels que des effondrements du lit (collapse) ou des passages préférentiels (channeling). Ces phénomènes affectent l'efficacité et le fonctionnement du procédé. Ainsi, différents problèmes opérationnels affectant les gazéificateurs à lit fixe ont été rapportés dans la littérature : passages préférentiels [34],[32], voûtage (bridging, arching) du combustible [46],[47],[48], tassement (compaction) du lit [49],[50],[51], effondrement du lit [52],[53]. Certains de ces dysfonctionnements, tels que les passages préférentiels et le voûtage, sont observés en particulier pour les combustibles de faible masse volumique apparente [54]. Une conséquence de ces problèmes est l'augmentation de la perte de charge.

Ainsi, pour améliorer le fonctionnement des gazéificateurs à lit fixe co-courant, de nombreuses adaptations de la conception ont été testées. Par exemple, le voûtage et le channeling dus aux charges de faible masse volumique peuvent être évités en utilisant une trémie conique avec un système d'alimentation vibrant [55], un mécanisme vibrant en haut du réacteur [56], une trémie à secousses [57], un agitateur ou un mélangeur à l'intérieur du gazéificateur [58],[59] ou une alimentation en air à trois étages [60]. Des systèmes d'évacuation ont également été développés : des grilles à secousses [61],[62],[63], des grilles vibrantes [64], des grilles rotatives [59], ou des grilles à mouvement alternatif [58].

Par ailleurs, la modélisation numérique est un outil puissant pour contribuer à la compréhension et à l'analyse des processus. Elle aide également à la conception et à l'optimisation. Elle peut fournir des informations sur une gamme de conditions beaucoup plus large que celle que l'on peut obtenir expérimentalement et aide à analyser le comportement anormal d'un gazéificateur lorsqu'il se produit. Pour cela, le principal objectif de cette thèse est de pouvoir proposer un modèle numérique fiable de gazéification en lit fixe, prenant en compte non seulement les réactions chimiques et les transferts de chaleur et de matière, mais également certains phénomènes physiques généralement observés au cours du processus de gazéification, ainsi que les caractéristiques de la matière traitée. A cet effet, il était nécessaire de mettre au point un modèle en régime transitoire, décrivant la diminution de taille des particules au cours de la gazéification. En conséquence, la prise en compte du tassement du lit était un enjeu majeur.

Chapitre II - Modélisation de la gazéification en lit fixe : état de l'art

La compréhension des phénomènes fortement couplés mis en jeu dans un réacteur à lit fixe nécessite leur description mathématique à plusieurs échelles représentatives :

- Les études à l'échelle du pore permettent la détermination des cinétiques intrinsèques des réactions solide-gaz de gazéification. Elles prennent en compte l'évolution de la structure des pores en fonction de la conversion.
- Le passage à l'échelle de la particule permet d'étudier les mécanismes de conversion et l'évolution morphologique des particules (porosité, taille) pendant la gazéification.
- Le passage à l'échelle du réacteur permet quant à lui l'analyse des grandeurs physiques macroscopiques telles que la perte de charge, l'écoulement gazeux et la température. La modélisation du réacteur de gazéification à partir d'un sous-modèle de conversion particulaire permet d'étudier l'évolution morphologique du lit, notamment lors du phénomène de tassement.

Un récapitulatif des phénomènes et de leurs échelles représentatives est illustré sur la Figure II-1.

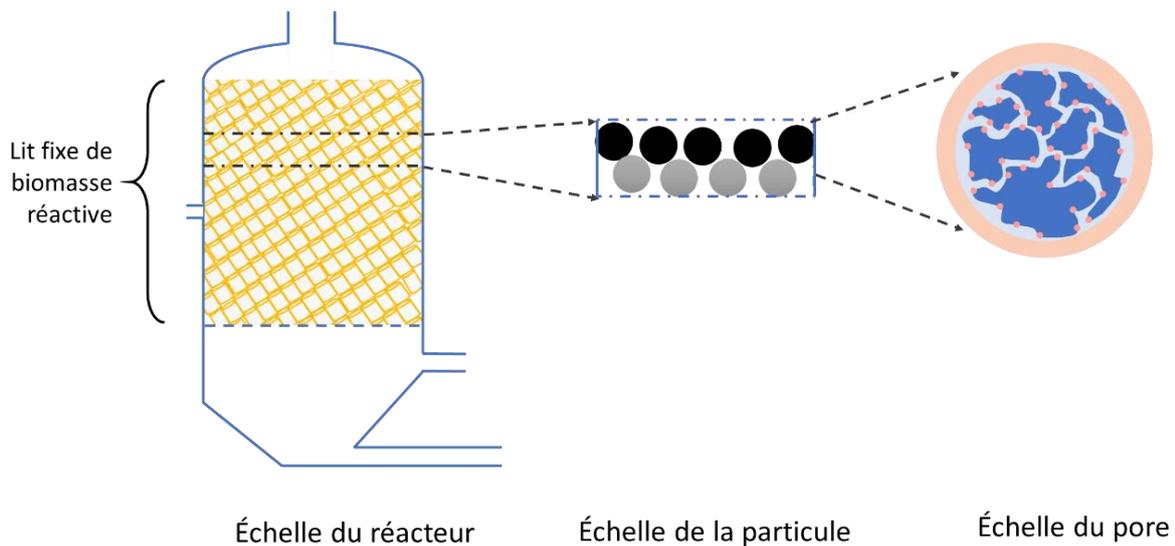


Figure II-1. Représentation des différentes échelles de modélisation de la gazéification

Dans ce chapitre, la modélisation de la gazéification à l'échelle du réacteur et à l'échelle de la particule est décrite. De plus, la modélisation du tassement fait l'objet d'un paragraphe dédié.

II.1. Modélisation à l'échelle du réacteur

A l'échelle du réacteur, il existe plusieurs types d'approches :

- Les modèles à l'équilibre : cette approche permet de prédire la composition finale du gaz de synthèse en estimant la conversion maximale des réactifs. Le système est à son état le plus stable lorsque l'entropie atteint son maximum, ce qui minimise l'énergie libre de Gibbs. La plupart de ces modèles considèrent deux zones de réaction : ils supposent que les processus de séchage, pyrolyse et oxydation sont réunis dans une seule zone et se concentrent sur les réactions de réduction du char. Des modèles à l'équilibre considérant trois zones ont également été proposés. Dans ce type de modèles 0D, chaque zone du réacteur est généralement considérée comme parfaitement isolée, agitée et isotherme. Avec ce type de modèles, l'influence de la conception du réacteur sur la production de syngaz ne peut pas être étudiée.
- Les modèles cinétiques : ces modèles incluent des schémas réactionnels et leur cinétique, le temps de séjour du solide, l'hydrodynamique et certains paramètres géométriques du réacteur comme sa longueur. Grâce à cette approche, le dimensionnement du réacteur peut être étudié. En général, il s'agit de modèles 1D qui supposent un écoulement piston. Dans les modèles cinétiques, les phases solide et gazeuse sont considérées comme continues, suivant une approche eulérienne. Les deux phases sont supposées coexister en tout point de l'espace et à chaque instant.
- CFD (Computational Fluid Dynamics) : dans cette approche, le réacteur de gazéification est assimilé à un écoulement multiphasique et réactif, généralement étudié en 2D ou 3D. Ces modèles se basent sur la résolution des équations de conservation de la matière (espèces gazeuses et solides), de l'énergie, et de la quantité de mouvement, discrétisées dans un domaine de calcul représentant le réacteur. Des sous-modèles de particules peuvent être inclus pour décrire les gradients. On trouve également dans la littérature une approche lagrangienne de la phase solide, couplée à une représentation eulérienne. Elle consiste à suivre la trajectoire de chaque particule à l'intérieur du réacteur, les gradients de température et de concentration.

Dans cette partie, nous présentons la mise en équation générale des phénomènes étudiés à l'échelle du réacteur dans les modèles cinétiques et CFD.

II.1.1. Conservation de la matière

II.1.1.1. Phase gaz

L'équation bilan d'une espèce gazeuse i peut être établie sous la forme donnée par l'Eq. (II-1) :

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \nabla(\rho_i U_g) = \nabla \left(\bar{\rho}_g D_i \nabla \frac{\rho_i}{\bar{\rho}_g} \right) + S_{Ri} \quad (\text{II-1})$$

Où :

i représente une espèce gazeuse ;

ρ_i est la concentration massique de i en $kg_i \cdot m_{gaz}^{-3}$;

t est le temps en s ;

U_g est la vitesse du gaz en $m \cdot s^{-1}$;

$\bar{\rho}_g$ est la masse volumique du gaz en $kg_{gaz} \cdot m_{gaz}^{-3}$;

D_i représente la diffusivité de l'espèce i , calculée à partir de la loi de Fick en $m^2 \cdot s^{-1}$;

S_{Ri} est le terme source de l'espèce i (il correspond à la production et/ou à la consommation de l'espèce i par des réactions chimiques) en $kg_i \cdot m_{gaz}^{-3} \cdot s^{-1}$.

II.1.1.2. Phase solide

La phase solide est caractérisée par 3 espèces : l'humidité notée m , le combustible solide f et le char c . Elle est couramment modélisée comme une phase mobile se déplaçant à une vitesse d'écoulement U_s et subissant des transformations chimiques représentées par les termes sources S_{Ri} . Le bilan de matière pour chaque espèce solide i s'écrit (Eq. (II-2)) :

$$\frac{\partial \tilde{\rho}_i}{\partial t} + \nabla(U_s \tilde{\rho}_i) = S_{si} \quad (\text{II-2})$$

Où :

i représente une espèce solide (m, f, c) ;

$\tilde{\rho}_i$ est la concentration massique de i en $kg_i \cdot m_{solide}^{-3}$;

U_s est la vitesse d'écoulement du solide dans le réacteur en $m \cdot s^{-1}$;

S_{si} est le terme source de l'espèce solide i (ensemble des transformations chimiques).

D'autres modèles étudiant la transformation thermo-chimique de combustibles alternatifs par combustion ou par gazéification ne prennent pas en compte le terme de transport dans les bilans de matière des espèces solides Eq. (II-3). La mise en équation du transport du solide dans ces modèles est explicitée dans la section II.3.2.

$$\frac{\partial \tilde{\rho}_i}{\partial t} = S_{si} \quad (\text{II-3})$$

II.1.2. Transformations thermochimiques

Les modèles de réacteurs à lit fixe décrivent les étapes de transformation thermochimique à l'aide de schémas réactionnels qui permettent aux zones réactives de s'établir en fonction des conditions opératoires. La production et/ou la consommation d'espèces solides ou gazeuses intervient dans les bilans de matière (termes S_{Ri} et S_{Si}). Nous présentons ci-après les schémas réactionnels les plus couramment utilisés et nous proposons de consulter [65] où un récapitulatif des cinétiques des réactions est présenté.

II.1.2.1. Séchage

Cette étape consiste à transformer l'humidité du combustible en vapeur d'eau. C'est l'une des étapes les plus énergivores de la gazéification puisque la chaleur sensible et la chaleur latente doivent être apportées pour chauffer le solide et évaporer l'humidité, respectivement. La vapeur d'eau produite est un réactif important des réactions de reformage des gaz et de gazéification du char explicitées au paragraphe II.1.2.4. Comme la Figure II-2 le montre, le processus de séchage commence par la chauffe de la surface de la particule. Ensuite, la chaleur se propage vers le centre de la particule, créant un gradient thermique.

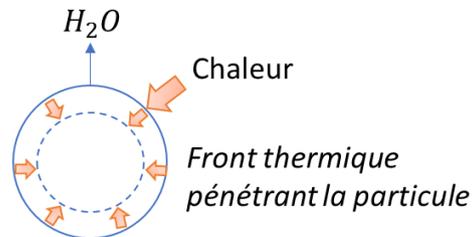


Figure II-2. Séchage d'une particule solide

Une zone de séchage s'établit dans le haut du réacteur. Trois approches sont utilisées dans la littérature pour modéliser le séchage :

- Modèle de dissipation thermique : le séchage est contrôlé thermiquement et ne commence que lorsque la température atteint la température d'évaporation de l'eau T_{evap} . La vitesse de séchage R_d s'exprime alors selon l'Eq. (II-4).

$$R_d = \begin{cases} \frac{(T - T_{evap})\tilde{\rho}_m C_{pm}}{\Delta H_{evap} \Delta t}, & \text{si } T \geq T_{evap} \\ 0, & \text{si } T < T_{evap} \end{cases} \quad (\text{II-4})$$

Où :

R_d est la vitesse de séchage en $kg_{eau} \cdot m_{solide}^{-3} \cdot s^{-1}$;

T est la température en K ;

T_{evap} est la température d'évaporation de l'eau en K ;

$\tilde{\rho}_m$ est la concentration massique d'eau en $kg_{eau} \cdot m_{solide}^{-3}$;

C_{pm} est la capacité thermique massique de l'eau en $J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$;

ΔH_{evap} est l'enthalpie d'évaporation de l'eau en $J \cdot kg^{-1}$.

- Modèle cinétique : l'évaporation de l'humidité est assimilée à une réaction chimique (Eq. (II-5)) et sa vitesse R_d est calculée à l'aide d'une loi d'Arrhenius Eq. (II-6) selon une cinétique du 1^{er} ordre. Cette méthode a été adoptée dans [66],[52],[67],[68], . Les coefficients A_d et E_d couramment employés dans la littérature sont récapitulés dans [65].



$$R_d = \tilde{\rho}_m k_d = \tilde{\rho}_m A_d \exp\left(\frac{-E_d}{R_g T_s}\right) \quad (II-6)$$

k_d est la constante de vitesse de la réaction de séchage en s^{-1} ;

A_d est le facteur pré-exponentiel en s^{-1} ;

E_d est l'énergie d'activation en $J \cdot mol^{-1}$;

R_g est la constante des gaz parfaits en $J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$;

T_s est la température du solide en K .

- Modèle à l'équilibre : dans cette approche, l'eau liquide (contenue dans les pores du solide, de concentration $C_{m,s}$) est considérée comme étant à l'équilibre avec la vapeur d'eau (dans les pores du lit, de concentration $C_{m,g}$). Dans les modèles à l'équilibre, la vitesse de séchage dépend du transfert de chaleur (puissance \dot{Q}_{cr}) et de matière (coefficient k_m) dans les pores du combustible Eqs. (II-7), (II-8) et (II-9). Cette approche est utilisée dans [69],[70],[71],[72].

$$R_{evap} = A_s k_m (C_{m,s} - C_{m,g}) \quad si \quad T_s < 100 \text{ } ^\circ C \quad (II-7)$$

$$R_{evap} = \frac{\dot{Q}_{cr}}{\Delta H_{evap}} \quad \text{si } T_s = 100 \text{ } ^\circ\text{C} \quad (\text{II-8})$$

$$\dot{Q}_{cr} = A_s h_{sg} (T_g - T_s) + \epsilon \sigma A_s (T_\infty^4 - T_s^4) \quad (\text{II-9})$$

Où :

R_{evap} est la vitesse de séchage en $kg_{eau} \cdot s^{-1}$;

A_s est la surface d'échange du solide (de la particule) en m^2 ;

k_m est le coefficient de transfert de matière en $m \cdot s^{-1}$;

$C_{m,s}$ est la concentration en eau à la surface du solide en $kg_{eau} \cdot m^{-3}$;

$C_{m,g}$ est la concentration en eau en phase gaz en $kg_{eau} \cdot m^{-3}$;

\dot{Q}_{cr} est la puissance calorifique reçue par le solide en W ;

h_{sg} est le coefficient de transfert de chaleur convectif en $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$;

T_g est la température du gaz en K ;

ϵ est l'émissivité (adimensionnelle) ;

σ est la constante de Stefan-Boltzmann en $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-4}$;

T_∞ est la température d'environnement radiatif en K .

II.1.2.2. Pyrolyse

La pyrolyse inclut une série de processus et de réactions combinés, résultant en la libération de gaz dans l'atmosphère entourant la particule (Figure II-3). Les produits issus de la pyrolyse conditionnent le déroulement des réactions dans les zones d'oxydation et réduction. Par conséquent, un modèle fiable de dévolatilisation est fondamental lors de la modélisation des réacteurs de gazéification.

Combustible sec + chaleur → gas volatils + goudrons

*CO, CO₂, H₂, H₂O,
CH₄, goudrons*

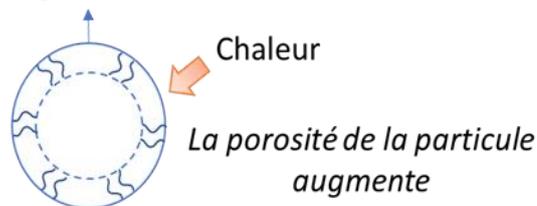
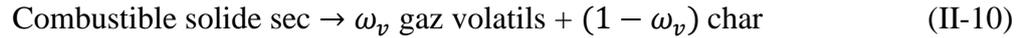


Figure II-3. Pyrolyse d'une particule solide

Les modèles les plus répandus de pyrolyse ont été développés pour de la biomasse et peuvent être classifiés en 3 catégories principales :

- Pyrolyse en une étape : c'est le modèle le plus simple de pyrolyse. Il suppose que la libération d'espèces volatiles (CO , CO_2 , H_2 , CH_4 , C_xH_y , $\text{C}_m\text{H}_n\text{O}_l$) se fait à partir d'une seule réaction globale Eq. (II-10). La vitesse de pyrolyse $\frac{dv}{dt}$ s'exprime alors selon l'Eq. (II-11).



$$\frac{dv}{dt} = A_{pv} \exp\left(-\frac{E_p}{R_g T_s}\right) (v_\infty - v) \quad (\text{II-11})$$

Dans l'équation (II-11) :

$\frac{dv}{dt}$ est la vitesse de la réaction de pyrolyse en s^{-1} ;

A_{pv} est le facteur pré-exponentiel en s^{-1} ;

E_p est l'énergie d'activation en $J \cdot mol^{-1}$;

v est la quantité de matière volatile dans le solide à un instant t (adimensionnelle) ;

v_∞ représente le rendement final de produit volatil attendu (adimensionnel).

- Pyrolyse avec réactions parallèles compétitives : ce modèle est connu pour sa flexibilité et sa précision pour décrire la dévolatilisation [65]. Le modèle inclut trois réactions du premier ordre produisant en parallèle des gaz volatils, des goudrons et du char (Figure II-4). Des auteurs ont proposé un modèle permettant le calcul de la composition des produits de pyrolyse en réalisant un bilan élémentaire sur C, H et O à partir de la composition initiale du combustible solide et de corrélations empiriques. Dans [73], les produits de la pyrolyse sont déterminés à partir des fractions de cellulose, hémicellulose et lignine du combustible initial.

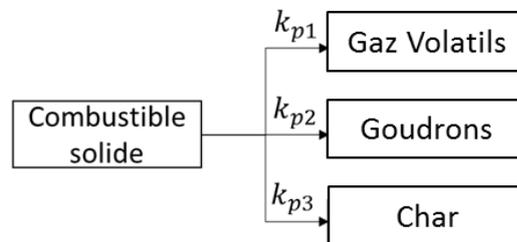


Figure II-4. Schéma réactionnel de pyrolyse avec réactions compétitives

- Pyrolyse avec réaction de craquage des goudrons : les goudrons produits à partir d'une première étape de pyrolyse sont ensuite convertis en molécules plus petites (sous forme de gaz légers et d'aromatiques) et en char lorsqu'ils sont exposés à des températures

élevées. La Figure II-5 schématise le cas où la deuxième étape consiste en deux réactions parallèles compétitives.

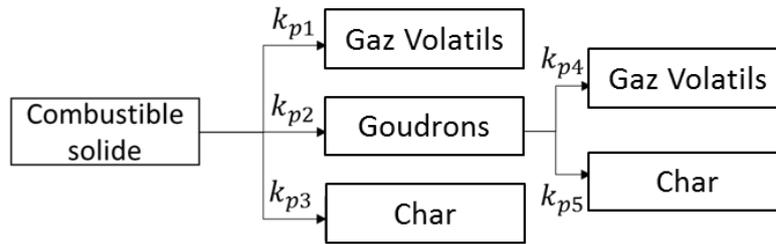


Figure II-5. Schéma réactionnel de pyrolyse avec réaction de craquage

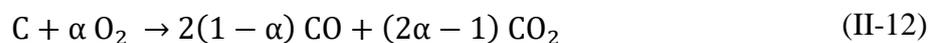
Les principaux gaz permanents produits lors de la pyrolyse et inclus dans les modèles de gazéification sont H_2 , CO , CO_2 et des hydrocarbures légers, principalement du CH_4 ou des composés sous la forme C_xH_y . Les goudrons quant à eux sont généralement représentés par une seule espèce, sous la forme $C_mH_nO_l$ [74],[67]. Par exemple, la notation $C_6H_{6,2}O_{0,2}$ est adopté dans [73],[67]. D'autre part, la composition finale du char produit par pyrolyse varie selon les études. Soit il se compose uniquement de carbone, soit il est représenté sous la forme $C_xH_yO_z$.

II.1.2.3. Oxydation

Cette étape est caractérisée par la combustion partielle des produits volatils, des goudrons et du char. Dans cette zone, le schéma réactionnel couramment employé est constitué des réactions homogènes suivantes pour les produits volatils et les goudrons :

Réaction de combustion de l'hydrogène	$H_2 + 0,5 O_2 \rightarrow H_2O$
Réaction de combustion du monoxyde de carbone	$CO + 0,5 O_2 \rightarrow CO_2$
Réaction de combustion du méthane	$CH_4 + 1,5 O_2 \rightarrow CO + 2 H_2O$
Réaction de combustion des hydrocarbures légers	$C_xH_y + \left(\frac{x}{2} + \frac{y}{4}\right) O_2 \rightarrow x CO + \frac{y}{2} H_2O$
Réaction de combustion des goudrons	$C_mH_nO_l + \left(\frac{m}{2} - \frac{l}{2}\right) O_2 \rightarrow m CO + \frac{n}{2} H_2$

Dans le cas où le char est composé de carbone uniquement, les produits de la réaction hétérogène de combustion du char sont CO et CO_2 selon le degré d'oxydation du char. souvent La détermination de la valeur α sont souvent données sous forme d'une loi d'Arrhénius et sont donc dépendants de la température [65].



II.1.2.4. Réduction

La zone de réduction est le siège des réactions homogènes et hétérogènes responsables de la production des composés d'intérêt dans le syngaz : le monoxyde de carbone et l'hydrogène. Les réactions hétérogènes ayant lieu dans cette zone sont :

Réaction de Boudouard	$C + CO_2 \rightarrow 2 CO$
Réaction de gazéification à la vapeur d'eau	$C + H_2O \rightarrow CO + H_2$
Réaction d'hydrogénation du char	$C + 2 H_2 \rightarrow CH_4$

Les composés de la phase gazeuse réagissent entre eux, modifiant la composition du syngaz, à partir des réactions homogènes suivantes :

Réaction du gaz à l'eau	$CO + H_2O \leftrightarrow CO_2 + H_2$
Réaction de méthanation	$CO + 3 H_2 \rightarrow CH_4 + H_2O$
Réduction du méthane	$CH_4 + H_2O \rightarrow CO + 3 H_2$
Réduction des goudrons	$C_6H_{6,2}O_{0,2} + 5,8 H_2O \rightarrow 6 CO + 8,9 H_2$

La réaction du gaz à l'eau permet d'augmenter la teneur en hydrogène. La méthanation est une réaction qui est favorisée par des pressions plus élevées que la pression atmosphérique.

II.1.3. Conservation de la quantité de mouvement

Le lit est considéré comme un milieu poreux constitué d'un empilement de particules représentant la matrice solide et d'espaces vides appelés pores. Nous notons la porosité du lit ε_b : il s'agit de la porosité macroscopique également appelée macroporosité, qui se différencie de la porosité d'une particule.

La porosité d'un milieu poreux peut être définie comme le rapport entre le volume occupé par les pores et le volume total du matériau Eq. (II-13).

$$\varepsilon_b = \frac{\text{Volume des vides}}{\text{Volume total}} = 1 - \frac{\text{Volume du solide}}{\text{Volume total}} \quad (\text{II-13})$$

D'autre part, le milieu poreux est caractérisé par sa capacité à être traversé par un fluide, appelée perméabilité et notée κ . Elle est calculée à partir de corrélations empiriques. La corrélation de Kozeny-Carman Eq. (II-14) est couramment utilisée [49].

$$\kappa = \frac{dp^2 \varepsilon_b^3}{180(1 - \varepsilon_b)^2} \quad (\text{II-14})$$

Où :

κ est la perméabilité du lit en m^2 ;

d_p est le diamètre des particules en m .

Ces paramètres (ε_b et κ) dépendent de la taille des particules, qui est contrôlée par le taux de conversion. Leur évolution a un impact sur l'écoulement gazeux, la perte de charge et les transferts thermiques entre la phase solide et la phase gazeuse. Cela justifie la nécessité d'inclure un modèle particulaire.

A l'échelle du lit, le gaz s'écoule dans les pores du milieu réactif. L'écoulement de la phase gazeuse dans un gazéifieur à lit fixe est généralement décrit par la loi de Darcy [49],[75],[70]. Cette loi permet de calculer le champ de vitesse du gaz U_g d'un écoulement laminaire soumis à un gradient de pression ∇P Eq. (II-15).

$$U_g = -\frac{\kappa}{\mu_g} \nabla P \quad (\text{II-15})$$

Dans l'équation (II-15), μ_g définit la viscosité dynamique du fluide en $Pa \cdot s$.

Dans [76], une relation de Darcy modifiée est utilisée.

$$U_s - U_g = -\frac{\kappa}{\mu_g} \frac{\partial P}{\partial z} \quad (\text{II-16})$$

D'autres auteurs ([69],[77],[52],[67],[78]) utilisent l'équation d'Ergun Eq. (II-17), valable dans des régimes d'écoulement laminaires, transitoires et turbulents. Dans les réacteurs de gazéification, le nombre de Reynolds Re est généralement inférieur à 500. La validité de l'équation d'Ergun est définie pour $0,4 < Re < 1000$.

$$\frac{\Delta P}{L} = \frac{150\mu_g(1 - \varepsilon_b)^2}{dp^2 \varepsilon_b^3} U_g + \frac{1,75\bar{\rho}_g(1 - \varepsilon_b)}{dp \varepsilon_b^3} U_g^2 \quad (\text{II-17})$$

Anca-Couce et al.[79] ont utilisé une équation issue de l'équation Brinkman-Forchheimer. L'équation de Brinkman étend la loi de Darcy pour décrire la dissipation de la quantité de mouvement, de façon similaire à l'équation de Navier-Stokes. Par conséquent, elle est bien adaptée pour modéliser les transitions entre l'écoulement lent dans les milieux poreux, régi par la loi de Darcy, et l'écoulement rapide dans les canaux, décrit par les équations de Navier-Stokes. Cette équation comprend également le terme de traînée de Forchheimer, qui est une traînée visqueuse sur la matrice poreuse, proportionnelle au carré de la vitesse d'écoulement. Ce terme tient compte d'un effet de traînée turbulente inertielle qui entre en jeu pour les

écoulements rapides à travers de grands pores. L'ajout du terme de Forchheimer prend en compte toutes les contributions de traînée que l'équation d'Ergun couvre (e_1, e_2).

$$\frac{\partial U_g \bar{\rho}_g}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho}_g U_g \times U_g) = -\nabla P - (e_1 U_g + e_2 U_g |\overline{U}_g|) \quad (\text{II-18})$$

II.1.4. Conservation de l'énergie

Selon Hobbs *et al.*[80], les transferts thermiques ayant lieu dans les réacteurs à lit fixe sont :

1. La conduction à travers d'une particule solide ;
2. Le transfert thermique par conduction entre les particules en contact ;
3. Le rayonnement entre les particules solides ;
4. Le rayonnement dans la phase gazeuse ;
5. Le rayonnement entre le solide et le gaz ;
6. La conduction dans la phase gazeuse ;
7. L'échange convectif entre la phase solide et la phase gazeuse ;
8. Les échanges dynamiques et statiques de la phase solide avec les parois du réacteur par conduction et rayonnement ;
9. Les échanges dynamiques et statiques de la phase gaz avec les parois du réacteur par convection et rayonnement.

Ces échanges sont illustrés dans la Figure II-6.

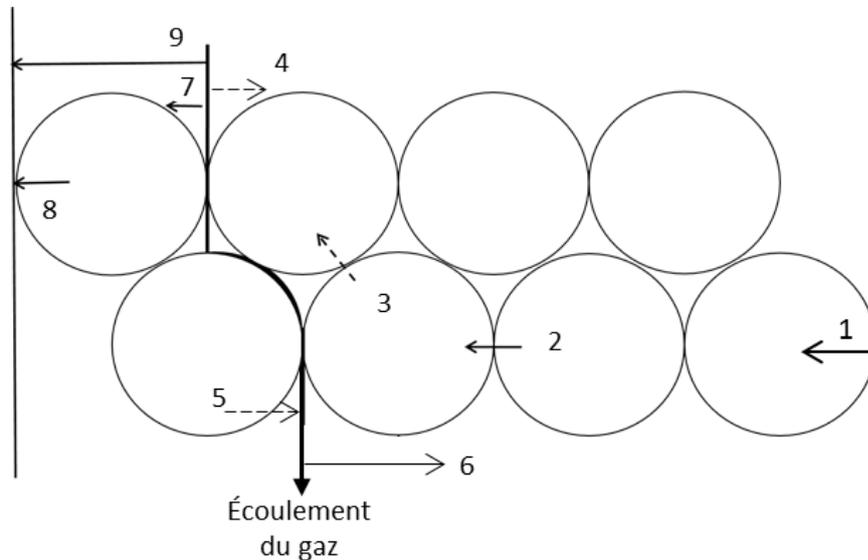


Figure II-6. Modes de transferts thermiques en lit fixe d'après [80]

L'équation de bilan d'énergie prenant en compte ces transferts peut être établie sous la forme donnée dans l'Eq. (II-19) .

$$\sum_i \rho_i C_{pi} \left(\underbrace{\frac{\partial T_x}{\partial t}}_{(1)} + \underbrace{U_x \cdot \nabla T_x}_{(2)} \right) = \nabla \cdot \left(\underbrace{\lambda_x \nabla T_x}_{(3)} + \underbrace{S_x}_{(4)} \right) \quad (\text{II-19})$$

Où :

x est la phase (solide s ou gaz g) ;

C_{pi} est la capacité thermique massique du composé i en $J.kg^{-1}.K^{-1}$;

λ_x est la conductivité thermique de la phase x en $W.m^{-1}.K^{-1}$;

S_x est le terme source en $W.m^{-3}$.

Les différents termes correspondent à l'accumulation (1), la convection (2), le transfert thermique par rayonnement et par conduction (3) et des termes sources (4) correspondant à l'effet thermique des réactions chimiques, et à l'échange de chaleur entre les phases solide et gaz et avec la paroi.

II.2. Modélisation à l'échelle de la particule

L'étude des mécanismes à l'échelle de la particule et de leur mise en équation permet de déterminer la vitesse de conversion et l'évolution morphologique des particules (porosité, taille, fracturation, fragmentation). Cette échelle est la base pour représenter l'ensemble des particules constituant le lit et leurs interactions. Son couplage avec un modèle de réacteur devient particulièrement intéressant lors de l'étude d'un lit composé d'une charge ayant des caractéristiques morphologiques ou propriétés chimiques variées telle que les déchets. Dans cette section, les mécanismes mis en jeu lors de la conversion d'une particule poreuse sont tout d'abord présentés. Ensuite, leur mise en équation pour la détermination des vitesses de réaction est discutée. Finalement, les modèles de conversion généralement implémentés dans la littérature sont décrits.

II.2.1. Mécanismes de conversion d'une particule poreuse

Les réactions hétérogènes sont responsables de la conversion des particules de char en gaz sous l'action d'un réactif gazeux. Elles ont lieu dans les sites actifs de la particule de char où les atomes de carbone disponibles résident. Lors des réactions hétérogènes, plusieurs mécanismes successifs interviennent [81] :

1. Transport du gaz réactif du milieu réactionnel vers la particule (diffusion externe) ;
2. Transport du gaz réactif dans les pores de la particule (diffusion interne) ;

3. Adsorption du gaz réactif sur le site actif ;
4. Réaction chimique entre l'atome de carbone et le gaz réactif pour former un produit adsorbé ;
5. Désorption du gaz produit du site actif ;
6. Transport du gaz produit dans les pores de la particule (diffusion interne) ;
7. Transport du gaz produit de la surface de la particule vers le milieu réactionnel (diffusion externe).

Ces mécanismes sont illustrés dans la Figure II-7.

Ces étapes conditionnent la vitesse de conversion d'une particule pendant le processus de gazéification. Les cinétiques apparentes des réactions hétérogènes résultent d'un couplage entre phénomènes chimiques (étapes 3, 4 et 5) et transfert de matière (étapes 1, 2, 6 et 7).

Les phénomènes chimiques et le transfert de matière sont principalement influencés par les conditions opératoires et les propriétés physiques et chimiques de la particule :

- Propriétés physiques et chimiques de la particule : géométrie (taille, forme), porosité, nombre de sites actifs, composition minérale, composition du char liée aux conditions de pyrolyse.
- Conditions opératoires : température, composition de l'atmosphère réactive, vitesse d'écoulement dans les macropores et pression.

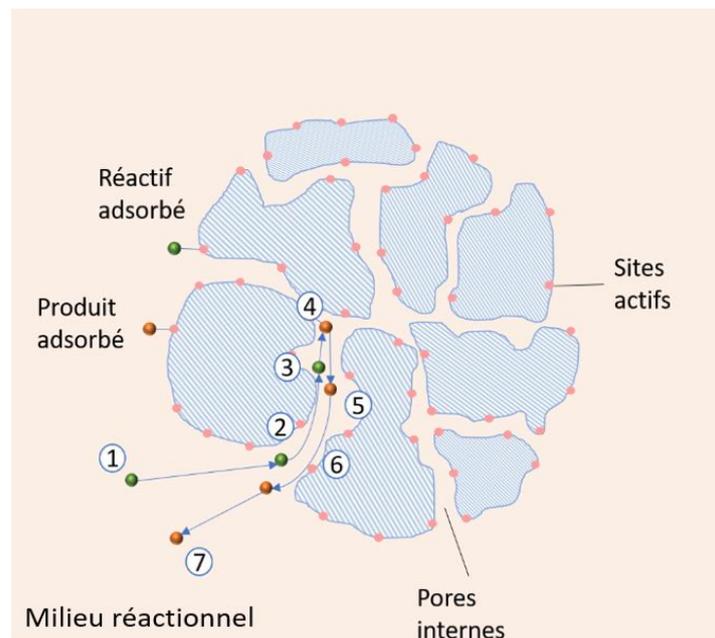


Figure II-7. Mécanismes de conversion d'une particule poreuse

Pour comprendre le déroulement et l'influence de ces étapes sur la vitesse de conversion d'une particule, la théorie des 3 zones a été proposée par Walker *et al.* [82]. Cette théorie permet d'identifier le mécanisme limitant en fonction des régimes de température (Figure II-8).

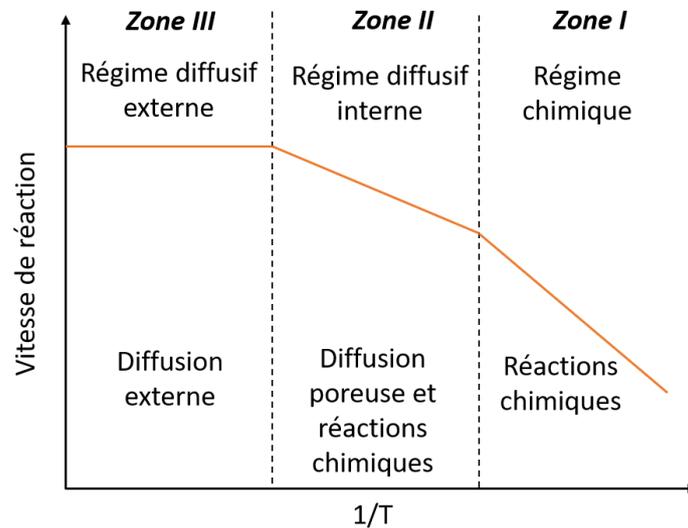


Figure II-8. Théorie des 3 zones

La première zone, correspondant au régime chimique, est caractérisée par des températures faibles, pour lesquelles la conversion de la particule est limitée par les réactions chimiques et non par le transport du réactif gazeux. En effet, les transferts de matière externe (entre le milieu ambiant et la particule) et interne (transport dans les pores) sont plus rapides que les cinétiques des réactions chimiques. Dans ce cas, ce sont les étapes 3, 4 et 5 qui contrôlent la conversion.

Lorsque la température augmente, les cinétiques de réaction et la diffusion interne deviennent plus importantes. Dans ce régime, connu comme le régime diffusif interne, les cinétiques chimiques (étapes 3, 4 et 5) et le transport interne des espèces gazeuses (étapes 2 et 6) limitent la vitesse de conversion de la particule.

Dans la troisième zone, où la température est élevée, le régime diffusif externe s'établit. Les réactions chimiques ont lieu dès que le gaz réactif arrive à la surface de la particule. Le transport du gaz devient donc le phénomène limitant et les étapes 1 et 7 contrôlent la vitesse de la réaction.

II.2.2. Modélisation de la conversion d'une particule

La modélisation de la conversion d'une particule est complexe car de nombreux facteurs influencent les cinétiques des réactions hétérogènes. Dans la littérature, la conversion d'une particule est modélisée selon deux approches :

- Modèles empiriques : ce sont des modèles simples où la vitesse de réaction est exprimée en fonction de plusieurs paramètres tels que la température, la pression et des caractéristiques géométriques de la particule. À partir des données expérimentales, ces facteurs et leur influence sont pris en compte dans les cinétiques de réactions. Certains auteurs ont développé des fonctions prenant en compte les évolutions structurales mises en jeu au cours de la conversion, comme par exemple des phénomènes de fragmentation ou fracturation des particules [83–85].
- Modèles physiques : ces modèles expriment la vitesse de conversion des particules en fonction des cinétiques intrinsèques ainsi que du transport de matière externe et interne.

Puisque les modèles physiques sont des modèles généraux ne nécessitant pas la détermination expérimentale de certains paramètres, ils répondent mieux aux objectifs de la thèse et sont présentés par la suite. Les modèles physiques admettent des simplifications selon le régime de conversion atteint (Figure II-8), donnant lieu à trois types de modèles :

- Les modèles à cœur homogène considérant uniquement la cinétique intrinsèque ;
- Les modèles à cœur rétrécissant se basant sur les transferts externes et la cinétique intrinsèque ;
- Les modèles semi-homogènes décrivant les transferts internes, externes et la cinétique intrinsèque.

Nous proposons tout d'abord une introduction aux phénomènes pris en compte dans les modèles physiques : cinétique intrinsèque et transport de matière.

Cinétiques intrinsèques

Les réactions chimiques observées à l'échelle moléculaire sont décrites par les cinétiques intrinsèques des réactions. La cinétique intrinsèque prend en compte les mécanismes d'adsorption/désorption mis en jeu dans les réactions chimiques. Leur déroulement est décrit par les étapes suivantes (étapes 3, 4 et 5 du § II.2.1) :

1. Le gaz réactif s'adsorbe dans le site actif par le biais de liaisons de Van der Waals ;
2. Le réactif gazeux réagit avec l'atome de carbone constituant le site actif ;
3. Le gaz produit est désorbé pour laisser la place à un nouvel atome de carbone.

La constante de vitesse des cinétiques intrinsèques est généralement décrite par la loi d'Arrhenius Eq. (II-21).

$$R_j = A_j \exp\left(\frac{-E_j}{R_g T_s}\right) \quad (\text{II-20})$$

Certains auteurs définissent un facteur multiplicatif, appelé Facteur de Réactivité du Char (FRC), qui représente la réactivité du char Eq. (II-21). Le FRC est lié au nombre de sites actifs dans la particule, qui augmente suite à la diminution de la taille de la particule et à l'augmentation de sa porosité. Plus le FRC est élevé, plus la réaction est favorisée [73], [86]. Dans certaines études, le FRC est supposé constant (FRC = 10 ou 1000) dans la zone de réduction [77], [86] ; dans d'autres, il varie linéairement ou exponentiellement pour une prédiction plus fine du profil de température dans cette zone [87].

$$k_j' = \text{FRC } A_j \exp\left(\frac{-E_j}{R_g T_s}\right) \quad (\text{II-21})$$

Transport de matière

Le transport externe des réactifs gazeux correspond au transfert de matière entre le milieu réactionnel et la surface de la particule par convection et/ou diffusion. Le coefficient de diffusion d'un réactif gazeux i , D_i , dépend de la température du gaz T_g et est généralement calculée à l'aide de l'équation (II-22) [65].

$$D_i(T_g) = D_i^0(T_0) * \left(\frac{T_g}{T_0}\right)^{1,81} \quad (\text{II-22})$$

Où :

$D_i(T_g)$ est le coefficient de diffusion du gaz i à la température T_g en $m^2 \cdot s^{-1}$;

$D_i^0(T_0)$ est le coefficient de diffusion du gaz i à la température normale $T_0 = 273,15 \text{ K}$ et à la pression normale (1 atm) :

$$D_i^0(T_0) = 2 \times 10^{-5} m^2 \cdot s^{-1} \quad (\text{II-23})$$

Un coefficient de transfert de matière k_m (en $m \cdot s^{-1}$) est utilisé pour décrire le transport de matière externe. Il est calculé à l'aide des équations (II-24), ((II-25), ((II-26) et ((II-27).

$$k_m = \frac{D_i}{d_p} Sh \quad (\text{II-24})$$

$$Sh = 2 + 1,1 * Sc^{1/3} * Re^{0,6} \quad (\text{II-25})$$

$$Re = \frac{\bar{\rho}_g U_g d_p}{\mu_g} \quad (\text{II-26})$$

$$Sc = \frac{\mu_g}{\bar{\rho}_g D_i} \quad (\text{II-27})$$

Où :

Sh est le nombre de Sherwood (adimensionnel) ;

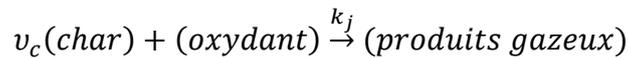
Re est le nombre de Reynolds (adimensionnel) ;

Sc est le nombre de Schmidt (adimensionnel) ;

Le transport interne décrit la diffusion des réactifs gazeux dans le réseau de pores jusqu'à un site actif. Dans les cas où ce phénomène est modélisé, il peut être simplifié grâce à l'utilisation d'un terme de diffusion effective qui prend en compte les effets de la structure poreuse.

II.2.2.1. Modèles à cœur homogène

Le modèle à cœur homogène met en équation la transformation d'une particule sous un régime chimique (zone I de la théorie des 3 zones, Figure II-8). Le régime chimique est caractérisé par des températures faibles, où les réactions chimiques sont lentes par rapport aux phénomènes de transport. Dans ces conditions, comme illustré sur la Figure II-9, la concentration du réactif gazeux i (C_i) à l'intérieur et à l'extérieur de la particule est homogène puisque le gaz diffuse dans la particule avant d'être consommé. La conversion de la particule est également homogène, résultant en une diminution uniforme de sa masse volumique (ρ_p), tout en conservant son diamètre (d_p) constant. La cinétique apparente de la réaction hétérogène est donc exprimée uniquement à partir de la cinétique intrinsèque. Si l'on considère la réaction d'oxydation du char (réaction j) suivante :



La cinétique apparente s'exprime selon l'équation (II-28)).

$$r_{eff,j} = k_j v_c M_c A_s C_i \quad (II-28)$$

$r_{eff,j}$ est la vitesse apparente de consommation du char dans la réaction j en $kg_{char} \cdot s^{-1}$;

k_j est la constante de vitesse intrinsèque de la réaction j , exprimée en $m \cdot s^{-1}$;

v_c est le coefficient stœchiométrique des molécules de char consommées par la réaction, en $mol_{char} \cdot mol_{oxydant}^{-1}$;

M_c est la masse molaire du char, en $kg \cdot mol^{-1}$;

A_s représente la surface réactive (de la particule) en m^2 ;

C_i correspond à la concentration molaire de l'espèce gazeuse i oxydante (ou réductrice dans le cas d'une réaction de réduction) en $mol \cdot m_{gaz}^{-3}$ (en gazéification, les espèces gazeuses réactives sont : O_2, H_2, H_2O, CO_2).

Il faut remarquer que la cinétique apparente s'exprime en fonction de la surface de la particule. En effet, cette simplification permet de contourner la difficulté, rencontrée dans les modèles à l'échelle du pore, de décrire mathématiquement les réseaux de pores dans la particule.

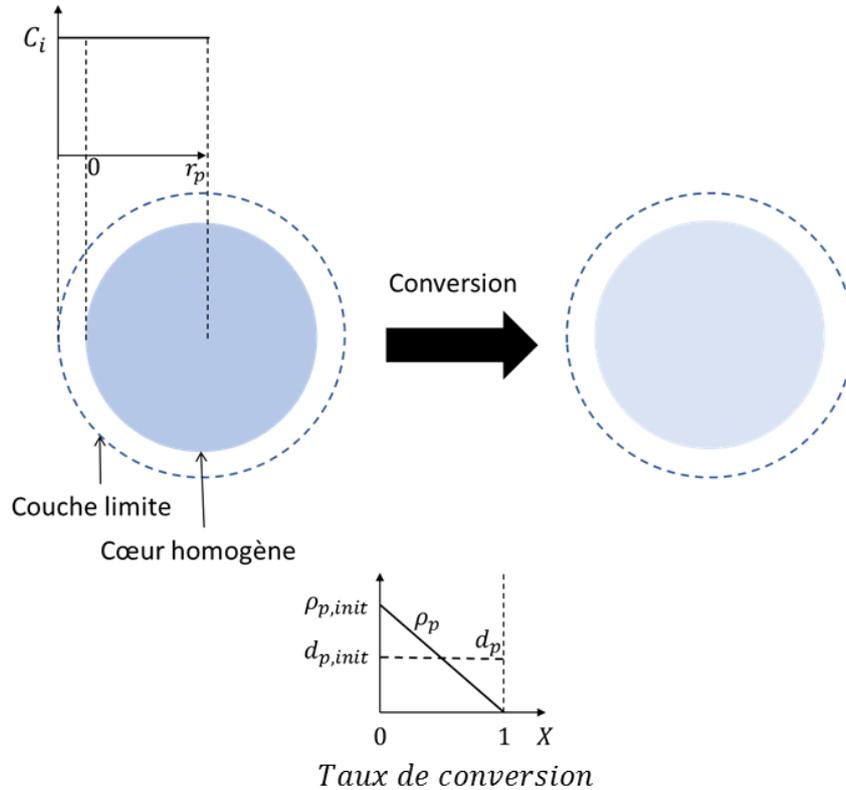


Figure II-9. Conversion d'une particule sous un régime chimique, d'après [83]

II.2.2.2. Modèles à cœur rétrécissant

Le modèle à cœur rétrécissant permet de décrire la conversion d'une particule sous un régime diffusif externe (zone III de la théorie des 3 zones, Figure II-8). Dans le cas du régime diffusif externe, le transport du gaz entre le milieu réactionnel et la particule est le phénomène limitant tandis que les températures élevées accélèrent les cinétiques intrinsèques. Ainsi, le gaz réagit immédiatement à la surface de la particule. En conséquence, le diamètre de la particule (d_p) diminue alors que sa masse volumique (ρ_p) reste constante (Figure II-10). La Figure II-10 illustre également la consommation totale de l'espèce gazeuse i (de concentration C_i) au contact de la surface de la particule. La validité de ce modèle a été prouvée pour des particules dont le diamètre est supérieur à 3 mm [69].

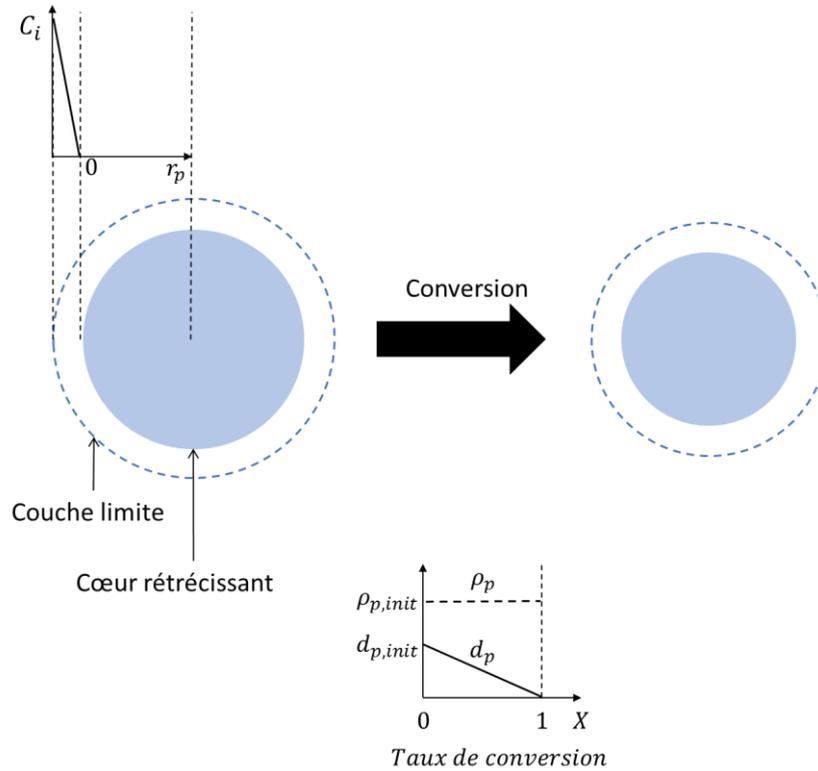


Figure II-10. Conversion d'une particule sous un régime diffusif externe, d'après [83]

Lorsque la particule est consommée, un résidu inerte sous forme de cendres est produit [18]. La modélisation des cendres peut se baser sur deux hypothèses différentes [69],[31] :

- Modèle à ségrégation de cendres (ou à cœur exposé) : ce modèle suppose qu'une fois que les cendres sont formées, elles se détachent de la particule et se désintègrent, créant de nouvelles particules plus petites [31]. Alors, la cinétique apparente Eq. (II-29) [69] inclut uniquement le terme k_m , qui représente le coefficient de transfert de matière externe Eq. (II-24), comme résistance à la conversion de la particule.

$$r_{eff,j} = \frac{v_c M_c A_s C_i}{\frac{1}{k_j} + \frac{1}{k_m}} \quad (\text{II-29})$$

Ce modèle est applicable aux lits fixes où chaque particule est en contact avec plusieurs autres car l'attrition entre elles impose une contrainte sur la couche de cendres. De plus, à des températures élevées (zone d'oxydation), la différence de dilatation entre la couche de cendres et le cœur réactif peut provoquer le détachement des cendres.

- Modèle à cœur réactif non-exposé : ce modèle prend en compte une couche de cendres qui se forme autour de la particule et reste attachée à la particule, créant ainsi une résistance additionnelle à la diffusion du gaz. La Figure II-11 montre une couche de cendres qui

entoure le cœur réactif de la particule. Le diamètre de la particule, composé du cœur réactif et des cendres, est considéré comme constant. La diffusion du gaz à travers la couche de cendres est prise en compte dans le calcul de la cinétique apparente Eq. (II-30) [69] grâce au terme k_{eff} ($m \cdot s^{-1}$) qui représente le coefficient de transfert de matière dans la couche de cendres.

$$r_{eff,j} = \frac{v_c M_c A_s C_i}{\frac{1}{k_j} + \frac{1}{k_m} + \frac{1}{k_{eff}}} \quad (II-30)$$

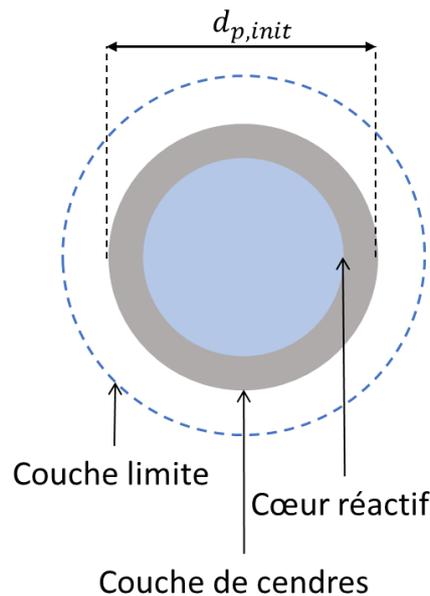


Figure II-11. Conversion d'une particule incluant la formation d'une couche de cendres

II.2.2.3. Modèles semi-homogènes

Dans le cas du régime diffusif interne (zone II de la théorie des 3 zones, Figure II-8), la cinétique intrinsèque de la réaction et le transport du gaz à l'intérieur de la particule contrôlent la vitesse de conversion. La concentration du gaz réactif (C_i) diminue progressivement entre la surface et l'intérieur de la particule jusqu'à devenir complètement nulle, comme illustré sur la Figure II-12. Des gradients de température s'établissent également à l'intérieur de la particule. Dans ces conditions, la taille de la particule et sa masse volumique diminuent parallèlement.

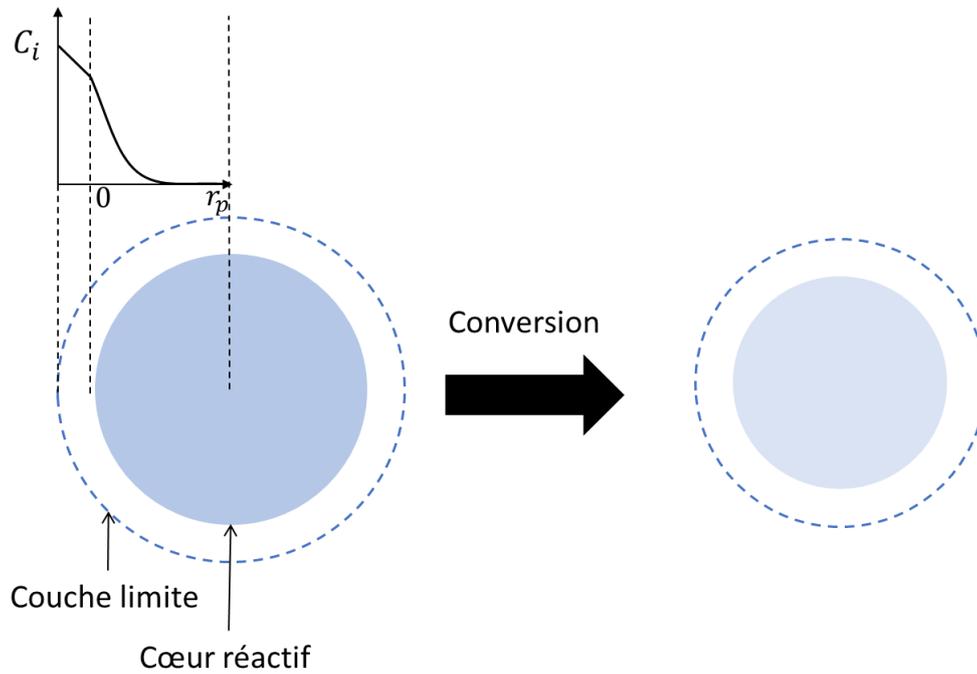


Figure II-12. Conversion d'une particule sous un régime diffusif interne

Ce type de modèles permet une description plus fine de la conversion d'une particule, mais la mise en équation est plus complexe et la résolution numérique plus longue.

L'existence de gradients de température au sein d'une particule peut être négligée en fonction du nombre de Biot [88]. Le nombre de Biot (thermique) exprime le rapport entre la résistance au transfert thermique par conduction à l'intérieur de la particule et celle due à la convection et au rayonnement à la surface de la particule Eq. (II-31).

$$Bi = \frac{h_{ht} d_p}{\lambda_s} \quad (\text{II-31})$$

Où :

h_{ht} est le coefficient global de transfert thermique en $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$;

λ_s est la conductivité thermique de la particule en $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$.

Si $Bi < 1$, les gradients de température au sein d'une particule peuvent être négligés et la particule est définie comme « thermiquement fine ». Puisque la température est homogène dans la particule, une seule transformation thermo-chimique (séchage, pyrolyse, oxydation, réduction) peut avoir lieu, et par conséquent, au niveau macroscopique (niveau du lit), les zones réactives s'établissent de manière séquentielle selon la hauteur du réacteur. Cependant, pour un nombre de Biot $Bi \gg 1$, des gradients de température importants s'établissent au sein de la

particule, et en conséquence, plusieurs transformations thermochimiques se produisent en même temps à différentes positions dans la particule. Dans ce cas, les zones réactives dans le réacteur ne sont pas clairement définies. Certains auteurs ont développé des modèles décrivant les gradients de température à l'intérieur de la particule [89], [90], [91], [92].

Dans le modèle proposé par Ström et Thunman [91], la particule est divisée en trois couches distinctes représentant le combustible humide, le combustible sec et le char (Figure II-13). Les réactions sont supposées avoir lieu aux frontières des couches, représentant les fronts de réaction. Une température et une masse sont initialement attribuées à chaque couche, et leur évolution au cours du temps est résolue à l'aide de bilans de matière Eq. (II-36) et d'énergie Eqs. (II-32)–(II-35). Par exemple, le bilan thermique établi pour la surface extérieure de la particule (notée b_3) prend en compte un flux de chaleur provenant du milieu réactionnel (extérieur) Q_{in,b_3} et un flux de chaleur échangé avec le char Q_{out,b_3} en W (Eq. (II-32)). Le flux de chaleur reçu à la surface de la particule prend en compte l'échange thermique par convection et par rayonnement Eq. (II-33). D'autre part, au sein de la particule, l'échange de chaleur se fait par conduction Eq. (II-34). Le gradient de température dans la direction radiale est déterminé en supposant que le profil de température à l'intérieur de chaque couche suit la forme d'un profil de température en régime permanent dans une couche sphérique. Dans l'équation (II-34), la coordonnée radiale r_{b_3} correspond à la surface extérieure de la particule et la coordonnée r_{c_3} désigne la position où se trouve le centre de masse de la couche de char, c'est-à-dire la position correspondant à l'emplacement de la moyenne pondérée par la masse de la température de la couche T_{p_3} (voir Figure II-13).

$$Q_{in,b_3} = Q_{out,b_3} \quad (II-32)$$

$$Q_{in,b_3} = hA_{b_3}(T_{\infty} - T_{b_3}) + \sum f \in \sigma A_{b_3}(T_{\infty}^4 - T_{b_3}^4) \quad (II-33)$$

$$Q_{out,b_3} = \lambda_{p_3} A_{b_3} \frac{(T_{b_3} - T_{p_3})}{r_{b_3} \left(\frac{r_{b_3}}{r_{c_3}} - 1 \right)} \quad (II-34)$$

$$V_{p_3} \rho_{p_3} C_{p_3} \frac{\partial T_{p_3}}{\partial t} = Q_{out,b_3} - Q_{in,b_2} \quad (II-35)$$

Où :

A_{b_3} est la surface extérieure de la particule en m^2 ;

T_{∞} est la température de l'environnement extérieur en K (voir Figure II-13) ;

T_{b3} est la température de la surface extérieure en K (voir Figure II-13) ;

f est le facteur de forme (adimensionnel) ;

T_{p3} est la température de la couche 3 en K (voir Figure II-13) ;

V_{p3} est le volume de la particule au niveau de la couche 3 ;

ρ_{p3} est la masse volumique de la couche 3 (température T_{p3}) ;

Cp_{p3} est la capacité thermique massique de la couche 3 en $J.kg^{-1}.K^{-1}$;

$Q_{in,b2}$ est le flux de chaleur reçu par le combustible sec (couche 2) au niveau de la frontière entre le char et le combustible sec (notée b2 et correspondant au front de pyrolyse sur la Figure II-13) en W .

Pour calculer l'évolution de la masse de la couche de char m_{p3} , le bilan de matière Eq. (II-36) inclut la vitesse de la réaction d'oxydation du char r_c ($kg.s^{-1}$) et la vitesse de production de char γr_{b2} à partir de la vitesse de pyrolyse r_{b2} du combustible sec, correspondant à la couche 2. Il s'agit d'un modèle de combustion, ce qui explique pourquoi les vitesses des réactions de réduction du char ne sont pas prises en compte dans la référence [91].

$$\frac{\partial m_{p3}}{\partial t} = \gamma r_{b2} - r_c \quad (II-36)$$

Où :

γ est la fraction de char (adimensionnelle).

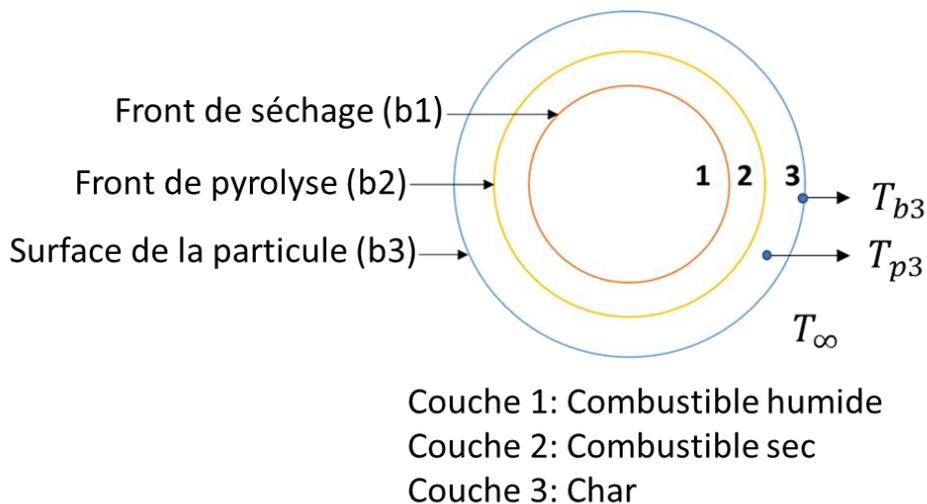


Figure II-13. Conversion d'une particule avec gradients de température, d'après [91]

II.2.3. Calcul de la diminution de la taille des particules

Dans les réacteurs à lit fixe, les températures dans les zones d'oxydation et de réduction sont de l'ordre de 800 à 1000 °C. Dans ces conditions, le régime diffusif externe est prédominant, ce qui valide l'utilisation du modèle à cœur rétrécissant pour décrire les réactions hétérogènes. Les équations utilisées dans la littérature pour le calcul de la diminution du diamètre d_p ou du volume V_p sont rassemblées dans le Tableau II-1 (Eqs. (II-37)–(II-42)).

Tableau II-1. Équations exprimant le diamètre ou le volume instantané des particules

Équation	Réf.
$\frac{\partial d_p}{\partial z} = \frac{-\sum R_{eff,j}}{3 * U_g * C_{c,f}} d_p$ (II-37)	[67]
$d_p = d_{p,init} \sqrt{(1 - Y_{ash}) \frac{U_s}{U_{s,init}} + Y_{ash}}$ (II-38)	[68]
$\frac{\partial d_p^3}{\partial t} = -\frac{\sum R_{eff,j}}{\rho_p} * d_p^3$ (II-39)	[93], [51]
$d_p = \left((1 - Y_{ash}) d_u^3 + Y_{ash} d_{p,init}^3 \right)^{1/3}$ (II-40)	[69]
$d_p = F^{1/3} d_{p,init}$ (II-41)	[69]
$d_p = \left(\frac{U_s}{U_{s,init}} \right)^{1/3} d_{p,init}$ (II-42)	[52], [70], [75],[94]

Dans l'Eq. (II-37), Tinaut *et al.* [67] établissent une relation entre le diamètre de la particule d_p , la vitesse du gaz U_g , la somme des vitesses d'oxydation et de réduction j consommant le char $\sum R_{eff,j}$ ($mol.m^{-3}.s^{-1}$), et la concentration de char dans le combustible initial $C_{c,f}$ en $mol.m^{-3}$.

L'équation (II-38) exprime le diamètre de la particule dp en fonction de son diamètre initial $d_{p,init}$ et inclut la teneur massique en cendres de la particule Y_{ash} . Ce terme est un indicateur souvent utilisé pour arrêter les réactions hétérogènes, quand la particule est uniquement composée de cendres. Le ratio $\frac{U_s}{U_{s,init}}$ ($U_{s,init}$ étant la vitesse initiale du solide, c'est-à-dire en haut du réacteur), également inclus dans l'équation (II-42), permet de lier le rétrécissement des particules au phénomène de tassement (voir section II.3.1).

Dans les modèles proposés dans les références [93] et [51], le volume de la particule est calculé en fonction de la vitesse de consommation du char par les réactions hétérogènes $\sum R_{eff,j}$ ($kg.m^{-3}.s^{-1}$) et l'équation (II-39) fait intervenir la masse volumique d'une particule ρ_p en $kg.m^{-3}$.

L'équation (II-40) est utilisée pour calculer le diamètre d'une particule dans le cas d'un modèle particulaire qui considère une couche de cendres entourant la particule qui reste attachée à la particule (modèle à cœur réactif non-exposé, voir section II.2.2.2). Le terme d_u représente le diamètre du cœur de la particule.

L'équation (II-41) est utilisée pour calculer le diamètre d'une particule dans le cas d'un modèle particulaire qui considère que les cendres se détachent (modèle à ségrégation de cendres). Le terme F représente fraction massique de matière carbonée réactive restant dans la particule (pas encore consommée).

II.3. Approches pour la prise en compte du tassement

Comme évoqué précédemment, les modèles à l'échelle de la particule permettent de suivre l'évolution de sa composition et de sa morphologie pendant la gazéification. Lorsque ces modèles sont utilisés dans un modèle à double échelle (lit et particule), le changement de structure de la particule doit être transposé à l'échelle du lit. En effet, la consommation des particules donne lieu à un réarrangement particulaire qui modifie la macroporosité ε_b , la perméabilité κ et le volume du milieu poreux. En conséquence, la conversion du char, l'écoulement gazeux, les transferts thermiques et la perte de charge sont également impactés. Le phénomène liant les deux échelles est appelé tassement (« compaction » en anglais). Il traduit l'évolution morphologique du milieu poreux et sa modélisation est la base pour la compréhension de phénomènes perturbateurs tels que la formation de passages préférentiels dans le lit.

Les modèles 1D de gazéification définissent le tassement comme un ralentissement de l'écoulement de la phase solide en fonction du rétrécissement des particules. Dans des modèles à 2D ou 3D, généralement appliqués à la combustion, le tassement est divisé en deux phénomènes parallèles :

- le tassement continu représenté par une contraction du domaine de calcul représentant le lit ou par des routines d'échange de matière entre les mailles discrétisant le domaine de calcul ;

- l'effondrement brusque du lit résultant d'une augmentation significative de la porosité macroscopique.

II.3.1. Modélisation par ralentissement de la phase solide

Dans le domaine de la gazéification, le phénomène de tassement est couramment exprimé comme un ralentissement de l'écoulement du solide. Teixeira [83] a observé expérimentalement le ralentissement des particules solides le long du réacteur en fonction de leur conversion. Il propose de quantifier ce phénomène comme le ratio entre la vitesse en haut du réacteur $U_{s(z=0)} = U_{s,init}$ et la vitesse à une hauteur donnée $U_{s(z)}$ Eq. (II-43).

$$T_{ass} = \frac{U_{s,init}}{U_{s(z)}} \quad (\text{II-43})$$

Pour comprendre le phénomène de tassement, Teixeira [83] propose deux approches théoriques du tassement en fonction du régime de conversion particulaire (section II.2.1). Ces approches considèrent la gazéification de particules sphériques monodispersées (de même taille) et composées uniquement de carbone.

Le premier cas concerne le régime chimique de conversion (zone 1 de la Figure II-8) : le diamètre des particules reste constant tandis que leur masse volumique (et celle du lit) diminue en fonction de la conversion, allant de sa valeur initiale jusqu'à 0, limite théorique pour 100 % de conversion. Dans ce cas, la vitesse des particules est constante et il n'y a pas de tassement du lit ($T_{ass} = 1$).

D'autre part, dans un régime de conversion diffusif externe (zone III de la Figure II-8), les particules sont consommées uniquement à la surface, donc leur diamètre diminue linéairement en fonction de la conversion et leur masse volumique ne varie pas. Si l'on suppose que la macroporosité est constante, la masse volumique du lit est également constante. Le rétrécissement des particules provoque la diminution de la vitesse des particules jusqu'à 0 $m.s^{-1}$ (pour 100 % de conversion) et en conséquence, le tassement augmente de 1 jusqu'à l'infini.

Ces deux approches sont appliquées dans les modèles de gazéification prenant en compte le tassement du lit [52], [68], [70], [75], [76], [78], [94]. En effet, les transformations thermochimiques ayant lieu dans chaque zone peuvent modifier la masse volumique du lit (dans le cas du séchage et de la pyrolyse) ou la vitesse de l'écoulement (oxydation et réduction). Ces modèles établissent un bilan de matière pour chaque espèce solide i (humidité m , combustible solide f et char c) prenant en compte un terme de transport axial Eq. (II-44).

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \frac{\partial U_s \rho_i}{\partial z} = S_{si} \quad (\text{II-44})$$

La Figure II-14 récapitule et schématise les hypothèses formulées dans chaque zone réactive. Lorsque les particules traversent les zones de séchage et de pyrolyse, la masse volumique du lit évolue jusqu'à la conversion totale du combustible en char (X_p représente le taux de conversion par pyrolyse sur la Figure II-14). Dans ces zones, la conversion est assimilée à un régime chimique : la taille des particules reste inchangée, et en conséquence, leur vitesse est constante. Par contre, dans les zones d'oxydation et de réduction, un sous-modèle de particule à cœur rétrécissant est adopté. La porosité du lit et sa hauteur étant considérés constants (alimentation en continu de combustible frais), la masse volumique du lit ρ_C est égale à celle du char produit dans la zone de pyrolyse $\rho_{C,pyro}$ Eq. (II-45). Dans ces conditions, l'évolution de la vitesse d'écoulement U_s est calculée à partir du bilan de matière établi pour le char Eq. (II-46). Le volume d'une particule V_p est ensuite calculé en supposant une relation linéaire entre la vitesse U_s , la vitesse initiale $U_{s,init}$ (en haut de la zone d'oxydation, égale à celle en haut du réacteur) et le volume initial des particules en haut de la zone d'oxydation, égal à celui en haut du réacteur $V_{p,init}$ Eq. (II-47).

$$\rho_C = \rho_{C,pyro} \quad (\text{II-45})$$

$$\rho_C \frac{\partial U_s}{\partial z} = - \sum R_{eff,j} \quad (\text{II-46})$$

$$\frac{V_p}{V_{p,init}} = \frac{U_s}{U_{s,init}} \quad (\text{II-47})$$

La vitesse initiale d'écoulement des particules $U_{s,init}$ peut être calculée à partir du débit massique d'alimentation W_f ($kg \cdot s^{-1}$) et en considérant une hauteur du lit constante [36] Eq. (II-48).

$$U_{s,init} = \frac{W_f}{\hat{\rho}_f * S_R} \quad (\text{II-48})$$

Dans l'équation (II-48), $\hat{\rho}_f$ représente la masse volumique apparente du combustible ($kg \cdot m_{lit}^3$) et S_R la section du réacteur (m^2).

Les réactions hétérogènes sont arrêtées lorsque la particule atteint une taille minimale, qui dépend de la teneur initiale en cendres (déterminée à partir de l'analyse immédiate du combustible). Sur la Figure II-14, X_g représente le taux de conversion par les réactions hétérogènes.

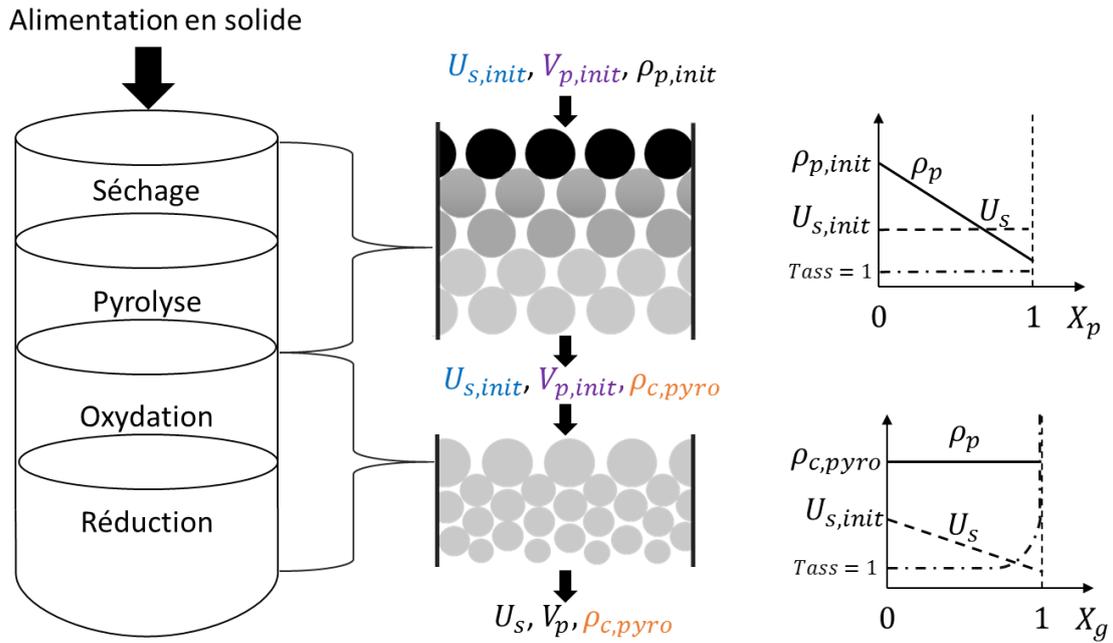


Figure II-14. Modélisation du tassement à partir de la vitesse d'écoulement du solide

II.3.2. Modélisation par déformation du domaine de calcul

Dans le domaine de la combustion, plusieurs études se sont concentrées sur l'amélioration de la modélisation de l'évolution morphologique de la phase solide au cours de sa conversion afin de comprendre certains phénomènes perturbateurs (tels que les passages préférentiels) liés à l'hétérogénéité de la conversion dans un lit fixe [74], [72], [18], [95], [51]. Les auteurs de ces modèles CFD en 2D ou 3D ont développé des équations pour décrire l'arrangement aléatoire des particules et l'évolution de la macroporosité au cours de la combustion, paramètres qui peuvent favoriser une conversion non-homogène affectant l'efficacité du procédé. De plus, le tassement a été modélisé par une déformation du domaine de calcul. Ces études, appliquées à des lits fixes à contre-courant, mettent en évidence le fait que le mouvement de la phase solide dans les fours de combustion n'est pas continu ou régulier, à cause du mouvement de la grille de combustion ou en raison d'une conversion hétérogène. En conséquence, le lit est susceptible de s'effondrer brusquement.

Hermansson et Thunman [18] ont développé un modèle CFD en 2D prenant en compte le tassement continu et des effondrements brusques (discontinus). Dans ce modèle, seules les étapes d'oxydation et de réduction du char sont modélisées. Les particules de char sont représentées sous forme de cylindres et leur conversion est modélisée suivant un modèle à cœur rétrécissant dans lequel une couche de cendres se forme autour de la particule. La porosité du

lit n'est pas considérée comme constante ou uniforme et une distribution de la macroporosité initiale est calculée en considérant les effets des parois et l'arrangement irrégulier des particules. L'équation (II-49) définit la densité de probabilité d'une loi normale représentant la distribution de la macroporosité initiale (ε_{b0}) autour d'une valeur moyenne μ_ε avec un écart-type σ_ε . Ces paramètres doivent être déterminés expérimentalement. Au niveau de la paroi, la macroporosité augmente en raison des limitations géométriques et mécaniques de l'arrangement particulaire. La macroporosité près d'une paroi, ε_{wall} , est décrite par un profil de porosité radial exprimé en fonction de la distance à la paroi, r , normalisée par le diamètre de la particule, d_p Eq. (II-50). Dans cette équation, le facteur b représente une constante de décroissance de la macroporosité lorsque la distance à la paroi augmente et ε_∞ représente la porosité du lit loin de la paroi.

$$f(\varepsilon_{b0}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_\varepsilon} e^{-\frac{(\varepsilon_{b0}-\mu_\varepsilon)^2}{2\sigma_\varepsilon^2}} \quad (\text{II-49})$$

$$\varepsilon_{wall} = \varepsilon_\infty + (1 - \varepsilon_\infty)\exp(-br/d_p) \quad (\text{II-50})$$

Le tassement continu est une contraction instantanée du volume du lit, tandis que l'effondrement brusque résulte de la diminution du contact entre les particules, cette dernière étant une conséquence de l'augmentation locale de la macroporosité.

Le tassement est inclus à l'aide d'une routine de maillage mobile qui définit une contraction du domaine de calcul ∂V_{shr} en fonction de la variation du volume solide ∂V_s , défini par l'équation (II-51). Cela force le lit à se contracter suivant la direction gravitationnelle z Eq. (II-52) :

$$\frac{\partial V_{shr}}{\partial t} = \delta_{shr} \frac{1}{(1 - \varepsilon_{b0})} \frac{\partial V_s}{\partial t} \quad (\text{II-51})$$

$$\frac{\partial z}{\partial t} = \frac{1}{\Delta x \Delta y} \frac{\partial V}{\partial t} \quad (\text{II-52})$$

Dans l'équation (II-51), le facteur δ_{shr} détermine la fraction du tassement attribuée à des mouvements continus, le reste contribuant à augmenter la porosité du lit, ce qui, finalement, provoquera son effondrement :

- Si δ_{shr} est égal à 1, les mailles se contractent en fonction de la consommation des particules et la porosité reste constante.
- Si δ_{shr} est égal à 0, cela implique que le volume de la maille reste constant ; la consommation de matière augmente la porosité jusqu'à ce que la maille soit complètement remplie de gaz.

La valeur du facteur δ_{shr} est déterminée expérimentalement. Le terme $\Delta x \Delta y$ dans l'équation (II-52) représente la surface de la maille discrétisée selon le plan normal à l'axe z .

Pour modéliser l'effondrement brusque du lit, des paramètres caractéristiques ont été déterminés expérimentalement par les auteurs :

- Macroporosité critique (ε_{col}) : valeur de la macroporosité locale qui déclenche l'effondrement du lit.
- Macroporosité après effondrement (ε_{ac}) : nouvelle valeur de la macroporosité dans les zones du lit affectées par l'effondrement du lit. Les auteurs supposent que la valeur de ε_{ac} est égale à la macroporosité initiale ε_{b0} .
- Longueur caractéristique d'effondrement (L_{col}) : représente la longueur moyenne parcourue par une particule lors de l'effondrement du lit. Sa valeur est égale à au moins un diamètre de particule.
- Nombre d'effondrements (η_{col}) : nombre d'effondrements se produisant pendant la conversion dans un volume du lit défini par l'échelle de longueur caractéristique L_{col} .

La Figure II-15 illustre la routine complète de tassement et l'évolution de la macroporosité lors de la conversion.

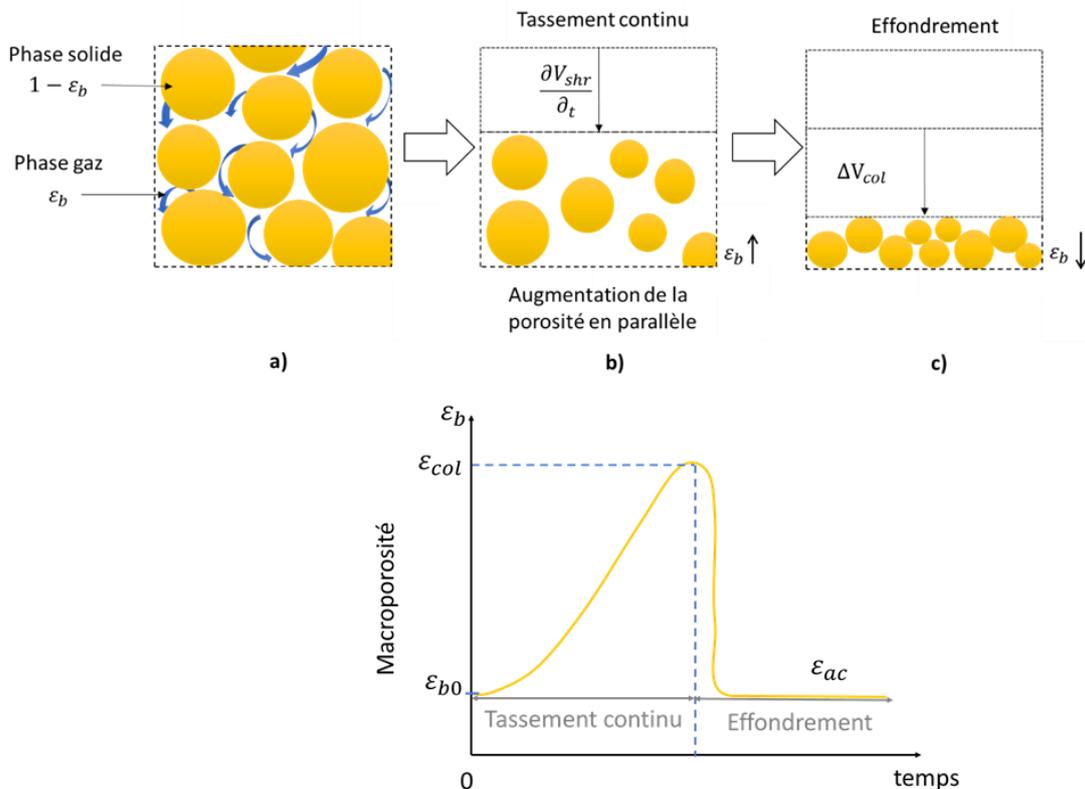


Figure II-15. Tassement du lit par déformation du maillage, d'après [95]

Dans un premier temps, on observe à la fois le tassement continu et l'augmentation de la macroporosité, correspondant au schéma b). Ensuite, quand la valeur de macroporosité critique est atteinte, le lit s'effondre et la macroporosité diminue, comme le montre le schéma c). Le tassement dû à l'effondrement est noté ΔV_{col} . Après validation, le modèle a été utilisé pour étudier l'effet de la distribution hétérogène de la macroporosité initiale sur le front de combustion. Deux cas ont été étudiés : création d'un canal poreux au centre du réacteur et présence d'une macroporosité élevée à proximité de la paroi.

Duffy et Eaton [95] ont également utilisé l'équation (II-49) pour calculer la macroporosité initiale, mais l'effet de la paroi est négligé. La mise en équation du phénomène de tassement et les paramètres caractéristiques ($L_{col}, \eta_{col}, \delta_{shr}$) sont les mêmes que ceux proposés dans [18]. Dans ce modèle, les étapes de séchage et pyrolyse sont incluses et leur déroulement provoque une variation de la taille des particules en plus de celle due aux réactions hétérogènes d'oxydation et réduction du char. Après validation, le modèle a été utilisé pour étudier l'impact sur la combustion d'un canal de grande porosité situé au centre du réacteur.

II.3.3. Modélisation par échange de matière entre cellules de calcul

Gómez *et al.* [51] ont développé un modèle CFD sous ANSYS Fluent en 3D, couplant des sous-modèles écrits en C++ décrivant la phase solide. Ce modèle transitoire inclut les étapes de séchage et de pyrolyse et se base sur le modèle de particule à cœur rétrécissant dans les étapes d'oxydation et de réduction du char. Le tassement du lit est continu mais, à la différence des modèles précédents, ce modèle inclut une routine d'échange de matière entre les cellules de calcul : lorsqu'une cellule ne contient pas assez de matière, elle est « vidée » dans la cellule inférieure, faisant diminuer le niveau du lit (Figure II-16). Un seuil haut et un seuil bas de la quantité de matière dans chaque cellule sont définis à partir de la fraction de solide θ , égale à $(1 - \varepsilon_b)$. Ces seuils déclenchent le mouvement selon les conditions suivantes :

- Le seuil bas θ_{min} indique que la quantité de matière dans la cellule n'est pas suffisante pour qu'elle soit stable. La matière contenue dans cette cellule tombe (s'effondre) dans la cellule située au-dessous.
- Le seuil haut θ_{max} définit la saturation de la cellule. Elle ne peut pas recevoir plus de matière.
- La cellule qui s'effondre perd de la matière et sa fraction de solide peut diminuer jusqu'à ce qu'elle soit complètement vide ou jusqu'à ce que les cellules voisines (situées au-dessous) soient saturées.

La Figure II-16 montre la dynamique des échanges de matière entre les cellules de calcul.

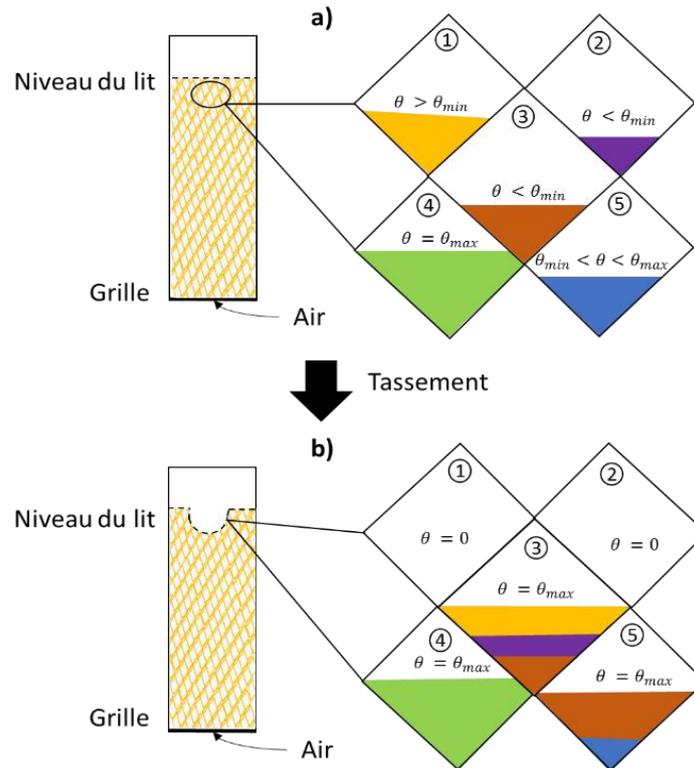


Figure II-16. Tassement du lit par échange de matière entre mailles, d'après [93]

Avant tassement, correspondant au schéma a), la cellule 1 contient suffisamment de matière pour être stable. Les cellules 2 et 3, sont fragiles puisque leur teneur en matière est inférieure au seuil bas. La cellule 4 est saturée : elle ne pourra pas recevoir de matière. La cellule 5 est assez stable pour ne pas s'effondrer et peut recevoir de la matière. Après tassement, illustré sur le schéma b), la cellule 3 a échangé de la matière avec la cellule 5 jusqu'à sa saturation. La cellule 2, considérée comme instable avant tassement, s'est vidée dans la cellule 3. Finalement, la cellule 1, qui contenait assez de matière pour être stable, est également vidée dans la cellule 3. En effet, la routine permet l'échange de matière jusqu'à ce que les cellules soient complètement vides ou les cellules voisines situées au-dessous saturées.

Ce modèle a été repris par Karim *et al.* [93] et González *et al.* [96]. Karim *et al.* [93] ont développé le modèle en 3D sous AVL Fire. La phase solide est décrite avec des routines écrites sur FORTRAN. González *et al.* [96] ont adapté le modèle à des conditions de gazéification dans un lit à contre-courant sous ANSYS-Fluent. L'objectif de leurs travaux est l'étude de l'arrangement aléatoire des particules selon leurs propriétés géométriques. Le combustible étudié est du bois sous 3 formes géométriques différentes : copeaux, pellets cylindriques et cubes. Le combustible est caractérisé par le ratio de la masse volumique du lit et la massique volumique d'une particule, appelé packing factor. La modélisation à double échelle a permis aux auteurs d'étudier l'échange convectif entre la phase gaz et la phase solide, l'échange

radiatif, et la distribution de la température dans la phase solide. Ces facteurs influencent la vitesse du front de gazéification et dépendent des caractéristiques géométriques de la particule.

II.4. Conclusion

De nombreux modèles existent dans la littérature pour modéliser le procédé de gazéification en lit fixe. Beaucoup d'entre eux sont des modèles à l'équilibre dans lesquels les dimensions du réacteur ne sont pas prises en compte. A l'inverse, les modèles cinétiques, généralement 1D, prennent en compte certaines caractéristiques géométriques du réacteur telles que sa longueur. Les modèles CFD quant à eux sont peu nombreux et permettent une représentation précise du réacteur en 2D ou 3D et sont donc particulièrement adaptés aux objectifs de cette thèse. Dans ce chapitre, l'étude bibliographique de la mise en équation des phénomènes (dans les modèles cinétiques ou CFD) à l'échelle du réacteur d'une part et à l'échelle de la particule d'autre part a été exposée.

De plus, les différentes mises en équation du phénomène de tassement ont été identifiées : ralentissement de la vitesse du solide, déformation continue du maillage puis effondrement et échange de matière entre les cellules de calcul. L'étude des modèles existant pour la prise en compte du tassement a permis de conclure que le tassement par déformation du domaine est le plus adapté à notre problématique. En effet, le tassement par ralentissement de la vitesse du solide semble plus approprié pour un modèle où les zones réactives sont déjà établies (état stationnaire), alors que l'objectif de cette thèse est d'étudier la dynamique du procédé. D'autre part, la modélisation du tassement par échange de matière entre cellules nécessite un développement numérique plus poussé et la détermination de seuils critiques validés par des études expérimentales et donc dépendants du type de combustible et des conditions opératoires. L'intégration du tassement par déformation du domaine permet l'étude plus approfondie de l'interaction entre la phase solide et la phase gaz. La description plus fine de l'évolution des caractéristiques géométriques du milieu poreux fait de ces modèles un outil puissant pour analyser des phénomènes susceptibles d'apparaître lors de la gazéification dans des réacteurs à lit fixe qui nuisent au développement du procédé. Comme mentionné précédemment, ces phénomènes sont accentués par l'utilisation de combustibles hétérogènes (en forme, composition, taille), en particulier issus de déchets.

Chapitre III - Modélisation de la gazéification de combustibles alternatifs

Dans ce chapitre, le modèle développé pendant cette thèse est détaillé. Son implémentation sous COMSOL Multiphysics® est ensuite décrite. Enfin, la validation et l'analyse du modèle sont présentées. Le modèle a été validé à l'aide d'essais expérimentaux décrits dans la thèse de Maria Barrio [36].

III.1. Description du modèle

Le modèle développé dans cette thèse permet de simuler un réacteur de gazéification à lit fixe co-courant, dans lequel l'agent gazeux oxydant est introduit à une hauteur proche du haut du réacteur. Les phénomènes pris en compte permettent d'étudier les transitoires du procédé depuis l'ignition du lit et leur distribution sur l'axe radial puisque le modèle est à 2 dimensions (2D).

Les principaux phénomènes et hypothèses pris en compte dans le modèle sont :

1. Dans les zones de séchage et de pyrolyse, le volume des particules est supposé rester constant mais la masse volumique du solide diminue.
2. L'étape de pyrolyse est modélisée comme une réaction de dévolatilisation globale en une étape formant des espèces gazeuses (CO , CO_2 , H_2 , H_2O , CH_4), des goudrons ($\text{C}_6\text{H}_{6,2}\text{O}_{0,2}$) [67], [73] et du char. La composition des produits de pyrolyse dépend de la composition initiale de la charge.
3. Les réactions hétérogènes sont modélisées selon le modèle de particule à cœur rétrécissant.
4. Les particules de combustible sont considérées comme des sphères et la porosité macroscopique est considérée comme constante.
5. Les particules sont considérées comme thermiquement homogènes (i.e., des particules thermiquement minces).
6. Le tassement du lit est simulé comme une déformation du domaine de calcul, dépendant de la conversion des particules.
7. Le transport du gaz dans le lit suit la loi de Brinkman.
8. Les phases solide et gazeuse ne sont pas à l'équilibre thermique.
9. Les échanges thermiques par rayonnement et par conduction dans la phase solide sont regroupés en une conductivité thermique effective.
10. Le réacteur est considéré comme adiabatique.

III.1.1. Modèle réactionnel

Le caractère dynamique du modèle permet l'établissement des zones réactives dans le réacteur selon les conditions opératoires.

III.1.1.1. Séchage

Le séchage ($H_2O_l \rightarrow H_2O_g$) peut être décrit avec une loi cinétique de type Arrhenius Eq.(II-6) d'après [89]. La vitesse d'évaporation de l'humidité du combustible est calculée avec l'équation (III-1).

$$R_d = \tilde{\rho}_m k_d \quad (III-1)$$

Où :

l'indice d renvoie au séchage (« drying » en anglais) et l'indice m renvoie à l'eau (« moisture » en anglais) ;

R_d est la vitesse de séchage en $\frac{kg}{m^3 \cdot s}$;

$\tilde{\rho}_m$ est la concentration massique de l'eau en $\frac{kg}{m^3 \text{ de solide}}$;

k_d représente la constante cinétique de la réaction de séchage selon la loi d'Arrhenius en s^{-1} .

Les valeurs des paramètres de cette loi se trouvent dans le Tableau III-2.

III.1.1.2. Pyrolyse

Le modèle de pyrolyse utilisé considère 3 réactions parallèles compétitives comme illustré sur la Figure III-1.

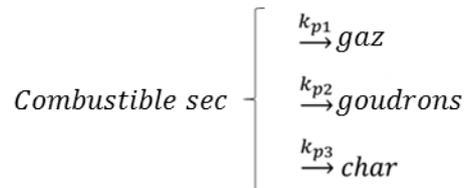
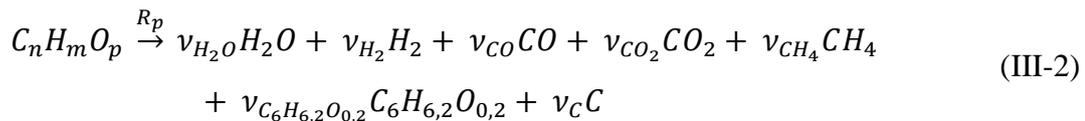


Figure III-1. Schéma réactionnel de pyrolyse adopté

Comme proposé par Thunmann *et al.* [97], la réaction globale peut s'écrire selon l'équation (III-2).



Dans cette équation, $C_n H_m O_p$ représente la composition élémentaire du combustible sec qui alimente le gazéifieur. Les coefficients de cette formule chimique peuvent être calculés en utilisant comme référence un atome de carbone ($n = 1$) et la masse molaire de chaque élément.

Compte tenu de la composition élémentaire des granulés de bois utilisés par Barrio [36] (Tableau III-4), la molécule de combustible s'écrit $CH_{1,63}O_{0,63}$.

La composition des produits de pyrolyse dépend de la composition de la charge puisque le coefficient stœchiométrique de chaque produit de pyrolyse ν_i est calculé au moyen du bilan atomique entre la composition du combustible et les produits de pyrolyse Eqs. (III-3)–(III-5) et d'un système d'équations composé de relations empiriques Eqs. (III-6)–(III-11). Ce modèle, dont la précision a été prouvée pour décrire la dévolatilisation des combustibles [65], peut donc être adapté à différents types de combustibles.

$$n = \nu_{CO} + \nu_{CO_2} + \nu_{CH_4} + 6 \nu_{C_6H_6,2O_{0,2}} + \nu_C \quad (III-3)$$

$$m = 2\nu_{H_2O} + 2\nu_{H_2} + 4\nu_{CH_4} + 6,2 \nu_{C_6H_6,2O_{0,2}} \quad (III-4)$$

$$p = \nu_{H_2O} + \nu_{CO} + 2\nu_{CO_2} + 0,2 \nu_{C_6H_6,2O_{0,2}} \quad (III-5)$$

$$\frac{\nu_{CO}}{\nu_{CO_2}} = \Omega_1 \frac{M_{CO_2}}{M_{CO}} \quad (III-6)$$

$$\frac{\nu_{CH_4}}{\nu_{CO_2}} = \Omega_2 \frac{M_{CO_2}}{M_{CH_4}} \quad (III-7)$$

$$\frac{\nu_{H_2O}}{\nu_{CO_2}} = \Omega_3 \frac{M_{CO_2}}{M_{H_2O}} \quad (III-8)$$

$$\Omega_1 = 1,94 \times 10^{-6} \times T_s^{1,87} \quad (III-9)$$

$$\Omega_2 = 1,305 \times 10^{-11} \times T_s^{3,39} \quad (III-10)$$

$$\Omega_3 = 1 \quad (III-11)$$

La fraction de char ν_C est calculée à partir de la teneur en carbone fixe du combustible (Tableau III-4) en supposant que tout le carbone fixe forme le char. Ces bilans (6 équations et 6 inconnues) sont résolus à l'aide d'un programme Matlab en supposant une température de pyrolyse T_s constante et égale à 500 °C. Les coefficients utilisés dans le modèle sont récapitulés dans le Tableau III-1.

La vitesse totale de dévolatilisation est donnée par l'équation (III-12) et correspond à la somme des cinétiques de trois réactions chimiques parallèles compétitives, correspondant à la production d'espèces volatiles, de goudrons et de char (Figure III-1).

$$R_p = \tilde{\rho}_f \sum_{j=1}^3 k_{pj} \quad (III-12)$$

Dans cette équation :

l'indice p renvoie à la pyrolyse et l'indice f renvoie au combustible (« fuel » en anglais) ;

R_p est la vitesse de la réaction de pyrolyse en $kg/(m^3 \cdot s)$;

$\tilde{\rho}_f$ est la concentration massique du combustible en $kg/(m^3 \text{ de solide})$;

et k_{pj} représente la constante cinétique de la réaction j selon la loi d'Arrhenius en s^{-1} . Les valeurs des paramètres de cette loi pour les trois réactions se trouvent dans le Tableau III-2.

Tableau III-1. Coefficients stœchiométriques de la réaction de pyrolyse

ν_{H_2O}	0,2717
ν_{H_2}	0,2758
ν_{CO_2}	0,1236
ν_{CO}	0,0948
ν_{CH_4}	0,0073
$\nu_{C_6H_6,2O_{0,2}}$	0,0816
ν_C	0,2850

III.1.1.3. Oxydation et réduction

Les zones d'oxydation et de réduction sont caractérisées par des réactions hétérogènes et homogènes. Les réactions hétérogènes ont lieu entre le char et les produits gazeux de la pyrolyse. Les réactions homogènes ont lieu entre espèces gazeuses et avec l'agent oxydant qui, dans cette étude, est de l'air.

Réactions hétérogènes

Les réactions chimiques hétérogènes incluses dans le modèle sont : l'oxydation du char Eq. (III-13), la réaction de Boudouard Eq. (III-14), la réaction d'hydrogénation du char Eq. (III-15) et la réaction entre le char et l'eau Eq. (III-16).





L'indice c renvoie à la combustion (oxydation) et l'indice g renvoie à la gazéification (réduction).

Une cinétique effective Eq. (III-17) est utilisée pour calculer la vitesse de conversion des réactions hétérogènes.

$$R_j = \frac{C_i}{\frac{1}{k_m} + \frac{1}{k_j}} A_p \quad (III-17)$$

$$i = O_2, CO_2, H_2, H_2O$$

$$j = c_1, g_1 - g_3$$

La cinétique de conversion du char R_j dépend de plusieurs paramètres :

- de la concentration des espèces gazeuses C_i en $\frac{mol}{m^3 \text{ de gaz}}$;
- du coefficient de transfert de matière externe des réactifs à travers le film gazeux entourant la particule k_m en $m \cdot s^{-1}$;
- de la constante cinétique intrinsèque de la réaction k_j en $m \cdot s^{-1}$; les valeurs des paramètres de la loi d'Arrhenius des réactions (III-13) à (III-16) se trouvent dans le Tableau III-2 ;
- et de la surface spécifique A_p en m^{-1} , calculée à l'aide de l'équation (III-18).

$$A_p = \frac{S_p}{V_p} = \frac{6(1 - \varepsilon_b)}{d_p} \quad (III-18)$$

Dans l'équation (III-18), S_p est la surface de la particule en m^2 , V_p est le volume de la particule en m^3 , d_p représente le diamètre de la particule en m et ε_b est la porosité macroscopique.

Le coefficient de transfert de matière k_m est estimé en fonction des propriétés du fluide et des caractéristiques de l'écoulement, en accord avec des travaux similaires [76],[70] (équations (III-19) à (III-21)).

$$k_m = \frac{2,06 U_g}{\varepsilon_b} Re^{-0,575} Sc^{-\frac{2}{3}} \quad (III-19)$$

$$Re = \frac{\bar{\rho}_g U_g d_p}{\mu_g} \quad (III-20)$$

$$Sc = \frac{\mu_g}{\bar{\rho}_g D_i} \quad (III-21)$$

Dans ces équations :

U_g est la vitesse du gaz en $m \cdot s^{-1}$;

$\bar{\rho}_g$ est la masse volumique du gaz en $\frac{kg}{m^3}$;

μ_g est la viscosité dynamique du gaz en $Pa \cdot s$;

D_i est le coefficient de diffusion, considéré comme constant pour toutes les espèces, égal à $2 \times 10^{-5} m^2 \cdot s^{-1}$.

Les réactions hétérogènes sont modélisées à l'aide du modèle au cœur rétrécissant (cf. II.2.2.2). En effet, le volume des particules V_p diminue au fur et à mesure que les particules de char sont consommées par les espèces gazeuses lors des réactions hétérogènes.

$$\frac{\partial V_p}{\partial t} = \left(\frac{-M_C R_{cchar}}{\tilde{\rho}_p} \right) V_p \quad (III-22)$$

$$d_p = \sqrt[3]{\left(\frac{V_p \times 6}{\pi} \right)} \quad (III-23)$$

$$R_{cchar} = R_{c1} + R_{g1} + R_{g2} + R_{g3} \quad (III-24)$$

Où :

V_p est le volume des particules en m^3 ;

M_C est la masse molaire du carbone en $kg \cdot mol^{-1}$;

R_{cchar} représente la somme des cinétiques des réactions hétérogènes en $\frac{mol \text{ de } C}{s \cdot m^3 \text{ de solide}}$;

$\tilde{\rho}_p$ est la masse volumique des particules en $\frac{kg}{m^3 \text{ de solide}}$;

d_p est le diamètre des particules en m.

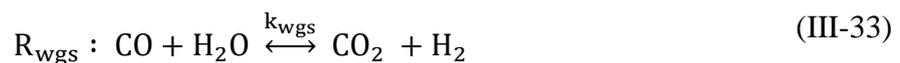
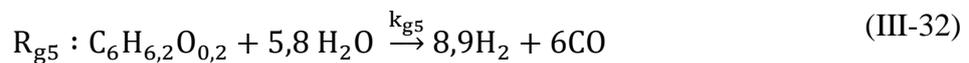
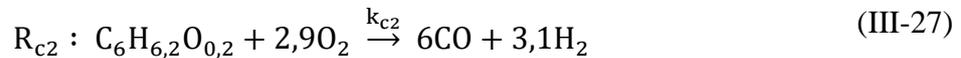
La conversion des particules est limitée par le diamètre minimal des particules $d_{p_{min}}$, qui correspond au diamètre théorique atteint lorsque la particule n'est constituée que de cendres Eq. (III-25). En effet, dans le régime de rétrécissement des particules, la taille minimale des particules dépend de la teneur en cendres du combustible (χ) Eq. (III-26). Le diamètre minimal correspond à la taille atteinte lorsque le carbone fixe a été complètement consommé et, en conséquence, la vitesse de conversion R_{cchar} devient nulle. A partir des données expérimentales de Barrio *et al.* [36], le diamètre minimal dans les simulations a été fixé à 1,7 mm.

$$d_p \geq d_{p_{min}} \quad (\text{III-25})$$

$$d_{p_{min}} = \sqrt[3]{\chi d_{p0}^3} \quad (\text{III-26})$$

Réactions homogènes

D'autre part, les réactions homogènes incluses sont : la combustion des goudrons Eq. (III-27), du méthane Eq. (III-28), du monoxyde de carbone Eq. (III-29), de l'hydrogène Eq. (III-30), les réactions des hydrocarbures (méthane, goudrons) avec l'eau Eq. (III-31)-(III-32) et la réaction du gaz à l'eau (notée wgs pour « water gas shift » en anglais) Eq. (III-33). Les cinétiques de ces réactions sont récapitulées dans le Tableau III-3.



En plus des paramètres cinétiques, les variations d'enthalpies correspondant à chaque réaction (notées ΔH) sont également incluses dans le Tableau III-2 et le Tableau III-3.

Les variations d'enthalpie sont considérées comme constantes et calculées à 1000 K. Les enthalpies positives indiquent que les réactions sont endothermiques tandis que celles négatives correspondent à des réactions exothermiques.

Tableau III-2. Cinétiques des réactions dans la phase solide

Étape de conversion	Paramètres cinétiques			Réf.
Séchage $R_d : \text{H}_2\text{O}_l \xrightarrow{k_d} \text{H}_2\text{O}_g$ $R_d = \tilde{\rho}_m k_d$ (kg/(m ³ .s))	A_d (s ⁻¹)	E_d (kJ/mol)	ΔH_d (MJ/kg d'eau)	[67]
	5,13 × 10 ¹⁰	88	2,44	
Pyrolyse Combustible sec $\left\{ \begin{array}{l} \xrightarrow{k_{p1}} \text{gaz} \\ \xrightarrow{k_{p2}} \text{goudrons} \\ \xrightarrow{k_{p3}} \text{char} \end{array} \right.$ $R_p = \tilde{\rho}_f \sum_{j=1}^3 k_{pj}$ (kg/(m ³ .s))	A_{p1} (s ⁻¹)	E_{p1} (kJ/mol)	ΔH_{p1} (MJ/kg de combustible)	[67]
	1,44 × 10 ⁴	88,6	0,42	[90]
	A_{p2} (s ⁻¹)	E_{p2} (kJ/mol)	ΔH_{p2} (MJ/kg de combustible)	
	4,13 × 10 ⁶	112,7	0,42	
	A_{p3} (s ⁻¹)	E_{p3} (kJ/mol)	ΔH_{p3} (MJ/kg de combustible)	
	7,38 × 10 ⁵	106,5	0,42	
Réactions hétérogènes du char $R_{c1} : \text{C} + 0,5\text{O}_2 \xrightarrow{k_{c1}} \text{CO}$ $R_{g1} : \text{C} + \text{CO}_2 \xrightarrow{k_{g1}} 2\text{CO}$ $R_{g2} : \text{C} + 2\text{H}_2 \xrightarrow{k_{g2}} \text{CH}_4$ $R_{g3} : \text{C} + \text{H}_2\text{O} \xrightarrow{k_{g3}} \text{CO} + \text{H}_2$ (mol/(m ³ .s))	A_{c1} (m/s)	E_{c1} (kJ/mol)	ΔH_{c1} (kJ/mol)	[67]
	1,74 T _s	74,83	-111,9	
	A_{g1} (m/s)	E_{g1} (kJ/mol)	ΔH_{g1} (kJ/mol)	
	3,42 T _s	129,7	170,6	
	A_{g2} (m/s)	E_{g2} (kJ/mol)	ΔH_{g2} (kJ/mol)	
	3,42 × 10 ⁻³ T _s	129,7	-41,2	

	A_{g3}	E_{g3}	ΔH_{g3}	
	$\left(\frac{m}{s}\right)$	$\left(\frac{kJ}{mol}\right)$	$\left(\frac{kJ}{mol}\right)$	
	5,7114 T _s	129,7	131,4	

Tableau III-3. Cinétiques des réactions homogènes

Cinétique de réaction (mol/(m ³ .s))	Enthalpie de réaction (kJ/mol)	Réf.
$R_{c2} : C_6H_{6,2}O_{0,2} + 2,9O_2 \xrightarrow{k_{c2}} 6CO + 3,1H_2$ $R_{c2} = 59,8 \exp\left(\frac{-12200}{T_g}\right) T_g P_{atm}^{0,3} C_{C_6H_{6,2}O_{0,2}}^{0,5} C_{O_2}$	$\Delta H_{c2} = -630,6$	[67]
$R_{c3} : CH_4 + 1,5O_2 \xrightarrow{k_{c3}} 2H_2O + CO$ $R_{c3} = 9,2 \times 10^6 \exp\left(\frac{-9650}{T_g}\right) T_g C_{CH_4}^{0,5} C_{O_2}$	$\Delta H_{c3} = -566,5$	[76]
$R_{c4} : 2CO + O_2 \xrightarrow{k_{c4}} 2CO_2$ $R_{c4} = 10^{17,6} \exp\left(\frac{-20000}{T_g}\right) C_{CO} C_{O_2}^{0,25} C_{H_2O}^{0,5}$	$\Delta H_{c4} = -565,2$	[76],[66]
$R_{c5} : 2H_2 + O_2 \xrightarrow{k_{c5}} 2H_2O$ $R_{c5} = 10^{11} \exp\left(\frac{-5051}{T_g}\right) C_{H_2} C_{O_2}$	$\Delta H_{c5} = -495,7$	[76]
$R_{g4} : CH_4 + H_2O \xrightarrow{k_{g4}} 3H_2 + CO$ $R_{g4} = 3015 \exp\left(\frac{-15097}{T_g}\right) C_{CH_4} C_{H_2O}$	$\Delta H_{g4} = 177,1$	[67]
$R_{g5} : C_6H_{6,2}O_{0,2} + 5,8 H_2O \xrightarrow{k_{g5}} 8,9H_2 + 6CO$ $R_{g5} = 70 \exp\left(\frac{-2013}{T_g}\right) C_{C_6H_{6,2}O_{0,2}}^{0,25} C_{H_2O}^{1,25}$	$\Delta H_{g5} = 177,1$	[67]
$R_{wgs} : CO + H_2O \xrightleftharpoons{k_{wgs}} CO_2 + H_2$	$\Delta H_{wgs} = -41,2$	[76] [67]

$R_{wgs} = 2,78 \exp\left(\frac{-1513}{T_g}\right) \left(C_{H_2O} C_{CO} - \frac{C_{CO_2} C_{H_2}}{k_{wgse}}\right)$ $k_{wgse} = 0,0265 \exp\left(\frac{3966}{T_g}\right)$	
----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	--

III.1.2. Bilans de matière

III.1.2.1. Bilans de matière en phase solide

La phase solide est modélisée comme un milieu poreux composé de particules de masse volumique $\tilde{\rho}_p$. Les particules sont composées à la fois d'humidité de concentration massique dans le solide $\tilde{\rho}_m$, de combustible sec de concentration massique $\tilde{\rho}_f$ et de char de concentration massique $\tilde{\rho}_c$ Eq. (III-34). Leur composition évolue au fur et à mesure qu'elles réagissent chimiquement avec la phase gazeuse Eqs. (III-35)-(III-37). Les bilans de matière de la phase solide sont dressés à l'échelle de la particule, et transposés à l'échelle du lit en multipliant par la fraction de solide du lit $\theta = 1 - \varepsilon_b$.

$$\tilde{\rho}_p = \tilde{\rho}_m + \tilde{\rho}_f + \tilde{\rho}_c \quad (III-34)$$

$$\theta \frac{\partial \tilde{\rho}_m}{\partial t} = -R_d \theta \quad (III-35)$$

$$\theta \frac{\partial \tilde{\rho}_f}{\partial t} = -R_p \theta \quad (III-36)$$

$$\theta \frac{\partial \tilde{\rho}_c}{\partial t} = \nu_c \frac{M_c}{M_f} R_p \theta - R_{cchar} M_c \quad (III-37)$$

III.1.2.2. Bilans de matière en phase gaz

Le bilan de matière des espèces gazeuses s'écrit selon l'Eq. (III-38) :

$$\varepsilon_b \bar{\rho}_g \frac{\partial \omega_i}{\partial t} + \nabla \cdot (j_i) + \bar{\rho}_g (U_g \cdot \nabla) \omega_i = S_{Ri} \quad (III-38)$$

Dans cette équation :

ε_b est la macroporosité ;

$\bar{\rho}_g$ est la masse volumique du gaz en $kg.m^{-3}$;

ω_i est la fraction massique des espèces gazeuses i dans le gaz ;

j_i correspond au terme de transport par diffusion calculé par la loi de Fick Eq. (III-46) en $kg_i.m^{-2}.s^{-1}$;

U_g est la vitesse du gaz en $m \cdot s^{-1}$;

S_{Ri} est le terme source de l'espèce i en $kg_i \cdot m_{lit}^{-3} \cdot s^{-1}$.

Les espèces produites pendant le séchage et la pyrolyse ainsi que celles intervenant dans les réactions homogènes et hétérogènes sont incluses dans le bilan de la phase gaz avec les termes sources suivants Eq. (III-39)-(III-45) :

$$S_{RH_2O} = \left(\left(R_d + v_{H_2O} \frac{R_p}{M_f} \right) \theta + 2R_{c3} + 2R_{c5} - R_{wgs} - R_{g4} - 5,8R_{g5} \right) M_{H_2O} \quad (III-39)$$

$$S_{RH_2} = \left(\left(v_{H_2} \frac{R_p}{M_f} - 2R_{g2} + R_{g3} \right) \theta + 3,1R_{c2} - 2R_{c5} + R_{wgs} + 3R_{g4} + 8,9R_{g5} \right) M_{H_2} \quad (III-40)$$

$$S_{RCH_4} = \left(\left(v_{CH_4} \frac{R_p}{M_f} + R_{g2} \right) \theta - R_{c3} - R_{g4} \right) M_{CH_4} \quad (III-41)$$

$$S_{RCO} = \left(\left(v_{CO} \frac{R_p}{M_f} + R_{c1} + 2R_{g1} + R_{g3} \right) \theta - 2R_{c4} + 6R_{c2} + R_{c3} - R_{wgs} + R_{g4} + 6R_{g5} \right) M_{CO} \quad (III-42)$$

$$S_{RCO_2} = \left(\left(v_{CO_2} \frac{R_p}{M_f} - R_{g1} \right) \theta + 2R_{c4} + R_{wgs} \right) M_{CO_2} \quad (III-43)$$

$$S_{RC_6H_{6,2}O_{0,2}} = \left(\left(v_{C_6H_{6,2}O_{0,2}} \frac{R_p}{M_f} \right) \theta - R_{c2} - R_{g5} \right) M_{C_6H_{6,2}O_{0,2}} \quad (III-44)$$

$$S_{RO_2} = \left((-0,5R_{c1})\theta - R_{c4} - 2,9R_{c2} - 1,5R_{c3} - R_{c5} \right) M_{O_2} \quad (III-45)$$

$$j_i = -\bar{\rho}_g D_i \nabla \omega_i \quad (III-46)$$

III.1.3. Bilan de quantité de mouvement

L'équation de Brinkman Eq. (III-47) est adoptée pour décrire l'écoulement de la phase gazeuse [98].

$$\begin{aligned} \frac{\bar{\rho}_g}{\varepsilon_b} \frac{\partial U_g}{\partial t} = & -\nabla P + \nabla \cdot \left[\frac{1}{\varepsilon_b} \left\{ \mu_g (\nabla U_g + (\nabla U_g)^T) - \frac{2}{3} \mu_g (\nabla U_g) I \right\} \right] \\ & - \left(\frac{\mu_g}{\kappa} + \frac{CF}{\sqrt{\kappa}} \bar{\rho}_g |U_g| + \frac{S_{Ri}}{\varepsilon_b^2} \right) U_g \end{aligned} \quad (III-47)$$

La perméabilité du lit κ et la viscosité dynamique μ_g sont calculées avec les corrélations (III-48) et (III-49), comme proposé dans [75]:

$$\kappa = \frac{dp^2 \varepsilon_b^3}{180(1 - \varepsilon_b)^2} \quad (\text{III-48})$$

$$\mu_g = 1,98 \times 10^{-5} \left(\frac{T_g}{300} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (\text{III-49})$$

Le gaz est considéré comme un gaz parfait. La masse volumique du gaz est donc calculée grâce à l'équation (III-50) et la masse molaire du gaz à l'aide de l'équation (III-51):

$$\bar{\rho}_g = \frac{PM_g}{R_g T_g} \quad (\text{III-50})$$

$$M_g = \sum X_i M_i \quad (\text{III-51})$$

Dans l'équation (III-51), X_i et M_i correspondent à la fraction molaire et à la masse molaire des composés de la phase gazeuse, respectivement.

Finalement, pour un écoulement considéré incompressible, l'équation de continuité s'écrit selon (III-52) :

$$\bar{\rho}_g \nabla U_g = \sum S_{Ri} \quad (\text{III-52})$$

Le terme source $\sum S_{Ri}$ correspond à la somme des termes sources des espèces gazeuses Eqs. (III-37),(III-39)-(III-45).

III.1.4. Bilans thermiques

III.1.4.1. Bilan thermique de la phase solide

Il est considéré dans le modèle que le solide et le gaz ne sont pas à l'équilibre thermique. Des bilans thermiques indépendants sont donc résolus pour chaque phase avec un terme de couplage représentant les échanges de chaleur entre ces deux phases. Ce terme de couplage est considéré comme uniquement convectif en adéquation avec des travaux précédents [75],[67,96]. En effet, le gaz est considéré comme transparent donc le rayonnement dans cette phase n'est pas pris en compte.

Le bilan thermique de la phase solide est défini par l'équation (III-53).

$$\theta \frac{\partial \sum_i \tilde{\rho}_{i,s} C_{pi} T_s}{\partial t} + \theta \nabla \left(\sum_i \tilde{\rho}_{i,s} C_{pi} T_s \right) = \nabla \cdot (\lambda_s^* \nabla T_s) + Q_s - Q_{sg} \quad (\text{III-53})$$

$i = m, f, c$

Dans cette équation :

θ est la fraction solide dans le lit ;

$\tilde{\rho}_{i,s}$ représente la concentration massique volumique d'un composé i de la phase solide (biomasse sèche, char ou humidité) en $\frac{kg}{m^3 \text{ de solide}}$;

C_{pi} est la capacité thermique massique du composé i en $\frac{J}{kg \cdot K}$;

T_s est la température de la phase solide en K ;

λ_s^* est la conductivité thermique effective de la phase solide en $\frac{W}{m \cdot K}$, déterminée grâce à l'Eq. (III-58) ;

Q_s est la puissance thermique due aux réactions chimiques, incluant le séchage, la pyrolyse et les réactions hétérogènes (cf. Tableau III-2) en $\frac{W}{m^3}$;

Q_{sg} est la puissance thermique échangée entre la phase solide et la phase gaz en $\frac{W}{m^3}$.

Le terme source Q_s est calculé d'après l'équation (III-54) :

$$Q_s = \sum_j \Delta H_j R_j \theta \quad (\text{III-54})$$

$$j = d, p, c1, g1 - g3$$

L'échange de chaleur entre les deux phases est supposé avoir lieu par convection. La puissance thermique Q_{sg} est calculée d'après l'équation (III-55).

$$Q_{sg} = A_p h_{sg} (T_s - T_g) \quad (\text{III-55})$$

Selon [100], le coefficient interstitiel de transfert de chaleur h_{sg} dans un lit constitué de sphères est estimé par l'Eq. (III-56) :

$$h_{sg} = \left[d_p \left(\frac{1}{\lambda_g Nu} + \frac{1}{\beta \lambda_s^*} \right) \right]^{-1} \quad (\text{III-56})$$

Dans cette équation :

h_{sg} est le coefficient interstitiel de transfert de chaleur en $\frac{W}{m^2 \cdot K}$;

le coefficient β est égal à 10 dans le cas de particules sphériques et le nombre de Nusselt Nu est calculé avec la corrélation (III-57), selon [101].

$$Nu = 2 + 1,1 Pr^{\frac{1}{3}} * Re^{0,6} \quad (\text{III-57})$$

λ_g est la conductivité thermique de la phase gazeuse en $\frac{W}{m \cdot K}$, déterminée grâce à l'Eq. (III-68).

L'estimation de la conductivité thermique d'un combustible poreux dans un système réactif est complexe. Elle dépend de plusieurs caractéristiques physiques telles que la masse volumique, la porosité, la teneur en eau et la température. De plus, le rayonnement thermique dans les milieux à haute température a aussi une influence sur la conductivité thermique. En conséquence, une conductivité thermique effective λ_s^* est adoptée, telle que proposée dans ([70,76]). La conductivité thermique effective est calculée à l'aide de l'équation (III-58) :

$$\lambda_s^* = \varepsilon_b \lambda_{rg} + \varepsilon_b \frac{\lambda_s}{(\lambda_s / (d_p \lambda_{rs}) + 1,43(1 - 1,2\varepsilon_b))} \quad (\text{III-58})$$

Où :

λ_s représente la conductivité de la phase solide en $W/(m \cdot K)$ calculée avec (III-59) ;

λ_{rg} et λ_{rs} représentent la contribution radiative des deux phases en $W/(m^2 \cdot K)$. Ces deux termes sont calculés avec les équations (III-60) et (III-61) :

$$\lambda_s = 0,0013 + 0,05 \left(\frac{T_s}{1000} \right) + 0,63 \left(\frac{T_s}{1000} \right)^2 \quad (\text{III-59})$$

$$\lambda_{rg} = 4\sigma 0,05 T_g^3 \quad (\text{III-60})$$

$$\lambda_{rs} = 4\sigma 0,85 T_s^3 \quad (\text{III-61})$$

Les capacités thermiques massiques de la biomasse C_{pf} et de l'eau C_{pm} sont évaluées avec les équations (III-62) et (III-64) respectivement, comme proposé dans [65]. La corrélation (Eq. (III-63)) permettant de calculer la capacité thermique du char C_{pc} provient de [102] :

$$C_{pf} = -91,2 + 4,4 T_s \quad (J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}) \quad (\text{III-62})$$

$$C_{pc} = 420 + 2,09 T_s - 6,85 \times 10^{-4} T_s^2 \quad (J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}) \quad (\text{III-63})$$

$$C_{pm} = 4180 \quad (J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}) \quad (\text{III-64})$$

III.1.4.2. Bilan thermique de la phase gazeuse

Le bilan thermique de la phase gazeuse s'écrit :

$$\varepsilon_b \bar{\rho}_g C_{pg} \frac{\partial T_g}{\partial t} + \bar{\rho}_g C_{pg} U_g \cdot \nabla T_g = \nabla \cdot (\lambda_g \nabla T_g) + Q_g + Q_{sg} \quad (\text{III-65})$$

Où :

$\bar{\rho}_g$ représente la masse volumique du gaz, incluant toutes les espèces gazeuses, en $\frac{kg}{m^3 \text{ de gaz}}$;

C_{pg} est la capacité thermique massique de la phase gazeuse en $\frac{J}{kg \cdot K}$;

T_g est la température du gaz en K ;

U_g correspond à la vitesse interstitielle du gaz en m/s ;

Q_{sg} est la puissance thermique échangée entre la phase solide et la phase gaz en W/m^3 .

Le terme source Q_g est calculé d'après l'équation (III-66) :

$$Q_g = \sum_j \Delta H_j R_j \quad (\text{III-66})$$

$$j = c2 - c5, g4, g5, wgs$$

Les propriétés thermiques de la phase gazeuse sont calculées à l'aide des corrélations (III-67) et (III-68) :

$$C_{pg} = 990 + 0,122 T_g - 5,68 \times 10^6 T_g^{-2} \quad (\text{III-67})$$

$$\lambda_g = \varepsilon_b 4,8 \times 10^{-4} T_g^{0,717} \quad (\text{III-68})$$

La capacité thermique de la phase gazeuse C_{pg} inclut toutes les espèces, comme dans [103], et la corrélation de la conductivité thermique λ_g provient de [68] et [65].

III.1.5. Tassement du lit

Le tassement est inclus à l'aide d'une routine de maillage mobile qui provoque la contraction du domaine de calcul en fonction de la consommation des particules, comme dans [18]. Il est possible de calculer la hauteur de contraction du domaine de calcul τ , à partir de la diminution de volume des particules V_p , transposée au volume du lit en multipliant par la fraction solide θ . La contraction du domaine est intégrée sur l'axe z , afin de forcer le lit à se tasser suivant la direction gravitationnelle Eq. (III-69).

$$\frac{\partial \tau}{\partial t} = - \frac{\partial V_p}{\partial t} \frac{1}{\theta \cdot \Delta x \Delta y} \quad (\text{III-69})$$

Où :

$\Delta x \Delta y$ correspond à la discrétisation d'une cellule de calcul.

III.2. Simulation numérique

Le logiciel COMSOL Multiphysics® est utilisé pour la résolution du modèle décrit ci-dessus, en se basant sur les données expérimentales de la thèse de Barrio [36]. En effet, ces données expérimentales sont bien renseignées et ont déjà été utilisées par d'autres auteurs pour valider leurs modèles [75].

III.2.1. Description des essais expérimentaux de la thèse de Barrio [36]

Le dispositif expérimental utilisé est un lit fixe à co-courant d'une puissance thermique en entrée de 30 kW. Le réacteur, représenté sur la Figure III-2, est un cylindre de 100 mm de diamètre interne et 500 mm de hauteur, équipé de 7 capteurs de température (T1-T7) placés à différentes hauteurs dans le gazéifieur et insérés à 5 mm à l'intérieur du réacteur. Le gazéifieur fonctionne à une pression légèrement supérieure à la pression atmosphérique. L'alimentation en combustible est réalisée de manière semi-continue grâce à une trémie. De l'air chaud (à 220 °C environ, avec un débit $W_{air} = 9 \text{ kg/h}$) est introduit par l'entrée d'air A2, située à 190 mm sous le haut du gazéifieur, où le combustible est alimenté. Un distributeur circulaire autour du gazéifieur muni de cinq tubes répartis uniformément permet l'injection de l'air. Les résidus solides de la gazéification ainsi que le gaz de synthèse sont récupérés en bas du réacteur.

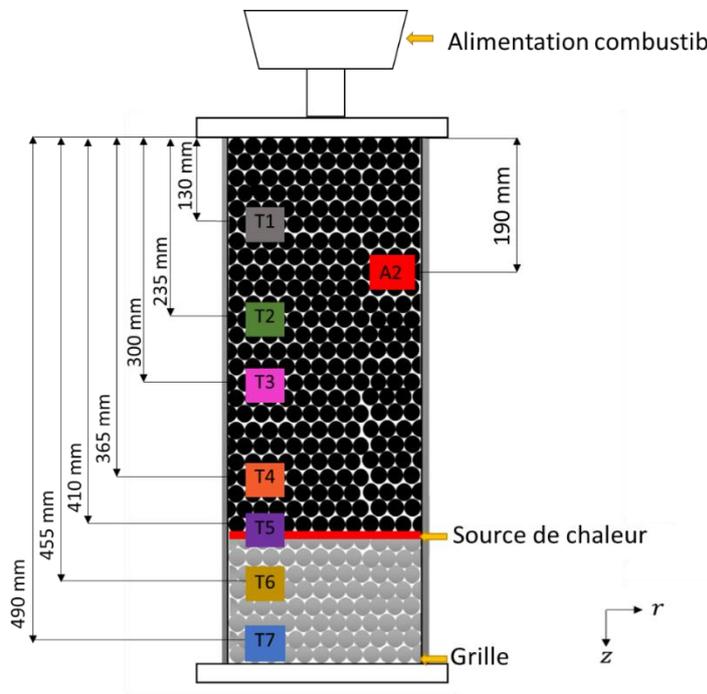


Figure III-2. Schéma du dispositif expérimental

Le combustible gazéifié pendant ces expériences est du bois sous forme de granulés (pellets). Selon Barrio [36], les granulés avaient des propriétés assez uniformes en termes de taille, de composition et de résistance mécanique. Les principales caractéristiques chimiques et physiques du combustible sont présentées dans le Tableau III-4.

Avant de débiter l'expérience, le réacteur est préchauffé à environ 250 °C. En début d'expérience, il est tout d'abord rempli jusqu'à approximativement 1/5e de la hauteur totale avec du char (pellets pyrolysés) ou du charbon de bois du commerce. Ensuite, quelques morceaux de charbon de bois incandescent sont introduits dans le réacteur pour initier l'ignition.

Lorsqu'une augmentation de température est constatée (environ 1000 °C pour les thermocouples T4-T7), le réacteur est rempli jusqu'en haut avec du combustible brut.

Tableau III-4. Caractéristiques du combustible gazéifié [36]

Analyses ultimes	
C (%m sec)	50,7
O (%m sec)	42,4
N (%m sec)	< 0,3
H (%m sec)	(par différence) 6,9
Formule équivalente	CH _{1,63} O _{0,63}
Analyses immédiates	
Humidité (%m)	7,5
Taux de cendres (%m sec)	0,39
Matière volatile (%m sec)	83,3
Carbone fixe (%m sec)	15,4
Propriétés physiques	
Masse volumique vrac (ρ_{b0})	668 kg/m ³
Masse volumique pellet ($\tilde{\rho}_{p0}$)	1058 kg/m ³
Diamètre des pellets	6 mm
Longueur des pellets	6-15 mm
Pouvoir calorifique	18,9 MJ/kg pellet brut

%m sec = pourcentage massique en base sèche

III.2.2. Influence de la géométrie et maillage

Le domaine de calcul est une géométrie rectangulaire axisymétrique à 2D, comme illustré dans la Figure III-3. Le logiciel COMSOL permet de réaliser une révolution sur l'axe permettant d'observer le réacteur sous forme cylindrique. La hauteur (axe z) est de 0,5 m et le rayon (axe r) est de 0,05 m. Il est important de noter que la cote $z = 0$ correspond au haut du réacteur, la cote $r = 0$ est le centre du réacteur et la cote $r = 0,05$ correspond à la paroi.

Le maillage appliqué est composé par des carrés homogènes de 1,4 mm de côté. La taille des mailles a été calibrée à partir de la bibliothèque du logiciel qui propose des maillages adaptés selon les phénomènes modélisés.

III.2.3. Conditions initiales et aux limites

Les conditions initiales sont aussi représentatives que possible de celles utilisées dans l'étude expérimentale. On considère que le réacteur contient des particules de char sur 1/5e de sa hauteur, le reste étant des particules de bois brut. Les vides sont occupés par de l'air à la pression atmosphérique. Les particules sont supposées être des sphères. Pour cela, le diamètre équivalent initial des pellets cylindriques est calculé à l'aide de l'équation (III-70) :

$$d_{p0} = \emptyset d_{sph} \quad (\text{III-70})$$

Où :

\emptyset est le facteur de sphéricité qui représente le rapport entre la surface d'une sphère (ayant le même volume qu'un granulé) et la surface réelle d'un granulé ;

d_{sph} est le diamètre d'une sphère ayant le même volume que les granulés.

Le taux de vide initial est calculé comme suit Eq. (III-71) :

$$\varepsilon_{b0} = 1 - \frac{\rho_{b0}}{\tilde{\rho}_{p0}} \quad (\text{III-71})$$

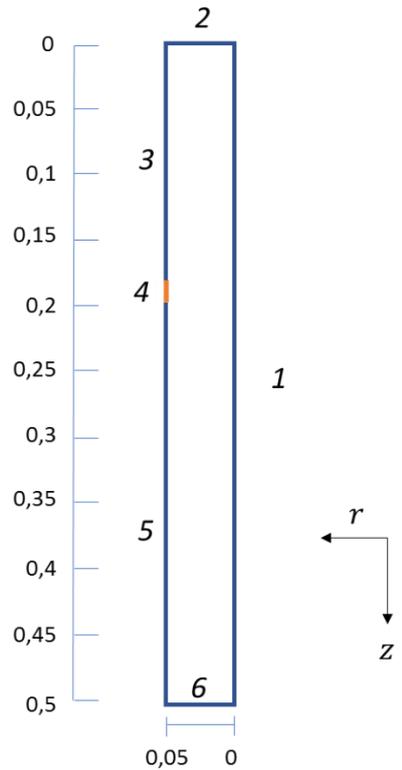
La température initiale pour les deux phases est égale à 220 °C selon les données expérimentales de Barrio [36].

Les conditions initiales implémentées sont récapitulées dans le Tableau III-5.

Tableau III-5. Conditions initiales

Fractions molaires des composés du gaz (air)	$x_{0,O_2} = 0,21$ $x_{0,N_2} = 0,79$
Température de la phase solide et de la phase gaz	$T_{g0} = T_{s0} = 220 \text{ }^\circ\text{C}$
Diamètre des particules	$d_{p0} = 6,9 \text{ mm}$
Pression	$P_0 = P_{atm} = 101325 \text{ Pa}$
Masse volumique des particules au-dessus de la source de chaleur (bois)	$\tilde{\rho}_{p0(z < 0,4)} = \tilde{\rho}_{f0} + \tilde{\rho}_{m0} = 1058 \text{ kg/m}^3$
Masse volumique des particules au-dessous de la source de chaleur (char)	$\tilde{\rho}_{p0(z > 0,4)} = \tilde{\rho}_{c0} = 141,2 \text{ kg/m}^3$
Porosité macroscopique	$\varepsilon_{b0} = 0,37$

Le domaine de calcul est délimité par 6 frontières comme le montre la Figure III-3.



Frontière 1: axisymétrie du domaine
 Frontière 2: haut du lit réactif
 Frontières 3 et 5: paroi
 Frontière 4: entrée de l'agent oxydant
 Frontière 6: sortie du réacteur

Figure III-3. Représentation du domaine de calcul

Les conditions aux limites associées à chaque frontière sont récapitulées dans le Tableau III-6.

Tableau III-6. Conditions aux limites

Frontière	Conditions aux limites	
2, 3, 5	Flux nul $-n \nabla j_i = 0$ $i = H_2O, H_2, CO, CO_2, O_2, N_2, CH_4, C_6H_{6,2}O_{0,2}$	(III-72)
	Adiabatique $-n \nabla q_x = 0$ Avec $x = s$ et g	(III-73)

	Condition à la paroi (pas de glissement de vitesse) $u_{tr} = 0$	(III-74)
4	Fraction molaire des composés du gaz oxydant $x_{0,O_2} = 0,21$ $x_{0,N_2} = 0,79$	(III-75)
	Température constante du gaz oxydant $T_{ge} = 220 \text{ }^\circ\text{C}$	(III-76)
	Flux de matière de gaz oxydant $N_{air} = \frac{W_{air}}{S_{air}}$	(III-77)
6	Flux sortant $-n \bar{\rho}_g D_i \nabla \omega_i = 0$ $i = H_2O, H_2, CO, CO_2, O_2, N_2, CH_4, C_6H_{6,2}O_{0,2}$	(III-78)
	Condition de continuité de la pression $P_0 = P_{atm} = 101325 \text{ Pa}$	(III-79)
	Adiabatique $-n \nabla q_x = 0$ Avec $x = s \text{ et } g$	(III-80)

III.2.4. Hypothèses simplificatrices entre l'expérience et la modélisation

Le caractère transitoire du modèle permet la simulation du procédé depuis l'étape d'ignition. Cependant, plusieurs hypothèses simplificatrices par rapport aux conditions opératoires de l'expérience ont été mises en place afin d'accompagner le développement du modèle :

- Tout d'abord, le réacteur est rempli avec du char sur 1/5e de sa hauteur (comme dans l'expérience) mais le combustible brut est introduit dès le début (avant l'ignition) dans le modèle, alors que dans l'expérience, la partie haute du réacteur ne contient pas de combustible. En effet, modéliser le remplissage du réacteur par de la biomasse fraîche nécessite, tout d'abord, la modélisation du *freeboard* (le volume du réacteur occupé uniquement par le gaz) ainsi que des échanges de transfert de matière et thermiques à l'interface des deux combustibles (char introduit avant l'ignition et biomasse introduite

à la fin de l'ignition). Cela complexifie le modèle et provoque des changements brusques dans le domaine de calcul, difficiles à gérer d'un point de vue numérique.

- Cette même complexité a motivé l'absence, dans le modèle, de réalimentation en combustible brut une fois que le combustible présent dans le gazéifieur a été consommé.
- Dans le modèle, il n'y a pas d'extraction du solide par la grille, alors que c'est le cas dans l'expérience.
- Le réacteur est considéré comme adiabatique, alors que Barrio [36] estime entre 30% et 40% de pertes thermiques à la paroi. Dans des versions précédentes du modèle, les pertes thermiques ont été prises en compte comme proposé dans [104]. Cette mise en équation n'est pas compatible avec la modélisation du tassement par déformation du domaine ; en conséquence, les pertes thermiques ont été négligées.
- En ce qui concerne l'ignition, une source de chaleur est modélisée à l'interface combustible brut/char pour démarrer l'ignition du lit. Cette étape simule l'effet des morceaux de charbon de bois incandescents utilisés dans l'expérience. Puisque les caractéristiques de la source d'ignition de l'expérience sont inconnues comme souvent, la puissance de la source appliquée dans la simulation est telle que la montée en température est similaire à celle constatée dans l'expérience. Plusieurs tests ont été réalisés en faisant varier la puissance de la source jusqu'à trouver un comportement similaire à celui de l'expérience. Pour l'arrêt de la source, une fonction rampe est définie pour diminuer sa puissance de manière progressive et éviter une discontinuité brusque lorsqu'une température suffisante a été atteinte pour maintenir le procédé. Pour déterminer l'arrêt de la source, plusieurs tests numériques ont été réalisés pour déterminer une durée suffisante pour que le front de réaction avance dans la biomasse fraîche. Il est important de préciser qu'une simulation complète dure environ 15 jours, limitant le nombre de tests. La fonction rampe appliquée à la source de chaleur est montrée dans l'Annexe 1.

III.3. Validation du modèle et analyse des résultats

Peu d'études dans la littérature simulent et valident l'état transitoire des modèles de gazéification [71],[96].

Dans cette thèse, la validation de la dynamique du procédé est réalisée à partir de l'avancement du front de réaction dans le réacteur depuis l'ignition. Pour ce faire, les profils de températures dynamiques expérimentaux et simulés ont été comparés.

III.3.1. Profils dynamiques de températures

La Figure III-5 montre les profils de températures expérimentaux en pointillés et les profils simulés avec des traits complets. Trois zones sont identifiées sur la Figure III-5 : l'ignition (de 0 à 13 min environ), l'avancée du front de réaction (de 13 min à 53 min environ) et l'extinction (au-delà de 53 min).

Les thermocouples T5, T6 et T7 sont placés dans le char, au-dessous de la source de chaleur. Ce sont les premiers thermocouples à enregistrer la montée de température lors de l'étape d'ignition. Nous pouvons observer un écart d'approximativement 200 K entre les températures maximales expérimentales et simulées en ces 3 points, les températures maximales simulées étant supérieures à celles expérimentales. Cet écart reste néanmoins du même ordre de grandeur que ceux constatés dans des études similaires [51],[96]. Dans la Figure III-4, les profils dynamiques de températures obtenus par Gonzalez *et al.* [96] sont reportés. Ces auteurs ont modélisé un gazéifieur à contre-courant. Les profils à gauche correspondent aux profils simulés et ceux à droite sont les profils expérimentaux. On peut constater un écart d'environ 250 K entre les températures maximales.

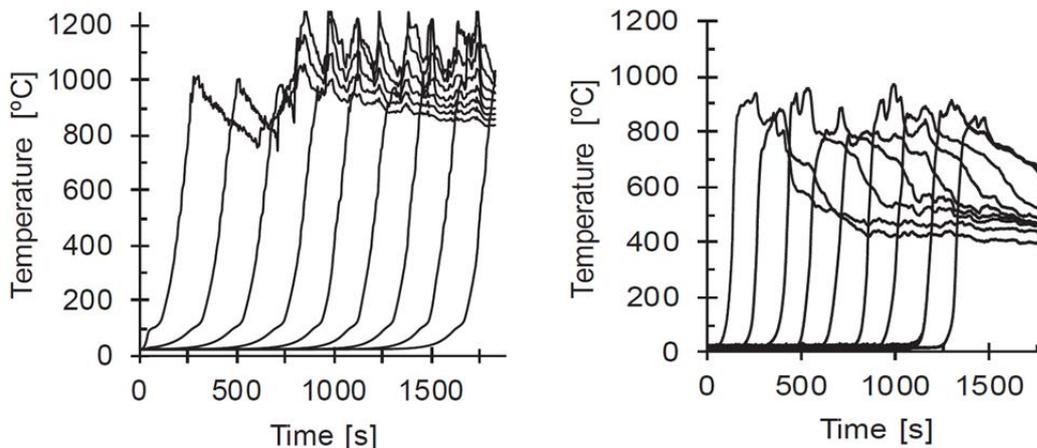


Figure III-4. Profils dynamiques modélisés (à gauche) et expérimentaux (à droite) dans [96].

Comme évoqué par Gómez *et al.* [51], la complexité et le couplage fort des phénomènes mis en jeu dans les procédés de conversion thermo-chimique rendent difficile l'identification des facteurs de divergence entre les modèles proposés dans la littérature et les expériences. Plusieurs éléments permettent d'expliquer cet écart. D'une part, les mesures réalisées par les thermocouples dans le dispositif expérimental mesurent la température de l'environnement non homogène qui les entoure. Au contraire, le modèle suppose un milieu poreux homogène.

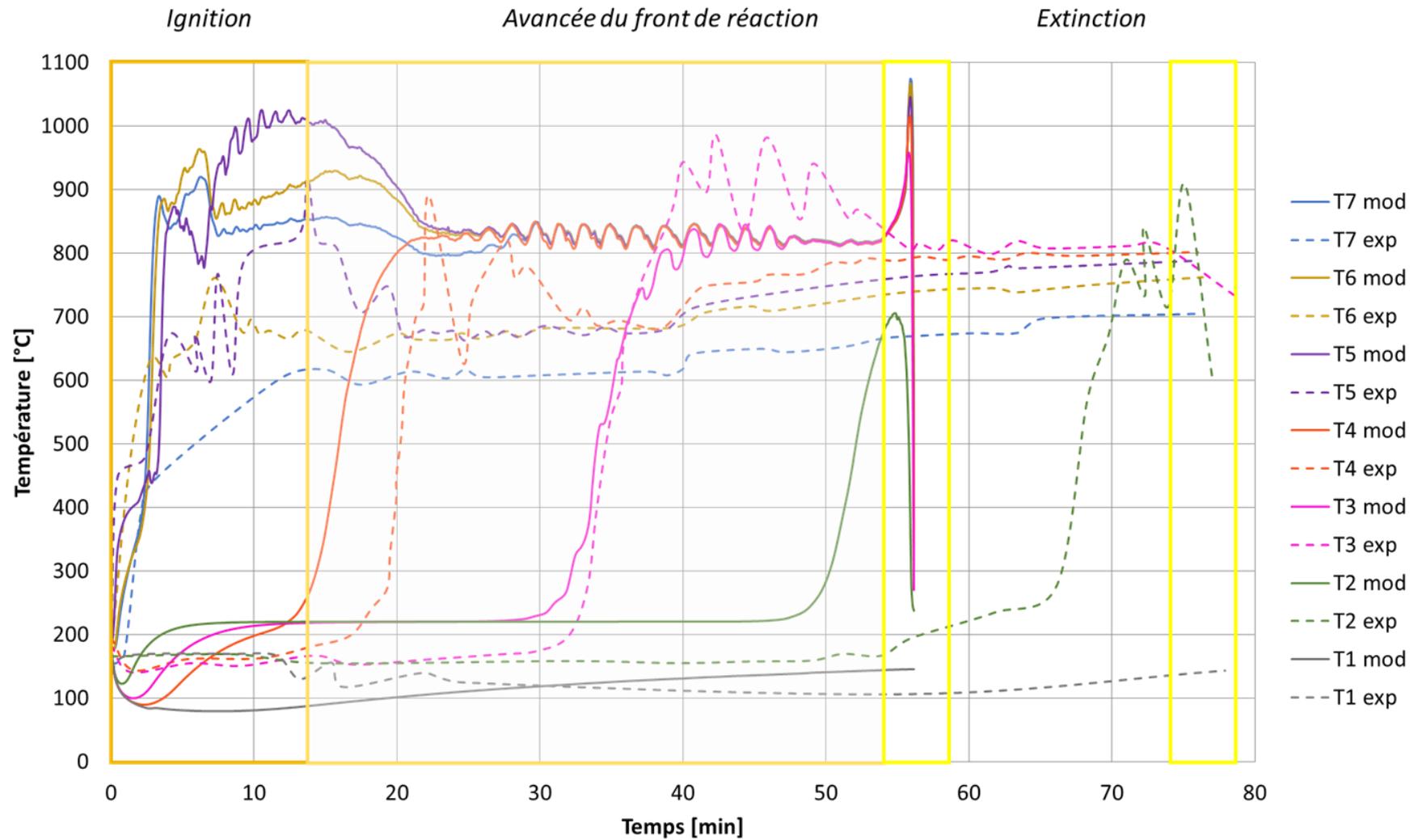


Figure III-5. Profils de températures dynamiques expérimentaux et modélisés

D'autre part, la différence entre la puissance de la source d'ignition modélisée et celle utilisée lors de l'expérience, qui est inconnue, peut expliquer le décalage entre les températures maximales. De plus, dans le modèle, les pertes thermiques vers l'extérieur ont été négligées.

D'autres sources d'écart peuvent être liées aux cinétiques de réactions utilisées dans les modèles ou à la simplification des phénomènes de transport et de réaction à l'intérieur des particules.

Enfin, dans le modèle proposé dans cette thèse, le combustible frais est présent pendant l'étape d'ignition, contrairement à l'expérience où le combustible est introduit environ 7 minutes après le lancement de l'ignition. Dans la configuration du modèle, le séchage et la pyrolyse du combustible ainsi que les réactions de combustion peuvent débuter de manière anticipée, provoquant l'augmentation de la température.

Les thermocouples T4, T3 et T2 montrent l'avancée du front dans le combustible frais. On observe que le front de réaction dans la simulation est en avance dans le temps par rapport à l'expérience. L'arrivée du front au niveau de T4 est en avance de 5 minutes par rapport à l'expérience.

Certains auteurs [96] ont évalué la précision de leur modèle à partir de l'avancement du front de réaction. La vitesse du front de réaction VFF peut être calculée en divisant la distance verticale entre deux points par le temps écoulé pour que ces deux points atteignent la même température Eq. (III-81). Dans cette thèse, la température choisie est 600 °C.

$$VFF = \frac{Z_{1,600^{\circ}C} - Z_{2,600^{\circ}C}}{\Delta t} \quad (III-81)$$

La vitesse du front de réaction, expérimentale et modélisée, a été calculée entre les thermocouples T5/T4 et T4/T3. Pour évaluer la précision du modèle, l'écart absolu et relatif entre les valeurs expérimentales et simulées est calculé (Tableau III-7).

Tableau III-7. Ecart relatif et absolu de la vitesse du front expérimentale et modélisée

	Expérimental	Modèle	Ecart absolu	Ecart relatif
$VFF_{5/4}$	2,6 mm/min	3,4 mm/min	-0,8 mm/min	-31%
$VFF_{4/3}$	4,3 mm/min	3,5 mm/min	0,8 mm/min	19%
$VFF_{5/3}$	3,5 mm/min	3,4 mm/min	0,1 mm/min	3%

La vitesse du front modélisée et celle expérimentale ont un écart de +/-0,8 mm/min. L'écart relatif entre la vitesse du front de réaction expérimentale et simulée lors de l'étape d'ignition est de -31%. Cet écart peut être dû à la puissance de la source de chaleur, inconnue dans l'expérience et imposée par tâtonnement dans la simulation. Lorsque le front de réaction avance dans le combustible frais, l'écart relatif est de 19%. Cet écart peut être en partie expliqué par les cinétiques de réactions utilisées et les températures plus élevées atteintes dans la simulation, qui accélèrent la combustion du char produit par pyrolyse. Finalement, en calculant la vitesse du front depuis l'ignition jusque dans la biomasse fraîche (entre T5 et T3), l'écart relatif s'élève à 3%.

Lors de la simulation, nous observons l'extinction du front au niveau du thermocouple T2, placé sous l'entrée d'air. L'arrivée du front à cette hauteur est également en avance (environ 10 minutes) par rapport à l'expérience. Dans l'étude expérimentale, quand le front arrive à ce niveau, du combustible frais est introduit dans le réacteur pour continuer le procédé et atteindre l'état stationnaire. Dans le modèle, la réalimentation n'est pas incluse en raison de la complexité de la simulation du *freeboard* (espace libéré par le combustible consommé, ensuite occupé uniquement par du gaz). Ainsi, en l'absence de réalimentation en biomasse fraîche, le front s'éteint car les réactions de combustion ne se font plus, ce qui ne permet pas de maintenir le réacteur en température.

En conclusion, le modèle simule un avancement du front un peu plus rapide que celui de l'expérience. Cet écart peut être expliqué par la différence des conditions initiales entre la simulation et l'expérience :

- de la biomasse est présente lors de l'étape d'ignition dans la simulation, ce qui accélère le séchage et la pyrolyse, enlevant deux phénomènes endothermiques au cours de l'avancée du front ;
- la puissance et la durée de la source d'ignition sont différentes dans l'expérience et la simulation, ce qui provoque des températures plus élevées dans la simulation, accélérant les réactions de combustion devant les réactions de gazéification ;
- le gazéifieur est considéré comme adiabatique dans la simulation, ce qui entraîne également des températures plus élevées que dans l'expérience.

Enfin, dans la simulation, il n'y a pas de renouvellement de combustible frais ni d'extraction de combustible consommé (dans l'expérience, les résidus solides sont évacués par la grille).

III.3.2. Comparaison des profils de températures

Afin de pouvoir être plus facilement comparés, les profils dynamiques de températures ont été adimensionnalisés. Ceci permet de visualiser les écarts relatifs de température entre modèle et expérience tout en éliminant les écarts temporels. L'adimensionnalisation de la température est réalisée à partir de l'équation (III-82) et celle du temps avec l'équation (III-83).

$$T_{adim} = \frac{T - T_{min}}{T_{max} - T_{min}} \quad (III-82)$$

$$t_{adim} = \frac{t}{t_{50\%}} \quad (III-83)$$

Où :

T_{min} est la température la plus basse atteinte dans la simulation ou l'expérience ;

T_{max} est la température la plus élevée enregistrée dans la simulation ou l'expérience ;

$t_{50\%}$ est le temps auquel la température simulée ou expérimentale est égale à $\frac{T_{min} + T_{max}}{2}$.

Les profils adimensionnalisés des températures T1 à T4 sont montrés sur la Figure III-6.

Les profils adimensionnalisés de la température T1, expérimentale et simulée, sont très différents. Sur le profil simulé, le séchage est réalisé dans les premières minutes de simulation (phénomène identifié dans la zone a) sur la Figure III-6 et ensuite, la température ne fait qu'augmenter lors de l'avancée du front vers le haut du réacteur. Au contraire, dans l'expérience, la température diminue progressivement. En réalité, il est peu pertinent de comparer les profils de la température T1 du fait que dans le modèle, le réacteur est rempli de combustible dès le départ alors que ce n'est pas le cas dans l'expérience. De plus, la température T1 étant située au-dessus du point d'injection d'air, les variations de T1 sont faibles par rapport aux variations des autres températures.

Le phénomène de séchage est également visible dans les premières minutes de simulation pour les thermocouples T2, T3 et T4 (phénomène identifié par les zones a) sur la Figure III-6 : une chute de température d'environ 100 K est observée, ce qui confirme le déclenchement du séchage pendant l'étape d'ignition. Dans l'expérience, le séchage peut être identifié par une pente moins prononcée durant quelques minutes, signalée avec les zones b), au début de la montée de la température, d'après [96].

L'adimensionnalisation des profils de la température T2 permet d'observer que malgré l'extinction prématurée du front de réaction, sa dynamique est simulée de manière satisfaisante. Sur le profil de température simulée, la zone c) montre l'extinction du front alors que la zone d) indique l'extinction du front pendant l'expérience, confirmant le décalage temporel de ce phénomène. Dans l'expérience, une augmentation de la température est ensuite observée (zone e)), correspondant à l'introduction de biomasse fraîche, ce qui permet la reprise (et la poursuite) du procédé. L'introduction de biomasse fraîche n'étant pas incluse dans le modèle, nous pouvons conclure que le comportement du modèle est cohérent.

Les profils de la température au niveau du thermocouple T3 sont confondus. Cette courbe confirme que le modèle est capable de transcrire de manière précise la dynamique de la gazéification. Ainsi, même les oscillations observées sur le profil expérimental se retrouvent simulées, leur existence pouvant être expliquée par la compétition entre les réactions chimiques. La différence de l'amplitude des oscillations peut également être expliquée par les cinétiques des réactions, issues de la littérature, utilisées dans le modèle, qui peuvent provoquer des variations plus fortes que celles expérimentales.

Le profil de température T4 modélisé présente une pente moins prononcée que celle du profil expérimental. Cet écart peut être une conséquence de la dévolatilisation prématurée du combustible pendant l'étape d'ignition, réduisant le volume de gaz volatils présents lors de l'arrivée du front à ce niveau, ralentissant les réactions exothermiques et finalement résultant en une montée en température moins prononcée. Sur le profil simulé, nous observons le séchage dans la zone a) et la pyrolyse dans la zone f).

Les profils adimensionnalisés des températures T5 à T7 sont montrés sur la Figure III-7.

L'emplacement du thermocouple T5 se trouve au niveau de la source de chaleur. Bien que sa puissance soit inconnue dans l'expérience, la dynamique du procédé simulé possède une allure similaire à celle de l'expérience, en retranscrivant les oscillations de la température correspondant à la compétition entre les réactions.

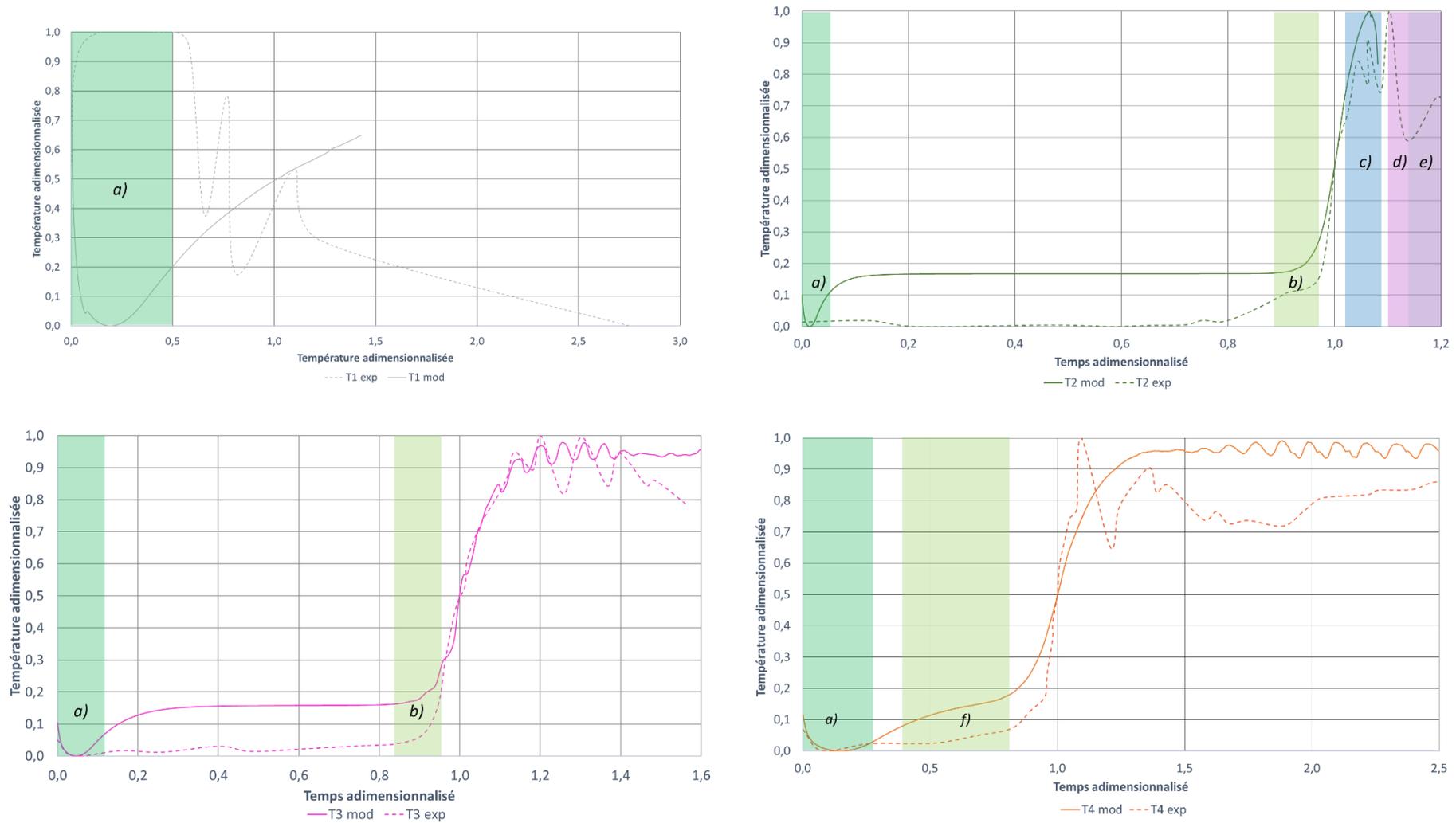


Figure III-6. Profils de températures adimensionnalisés T1, T2, T3, T4

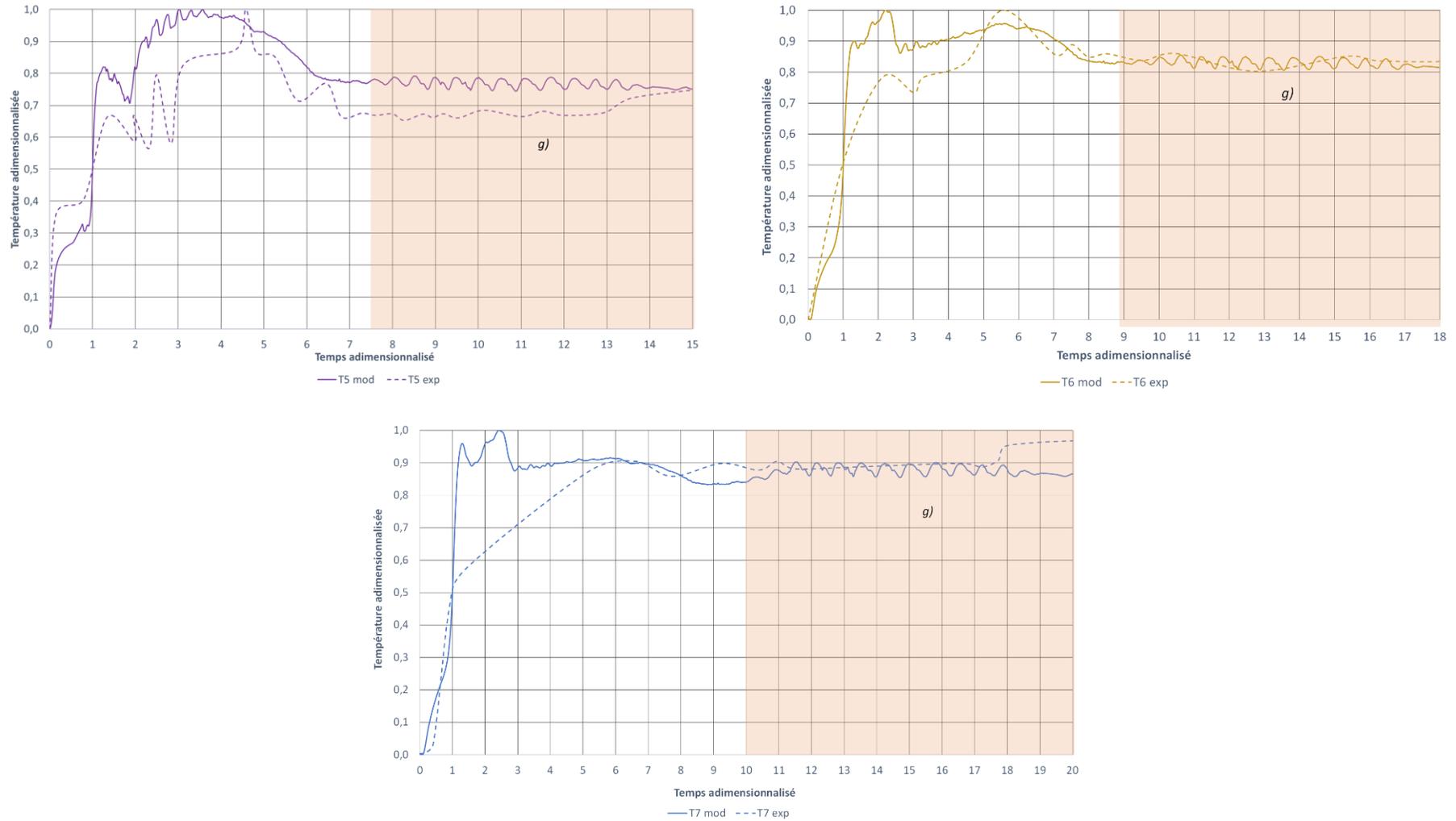


Figure III-7. Profils de températures adimensionnalisés T5, T6, T7

La Figure III-8 montre l'évolution de la température T5 pendant les premières minutes d'ignition, ainsi que l'évolution des pourcentages molaires d'oxygène et de monoxyde de carbone (respectivement réactif et produit principaux des réactions de combustion) au même niveau. Il est possible d'observer qu'une augmentation de la température coïncide avec une augmentation du pourcentage molaire de CO₂ et une diminution du pourcentage molaire d'oxygène.

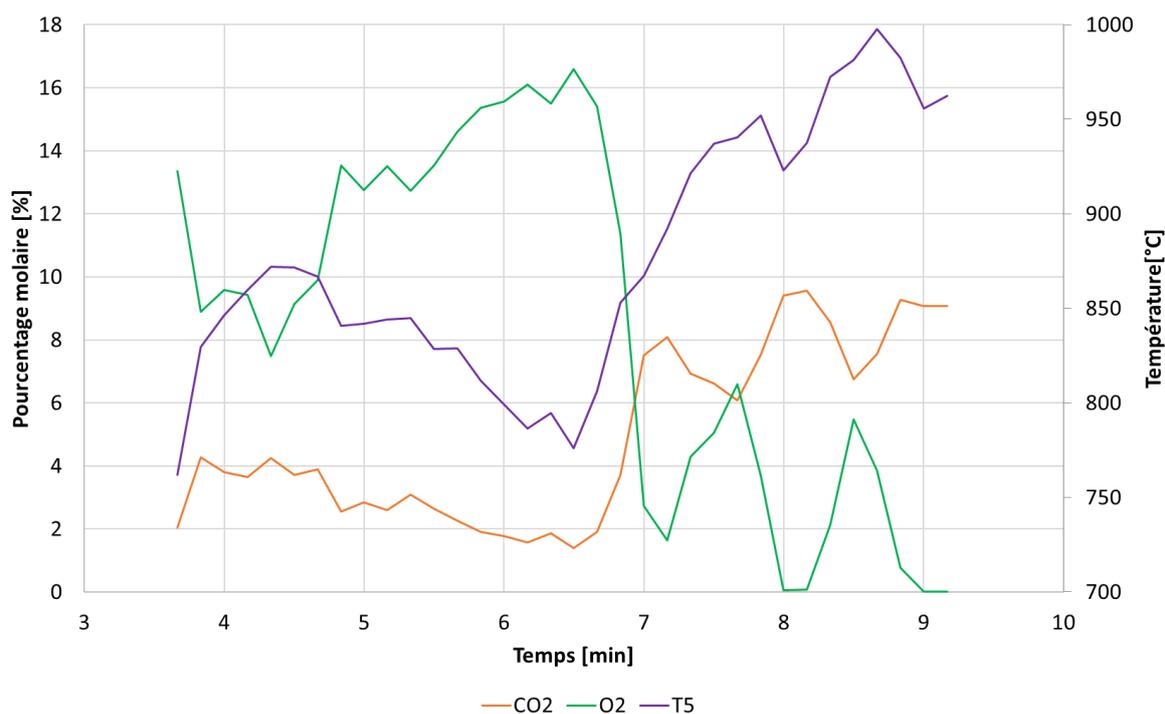


Figure III-8. Oscillations de la température T5 et des pourcentages molaires de CO₂ et d'O₂ lors de l'étape d'ignition

Finalement, les températures T6 et T7 ont des comportements similaires (Figure III-7) : la pente des montées est assez raide au début de la simulation et nous observons la stabilisation de la température après la période d'ignition (zone g)). Les profils simulés montrent également des oscillations. Ces oscillations se produisent autour d'une valeur moyenne qui correspond à l'ordre de grandeur des températures expérimentales stabilisées.

Grâce à ces premiers résultats, nous pouvons conclure que le modèle est capable de reproduire de manière fiable les transitoires de la gazéification : les phénomènes réactionnels fortement couplés à l'écoulement de la phase gaz et aux phénomènes de transferts thermiques dans le milieu poreux sont simulés de manière satisfaisante. Les écarts retrouvés entre les données expérimentales et simulées peuvent être expliqués de manière cohérente par les différences

entre les conditions opératoires, en particulier par la présence de combustible dès l'ignition et par l'absence de réalimentation en combustible frais lorsque le front s'éteint dans le modèle.

III.3.3. Analyse des grandeurs dynamiques

Le caractère dynamique du modèle permet d'analyser l'évolution des profils de concentrations des espèces gazeuses, de concentrations des espèces solides, de la température, de la pression, de la vitesse du gaz, et de la taille des particules. Tous les profils présentés dans cette section sont des profils axiaux ($r = 0 \text{ m}$), c'est-à-dire au centre du réacteur. Les profils sont tracés avec un pas de temps de 500 secondes. Pour rappel, le haut du réacteur correspond à la cote $z = 0$, tandis que la sortie correspond à la cote $z = 0,5 \text{ m}$. Pour rappel également, dans le modèle, le réacteur est initialement rempli de biomasse pour des cotes z de 0 à 0,4 m et de char pour des cotes z de 0,4 à 0,5 m.

III.3.3.1. Température des phases solide et gazeuse

La Figure III-9 permet de visualiser le profil de la température des phases gazeuse et solide. Une représentation du profil de la température en fonction de la hauteur du réacteur permet de visualiser la position des principales transformations à différents temps.

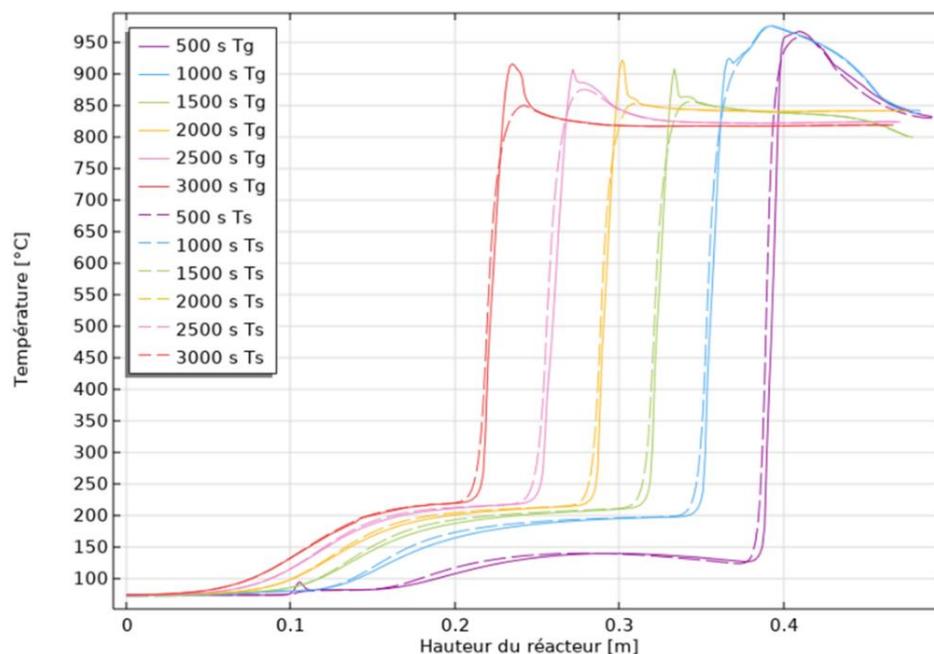


Figure III-9. Profil dynamique axial des températures des phases solide et gazeuse

En haut du réacteur, la température est assez faible malgré le fait que la température initiale de la phase solide et de la phase gaz ait été fixée à 220 °C ; en effet, de la biomasse a été introduite dès le début de la modélisation et le séchage de la biomasse (endothermique) entraîne une

diminution de la température. Une augmentation modérée de la température jusqu'à 140 à 220 °C est ensuite observée (plus bas dans le réacteur). Elle est due à l'injection continue d'air à 220 °C à la cote $z = 0,19 \text{ m}$ (Figure III-2). A une hauteur $z < 0,19 \text{ m}$, la température monte par conduction. En parallèle, le séchage de la biomasse se produit également. Son effet est notable sur le profil à 500 s et explique le fait que la température reste inférieure à 150 °C dans cette zone. Une augmentation brusque de la température est ensuite observée. Elle indique la position du front de pyrolyse et combustion. Après un pic, la température diminue légèrement, du fait que les réactions de gazéification (majoritairement endothermiques) se produisent.

III.3.3.2. Concentrations massiques des espèces solides

Concernant la concentration des espèces solides, la Figure III-10 illustre la concentration d'humidité dans la phase solide. Comme il a été précédemment expliqué, dans la simulation, le séchage de la biomasse est réalisé prématurément, pendant l'étape d'ignition. Le combustible contient initialement 7,5 % massique d'humidité, ce qui correspond à une concentration initiale en humidité de $79,4 \text{ kg/m}^3$ de solide. Après 500 s (8 min 20 s), la teneur en humidité est inférieure à 2 kg/m^3 de solide, ce qui montre que presque toute l'eau a été évaporée.

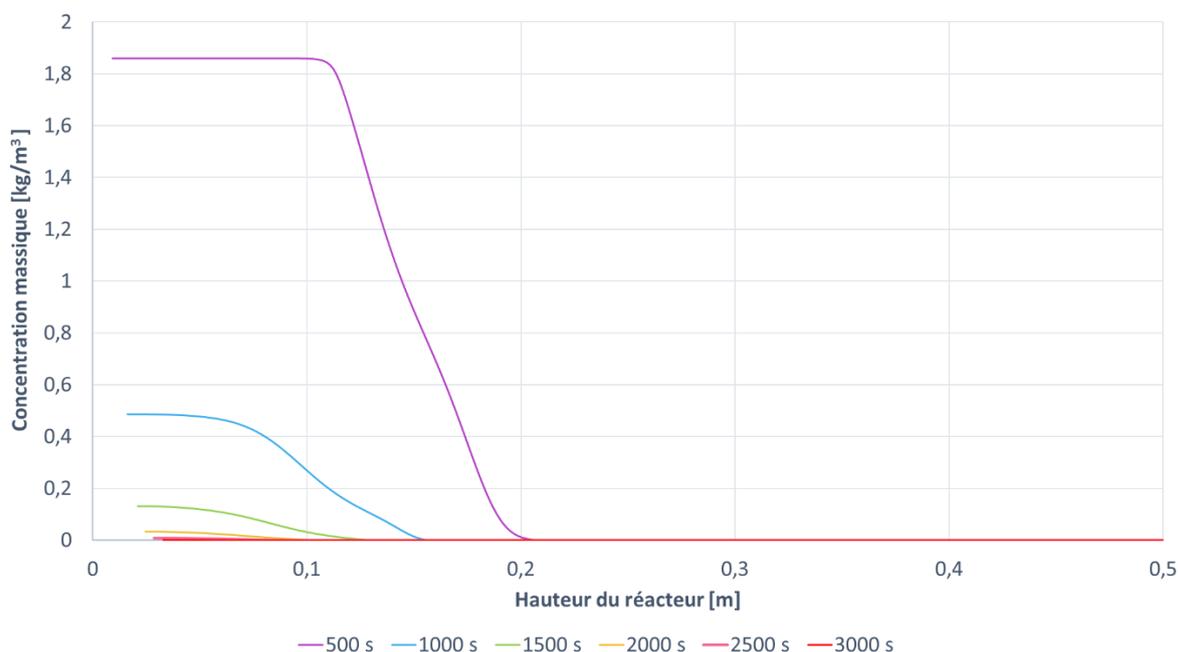


Figure III-10. Profil dynamique axial de la concentration en humidité du combustible

La Figure III-11 montre l'évolution des concentrations de la biomasse sèche et du char dans la phase solide. Au temps initial, le réacteur est rempli de biomasse humide dans sa partie haute (cotes z de 0 à 0,4 m) et de char dans sa partie basse (cotes z de 0,4 à 0,5 m). L'observation des profils de concentration de biomasse sèche permet de visualiser le front de pyrolyse. En effet,

en haut du réacteur, la concentration en biomasse sèche est de $978,7 \text{ kg/m}^3$ de solide. La biomasse sèche est entièrement consommée lors de la pyrolyse afin de produire du char (entre autres), ce qui explique que sa concentration devient nulle. Ces profils sont en accord avec ceux de la température montrés sur la Figure III-9. En ce qui concerne les profils de concentration du char, au niveau du front de pyrolyse, nous constatons sa formation par pyrolyse (conversion de la biomasse sèche en char), suivie très rapidement de sa consommation, ce qui explique les pics observés. Pour rappel, la masse volumique du char est de $141,2 \text{ kg/m}^3$ (Tableau III-5).

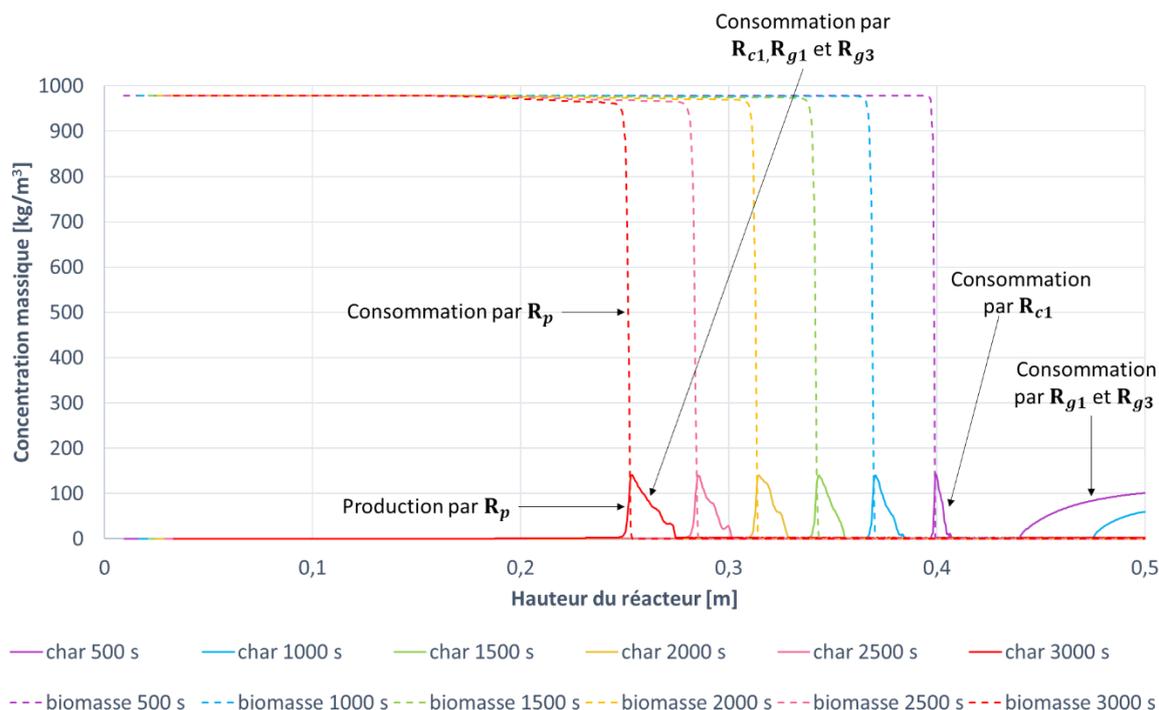


Figure III-11. Profil dynamique axial des concentrations du char et de la biomasse sèche dans la phase solide

Pendant l'étape d'ignition (500 secondes), le char produit est rapidement consommé par la réaction de combustion ($R_{c1} : \text{C} + 0,5\text{O}_2 \xrightarrow{k_{c1}} \text{CO}$) à une hauteur de 0,4 m, tandis que la consommation du char de 0,45 à 0,5 m est plus lente car cette dernière est due aux réactions de gazéification, principalement par la vapeur d'eau et le CO_2 ($R_{g1} : \text{C} + \text{CO}_2 \xrightarrow{k_{g1}} 2\text{CO}$ et $R_{g3} : \text{C} + \text{H}_2\text{O} \xrightarrow{k_{g3}} \text{CO} + \text{H}_2$). En effet, les profils de concentrations des espèces gazeuses décrits par la suite montrent qu'il n'y a plus d'oxygène dans cette zone du réacteur au temps 500 s (Figure III-13) mais que le CO_2 et l' H_2O sont consommés (Figure III-14 et Figure III-19 respectivement) pendant que le CO et l' H_2 sont produits (Figure III-15 et Figure III-16 respectivement). Le profil de concentration du char à 1000 secondes a une allure similaire mais

il est possible de constater que la consommation du char produit par pyrolyse ralentit. En effet, les réactions de combustion impliquant les espèces volatiles libérées lors de la pyrolyse (R_{c2} à R_{c5}) entrent en compétition avec la réaction de combustion du char qui était jusque-là la réaction dominante. D'autre part, la consommation du char produit par pyrolyse correspondant aux profils allant de 2000 à 3000 secondes n'est pas « homogène » comme sur les profils précédents. En effet, sur ces 3 courbes, nous pouvons constater que la conversion du char se fait par différentes réactions, ce qui est mis en évidence par des changements de pente. Ce phénomène est particulièrement marqué dans le profil à 3000 secondes : la conversion du char est plus lente et s'étend sur une hauteur plus importante que dans les autres profils. Cette tendance confirme qu'à cet instant, les réactions de gazéification sont en phase de stabilisation. L'évolution du char dans le réacteur peut être également analysée par la diminution de la taille des particules. La Figure III-12 montre le diamètre des particules dans le réacteur.

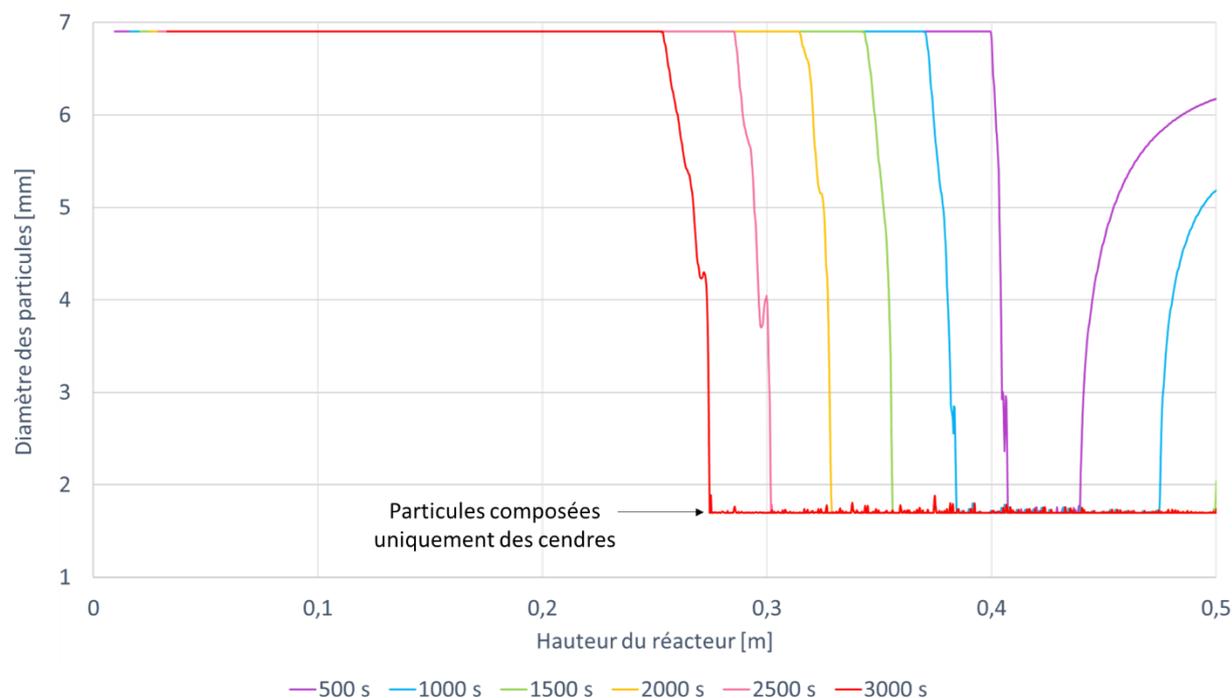


Figure III-12. Profil dynamique axial du diamètre des particules

Le front de combustion du char est visible par la diminution brusque du diamètre des particules de sa valeur initiale (6,9 mm) à la valeur seuil de 1,7 mm. Pour rappel, le diamètre minimal des particules dans les simulations a été fixé à 1,7 mm (elles sont alors uniquement composées de cendres). Lors de l'ignition (500 secondes), la consommation du char par les réactions hétérogènes de combustion est totale entre 0,41 et 0,45 m environ. La consommation des particules de char par gazéification est caractérisée par une cinétique plus lente. Elle peut être observée en zone basse du réacteur pour les profils à 500 et 1000 s. La diminution du diamètre

des particules devient moins prononcée lorsque le front de combustion avance vers le haut du réacteur. Il est également possible d'observer plusieurs pentes de consommations, permettant de conclure que différentes réactions sont responsables de la consommation du char (réaction de combustion R_{c1} et réactions de gazéification R_{g1} , R_{g2} et R_{g3}). En particulier, le profil à 3000 secondes met ce phénomène en évidence.

III.3.3.3. Fractions molaires des espèces gazeuses

Les Figure III-13, Figure III-14 et Figure III-15, montrent l'évolution des profils axiaux ($r = 0$) de l'oxygène, du dioxyde de carbone et du monoxyde de carbone respectivement. Sur ces figures, nous pouvons observer que les profils suivent la même tendance tout le long de la simulation et sont complémentaires. En effet, la consommation d'oxygène correspond à la production de CO et de CO₂ par les réactions suivantes : $R_{c1} : C + 0,5O_2 \xrightarrow{k_{c1}} CO$, $R_{c4} : 2CO + O_2 \xrightarrow{k_{c4}} 2CO_2$.

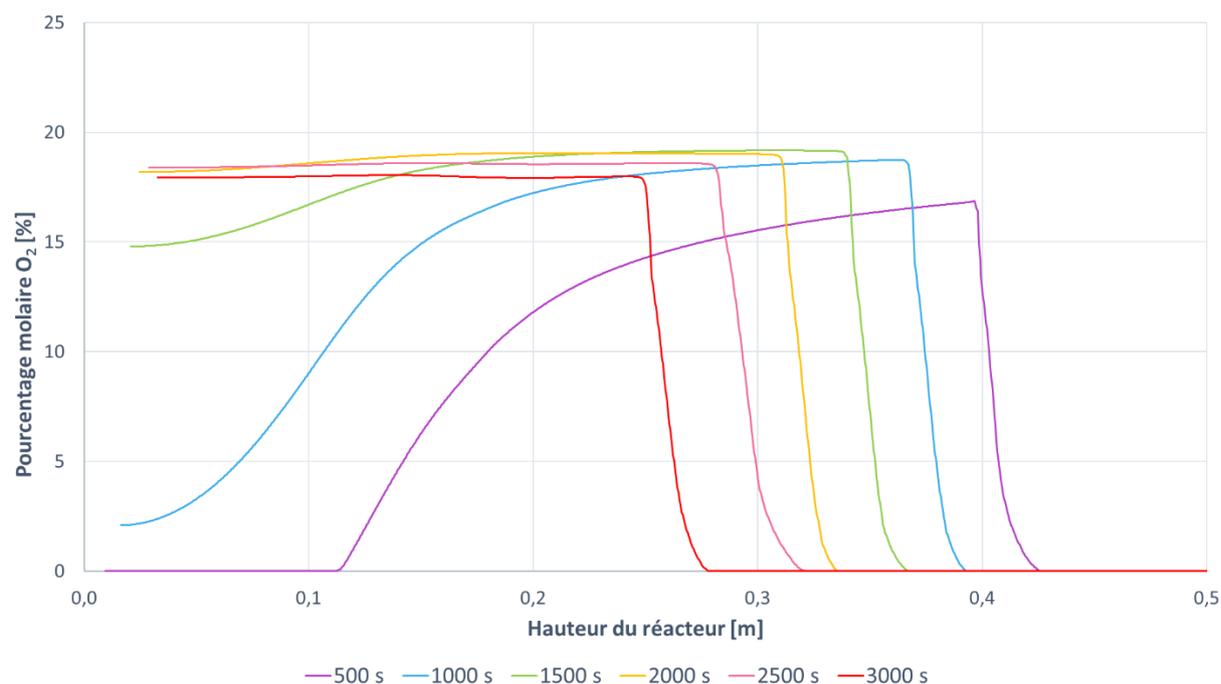


Figure III-13. Profil axial dynamique du pourcentage molaire d'O₂

Sur le profil du CO₂ (Figure III-14), pour des valeurs de $z > 0,2$ m, nous pouvons observer également sa production par pyrolyse et sa participation dans les réactions de gazéification. En effet, il y a une première augmentation du pourcentage molaire du CO₂ correspondant à sa production par pyrolyse puis par les réactions R_{c4} (principalement) et R_{wgs} , caractérisée par une

pente raide. Une rupture de pente est ensuite observée ; elle définit la zone du réacteur où les réactions de gazéification s'établissent pour produire les molécules d'intérêt dans le syngaz : CO et H₂. Ces remarques sont en accord avec celles réalisées au §III.3.3.1 concernant les profils de température. Les profils à 500 et 1000 secondes ont des allures différentes des autres profils sur la partie basse du réacteur ($z > 0,4$ m). La diminution de la concentration du CO₂, correspond au déclenchement des réactions de gazéification qui consomment du CO₂ ($R_{g1} : C + CO_2 \xrightarrow{k_{g1}} 2CO$). La tendance contraire et complémentaire peut être observée sur le profil du CO (Figure III-15). Suivant ce même raisonnement, nous observons que la concentration du CO₂ diminue dans la partie basse du réacteur entre les profils à 2500 et 3000 secondes.

Pour des valeurs $z < 0,1$ m, les profils à 500 et 1000 secondes montrent une teneur en CO₂ entre 6% et 8%. En effet, en plus du séchage prématuré de la biomasse, la pyrolyse a été aussi déclenchée. La présence de vapeur d'eau à ce moment a pu avoir pour conséquence la production de CO₂ par la réaction R_{wgs} . Sur la Figure III-16, nous observons aussi la production d'H₂ à cette hauteur du réacteur.

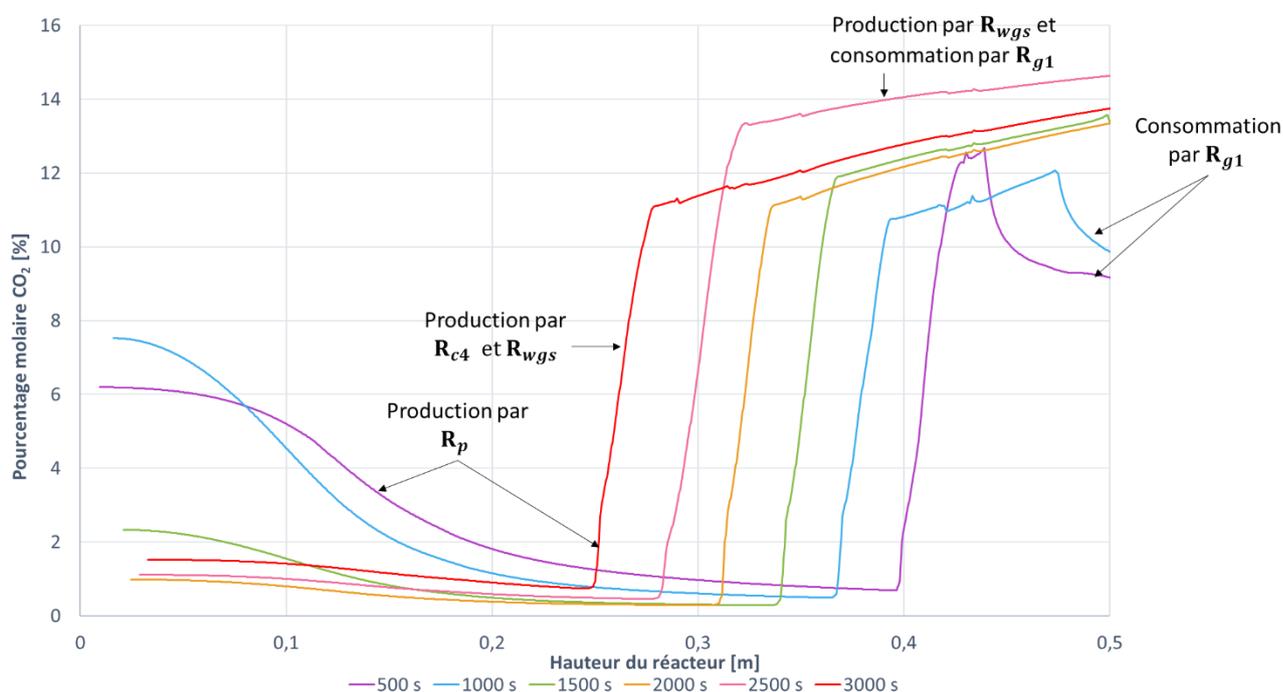


Figure III-14. Profil axial dynamique du pourcentage molaire du CO₂

En analysant les profils de CO sur la Figure III-15, nous observons un comportement similaire au CO₂. Les profils sont caractérisés par une production (pyrolyse et R_{c1}) et une consommation (R_{c4} et R_{wgs}) rapides. Les profils à 500 et 1000 secondes montrent une augmentation de la teneur du CO dans la partie basse du réacteur, expliquée par la présence de char chaud et à

l'absence d'agent oxydant, permettant le déroulement des réactions de gazéification (R_{g1} et $R_{g3} : C + H_2O \xrightarrow{k_{g3}} CO + H_2$). Pour le reste des profils (1500 à 3000 secondes), après la production de CO par pyrolyse et oxydation, les profils se stabilisent sur la longueur du réacteur, avec une teneur en CO qui tend à augmenter lorsque la simulation avance car les réactions de gazéification deviennent dominantes dans la partie basse du réacteur.

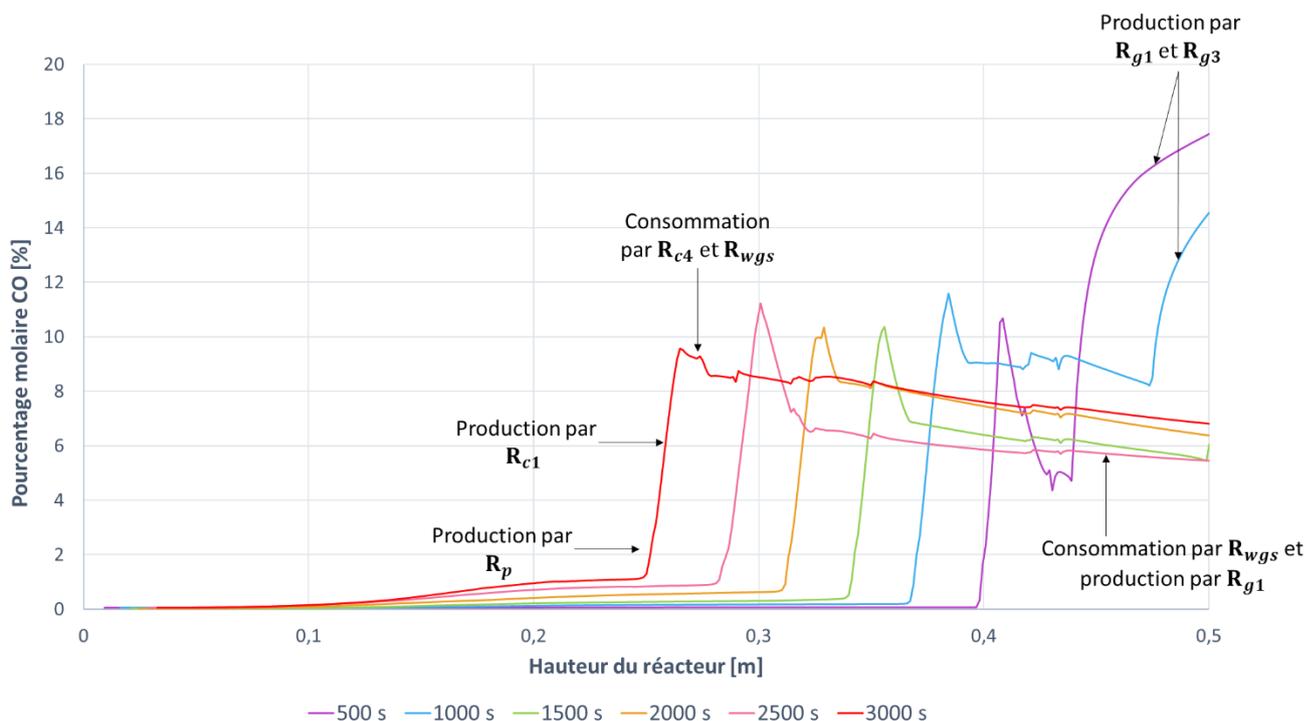


Figure III-15. Profil axial dynamique du pourcentage molaire du CO

L'interprétation des profils d' H_2 est assez complexe car ce dernier intervient en tant que produit ou réactif de nombreuses réactions. La Figure III-16 montre la dynamique du pourcentage molaire d'hydrogène. Nous pouvons constater sa production par pyrolyse et sa consommation immédiate par l'oxygène ($R_{c5} : 2 H_2 + O_2 \xrightarrow{k_{c5}} 2 H_2O$), d'où la présence d'un premier (petit) pic. En effet, la réaction de combustion de l'hydrogène est très rapide ; dans certains modèles, elle est considérée comme instantanée [105]. Ensuite, on assiste à une faible production d'hydrogène, résultant de l'oxydation et la gazéification des goudrons ($R_{c2} : C_6H_{6,2}O_{0,2} + 2,9 O_2 \xrightarrow{k_{c2}} 6 CO + 3,1 H_2$, $R_{g5} : C_6H_{6,2}O_{0,2} + 5,8 H_2O \xrightarrow{k_{g5}} 6 CO + 8,9 H_2$). La réaction R_{c5} consomme l'hydrogène produit par ces réactions, donnant lieu au deuxième pic observé. Dans les profils à 500 et 1000 secondes, nous observons l'augmentation de la teneur en hydrogène dans la partie basse du réacteur. Comme expliqué précédemment, dans cette zone,

les réactions de gazéification sont responsables de la production d'hydrogène, en particulier R_{g3} .

La concentration d' H_2 dans la partie basse du réacteur, entre 1500 secondes et 3000 secondes, tend à augmenter dans la zone de gazéification, jusqu'à la teneur maximale en H_2 correspondant au dernier profil (3000 s).

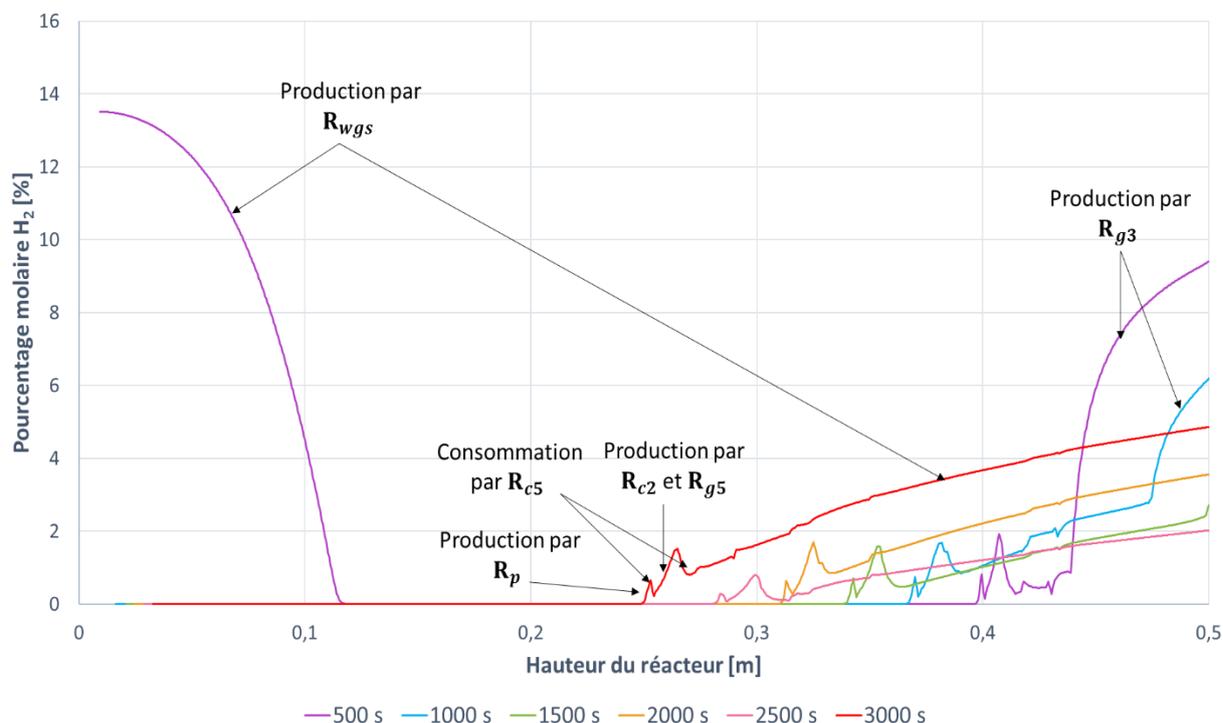


Figure III-16. Profil axial dynamique du pourcentage molaire d' H_2

Il est possible également d'analyser les profils des hydrocarbures : les goudrons (tar) et le méthane.

La Figure III-17 permet d'analyser le profil du méthane. Le méthane produit par pyrolyse (R_p) est oxydé partiellement par l'oxygène disponible, n'étant pas une réaction prioritaire dans le schéma réactionnel implémenté ($R_{c3} : CH_4 + 1,5 O_2 \xrightarrow{k_{c3}} 2 H_2O + CO$). Sur les profils à 500 et 1000 secondes, nous pouvons observer la diminution de la concentration du méthane dans la partie basse du réacteur, liée à la réaction suivante : $R_{g4} : CH_4 + H_2O \xrightarrow{k_{g4}} 3 H_2 + CO$. Il faut noter que les pourcentages molaires maximums de CH_4 sont environ 100 fois plus petits que ceux du CO ou du CO_2 .

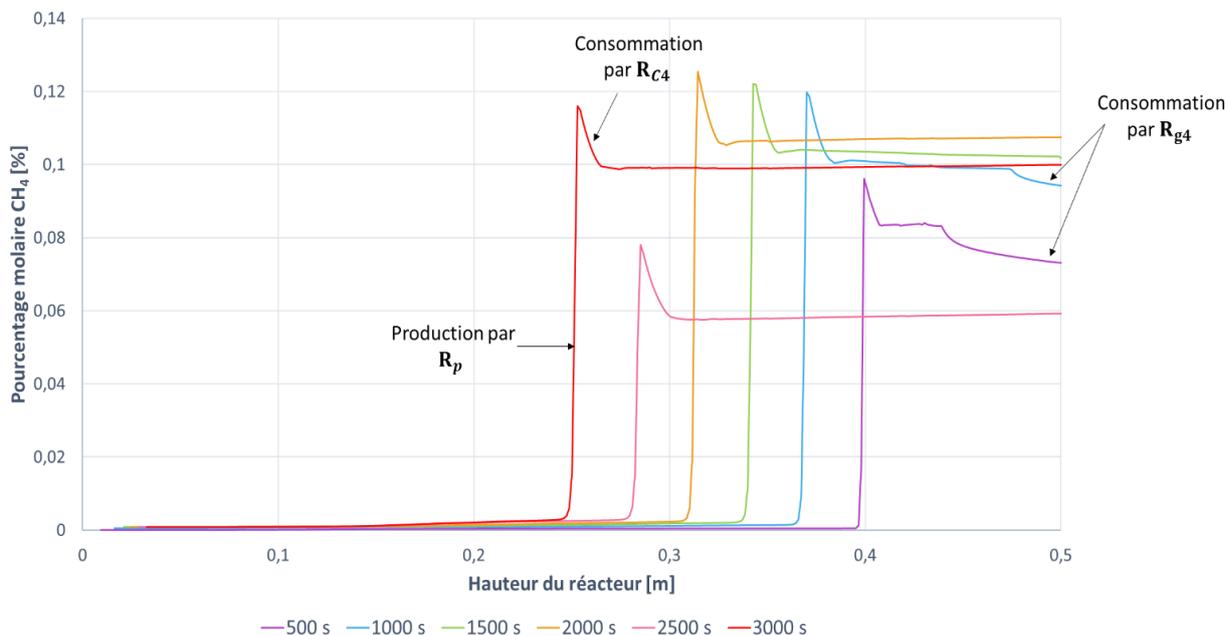


Figure III-17. Profil axial dynamique du pourcentage molaire du CH_4

La dynamique de la concentration en goudrons peut être observée sur la Figure III-18.

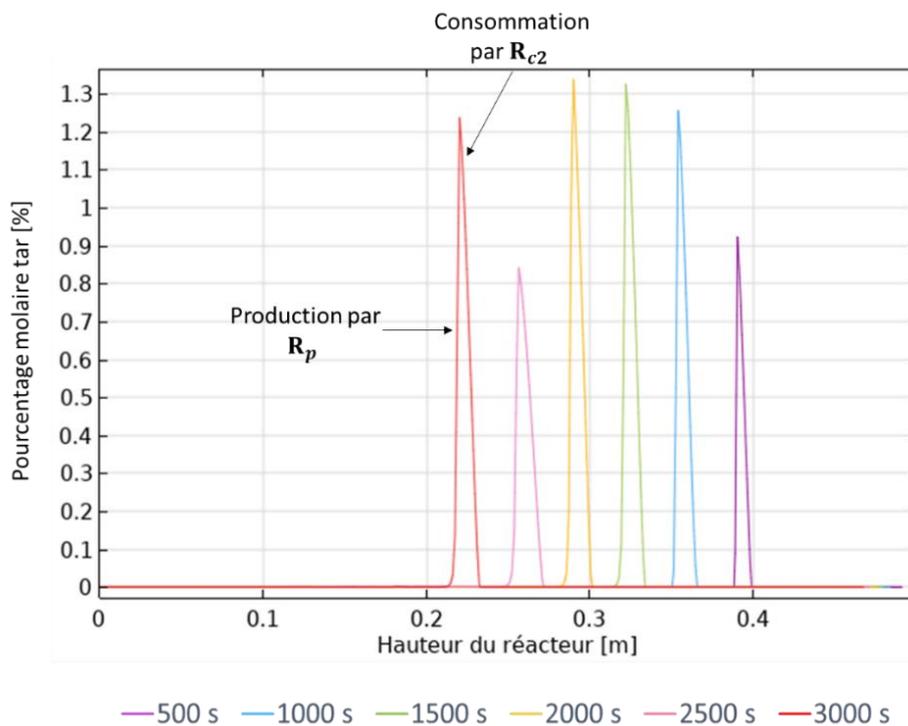


Figure III-18. Profil axial dynamique du pourcentage molaire des goudrons (tar)

Après avoir été produits par pyrolyse, les goudrons sont oxydés et gazéifiés entièrement, suivant les réactions suivantes : $R_{c2} : C_6H_{6,2}O_{0,2} + 2,9 O_2 \xrightarrow{k_{c2}} 6 CO + 3,1 H_2$ et $R_{g5} : C_6H_{6,2}O_{0,2} +$

$5,8 \text{ H}_2\text{O} \xrightarrow{\text{kg5}} 6 \text{ CO} + 8,9 \text{ H}_2$, d'où les pics observés, qui se déplacent vers le haut du réacteur au cours du temps. Il faut noter que les pourcentages molaires maximums de goudrons sont environ 10 fois plus petits que ceux du CO ou du CO₂.

Sur la Figure III-19, nous pouvons observer le profil dynamique de la vapeur d'eau. En plus de la production de vapeur d'eau par séchage (dans la partie haute du réacteur en particulier), elle est également produite par pyrolyse (augmentation brusque observée pour des cotes $z > 0,2 \text{ m}$). La stabilisation des profils dans le bas du réacteur lorsque le front se déplace vers le haut du réacteur est cohérente avec les autres profils de concentrations des espèces gazeuses.

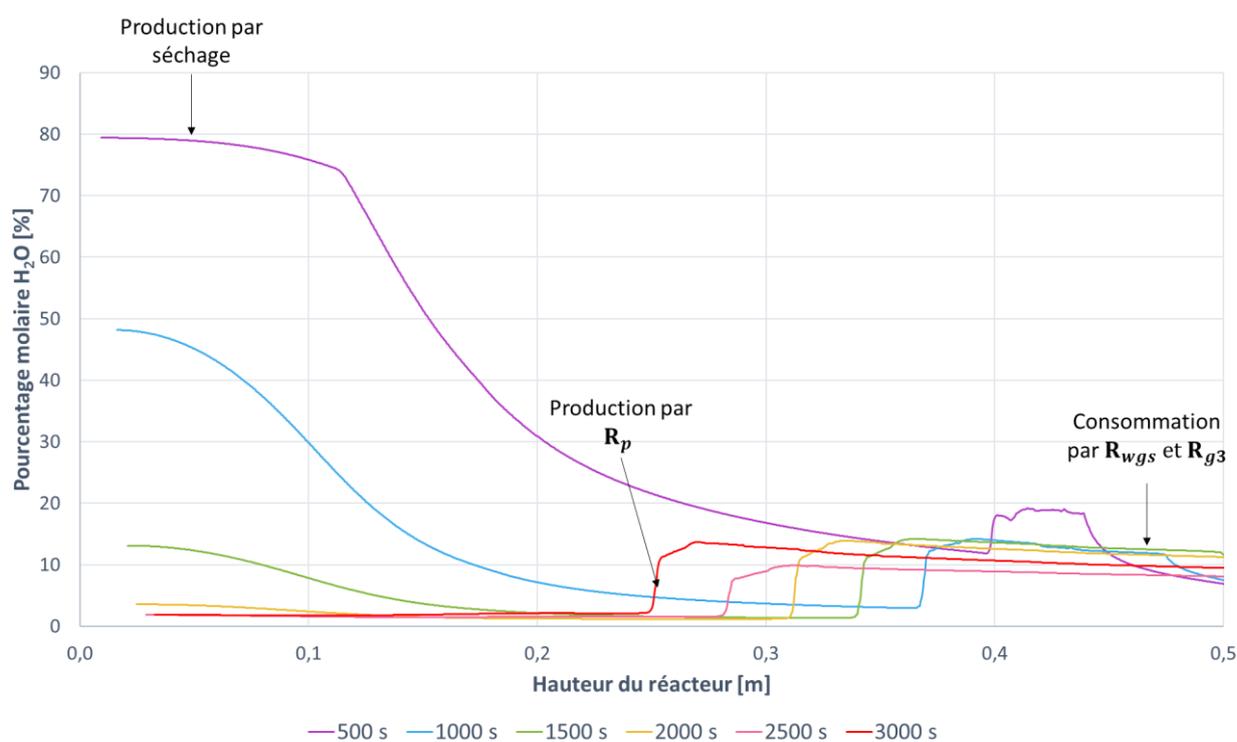


Figure III-19. Profil axial dynamique du pourcentage molaire d'H₂O

III.3.3.4. Vitesse du gaz et perte de charge

Les profils de vitesse du gaz (Figure III-20) montrent de fortes oscillations. Elles peuvent avoir 3 possibles explications :

- La température : les pics correspondant aux vitesses maximales coïncident avec les températures maximales du front (Figure III-9).

- Production et consommation des espèces : les oscillations correspondent à l'emplacement du front réactif, où les diverses réactions créent et consomment de la matière, modifiant la masse volumique du gaz.
- Il est également possible que la limite du modèle d'écoulement ait été atteinte. En effet, le phénomène de turbulence n'est pas pris en compte dans le modèle tandis que certains auteurs [51,93,96], modélisant la combustion avec des conditions opératoires similaires, incluent des modèles turbulents de type $k-\varepsilon$.

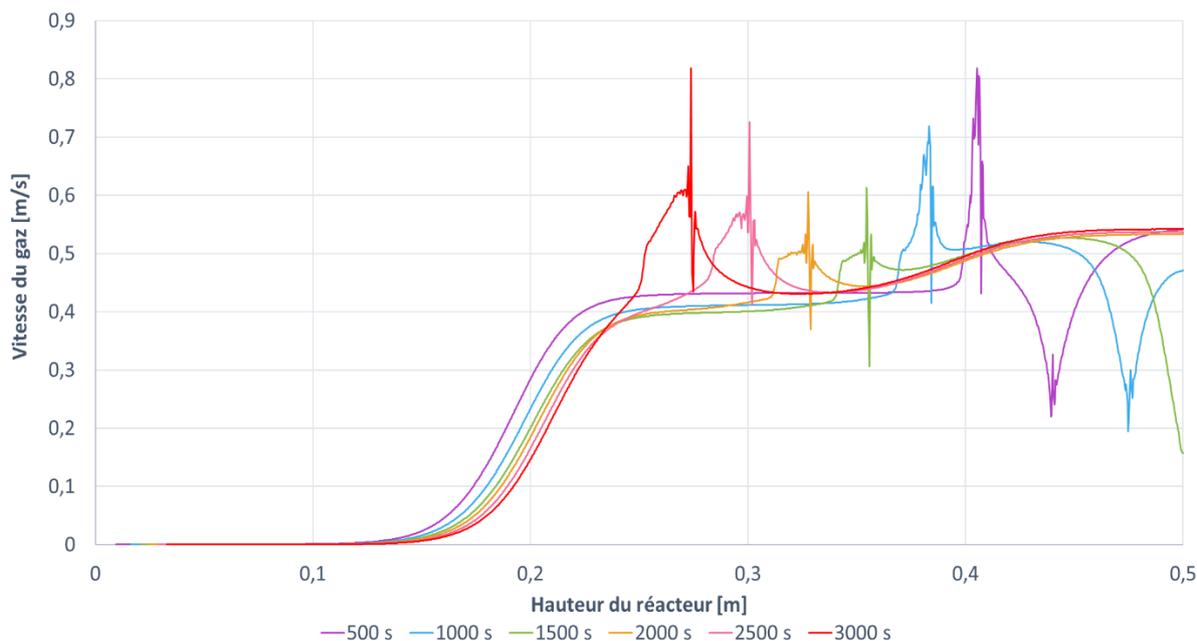


Figure III-20. Profil axial dynamique de la vitesse du gaz

Sur la Figure III-21, nous pouvons observer le profil de pression dans le réacteur. La perte de charge augmente avec le temps. En effet, la diminution de la taille des particules a pour conséquence la diminution de la perméabilité du milieu poreux, limitant le passage du gaz.

Il est également possible d'identifier plusieurs changements de pente dans la partie basse du réacteur, correspondant à la granulométrie qui compose le milieu poreux (particules de taille différente selon l'avancement des réactions).

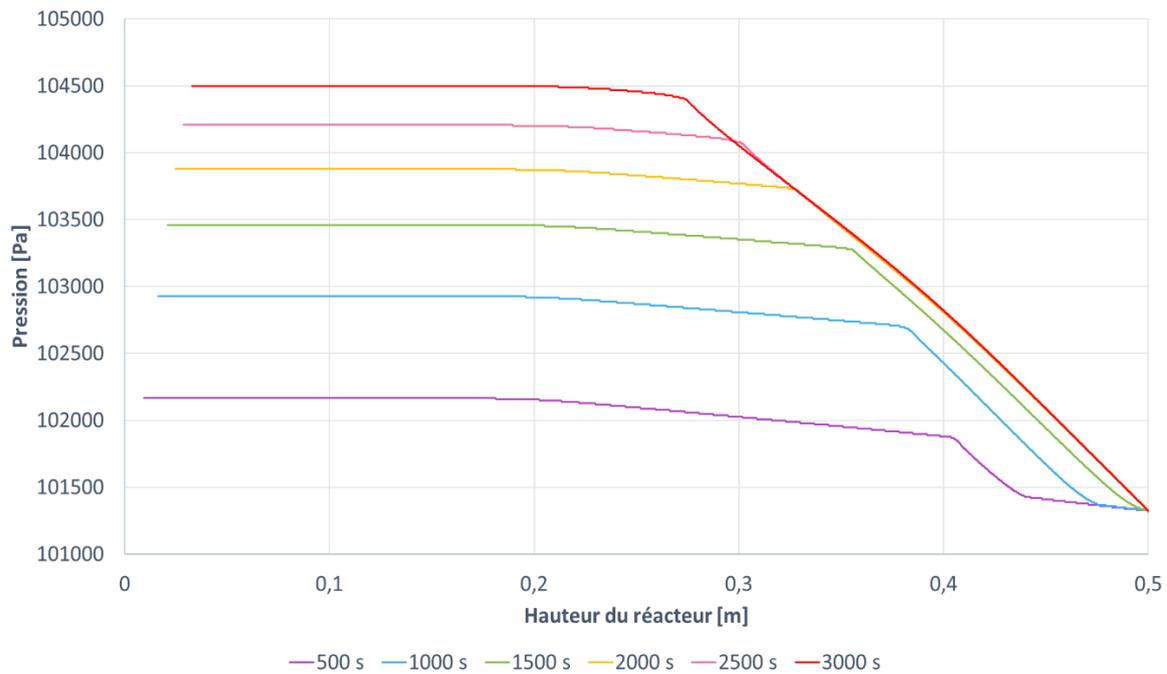


Figure III-21. Profil axial dynamique de la pression

III.3.4. Caractérisation des gradients radiaux

Le modèle permet également d'analyser la distribution radiale des phénomènes dans le gazéifieur. La Figure III-22 montre la distribution de la température du milieu poreux à 1000 et 2000 secondes. Il est possible d'observer que la distribution du front n'est pas homogène suivant l'axe r . De la même manière, le gradient radial de température évolue avec le temps. La distribution radiale de la température du gaz et du solide à plusieurs temps sont inclus dans l'Annexe 3.

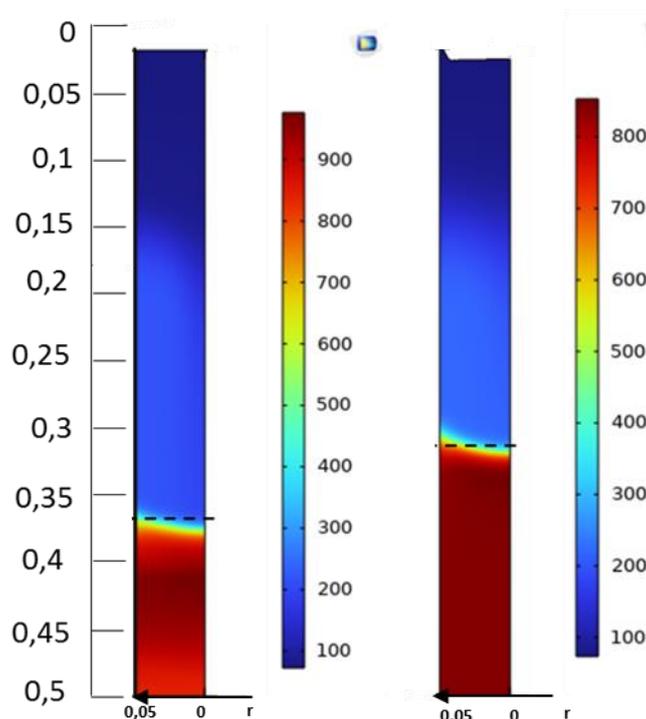


Figure III-22. Distribution radiale de la température à 1000 secondes (gauche) et 2000 secondes (droite)

L'évolution radiale des profils de température, de distribution de taille de particules et du pourcentage molaire d'oxygène suivant une coupe à une hauteur égale à 0,37 m (correspondant à l'emplacement du front à 1000 secondes comme indiqué avec des pointillés sur la Figure III-22) est reportée sur la Figure III-23.

Nous pouvons observer que la température à la paroi ($r = 0,05 \text{ m}$) est égale à 750 °C tandis que la température au centre du réacteur ($r = 0 \text{ m}$) n'est que de 540 °C . Cette différence de température peut être attribuée à la distribution non homogène de l'agent oxydant. En effet, nous pouvons également constater l'existence d'un gradient d'oxygène, avec une fraction molaire moins élevée à la paroi (8% à la paroi et 14% au centre). Un gradient du diamètre des particules suivant la même tendance que le pourcentage d'oxygène peut également être observé. Nous pouvons en déduire que les réactions de combustion se font d'abord au plus proche de la paroi (i.e. de l'arrivée de l'agent oxydant), consommant l'oxygène et les particules de char.

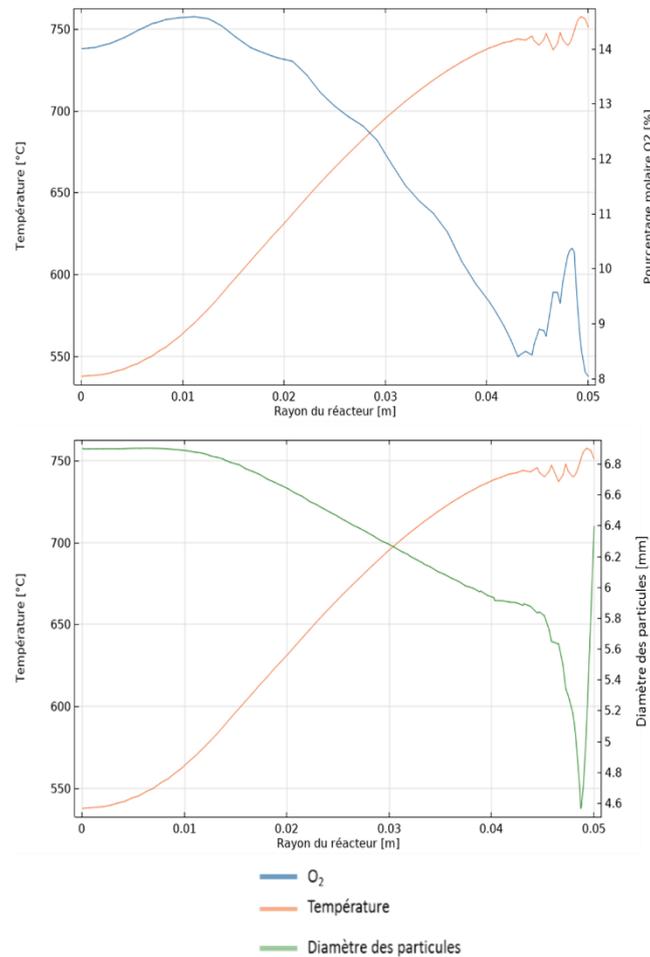


Figure III-23. Distribution radiale de la température, de la taille des particules et du pourcentage molaire d'oxygène (1000 secondes)

Les mêmes profils ont été tracés pour un temps de simulation de 2000 secondes (coupe à une hauteur de 0,31 m indiquée en pointillés sur la Figure III-22). La Figure III-24 montre que le gradient de température est plus important que pour le front à 1000 secondes (environ 350 K). Également, le gradient du pourcentage d'oxygène s'étend aussi sur une gamme plus grande (10,5 à 19 %).

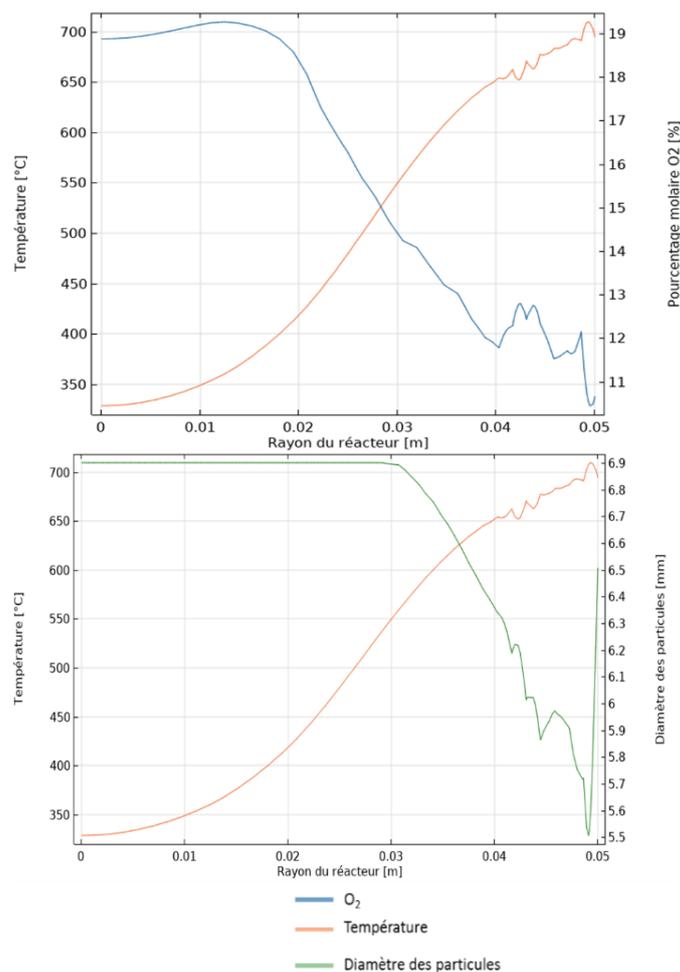


Figure III-24. Distribution radiale de la température, de la taille des particules et du pourcentage molaire d'oxygène (2000 secondes)

III.4. Conclusion

La validation des transitoires de la gazéification a été réalisée en comparant les profils dynamiques de températures expérimentales obtenus par Barrio [36] et ceux obtenus grâce au modèle. La comparaison de ces profils permet d'observer un écart d'approximativement 200 K entre les températures expérimentales et simulées, les températures maximales simulées étant supérieures à celles expérimentales. Cet écart reste néanmoins du même ordre de grandeur que ceux constatés dans des études similaires [51], [96]. Les vitesses de l'avancement du front (en plusieurs points) expérimentales et simulées ont aussi été comparées. L'écart relatif entre la vitesse du front de réaction expérimental et celle du front simulé lors de l'étape d'ignition est de -31 %. Cet écart peut être dû à la puissance de la source de chaleur, inconnue dans l'expérience et imposée par tâtonnement dans la simulation. Lorsque le front de réaction avance

dans le combustible frais, l'écart relatif est de 19%. Cet écart peut être en partie expliqué par les cinétiques de réactions utilisées et les températures plus élevées atteintes dans la simulation qui provoquent une combustion plus rapide du char produit par pyrolyse. Finalement, en calculant la vitesse du front depuis l'ignition jusqu'à son arrivée dans la biomasse fraîche, l'écart relatif s'élève à 3%.

Pour comparer plus facilement les profils dynamiques de température lors de l'avancée du front dans le réacteur, les courbes expérimentales et modélisées ont été adimensionnalisées par rapport au temps et à la température. Cette comparaison a permis de conclure que le modèle est capable de reproduire de manière fiable les transitoires de la gazéification : les phénomènes réactionnels fortement couplés à l'écoulement de la phase gaz et aux phénomènes de transferts thermiques dans le milieu poreux sont simulés de manière satisfaisante. Les pentes des courbes ont des allures très similaires et il est possible d'identifier les phénomènes réactifs. Même les oscillations de température observées dans l'expérience résultant de la compétition entre les réactions sont reproduites dans les profils simulés. Les écarts constatés entre les données expérimentales et simulées peuvent être expliqués de manière cohérente par les différences entre les conditions opératoires, en particulier par la présence de combustible dès l'ignition, par l'absence de réalimentation en combustible frais lorsque le front s'éteint.

En outre, comme le modèle a été développé en 2 dimensions, il permet d'étudier la distribution radiale des phénomènes de gazéification dans le réacteur : gradients de température, de conversion des particules, de concentration des espèces gazeuses et distribution de l'agent oxydant. Ainsi, ce modèle permet d'observer et de comprendre des phénomènes difficiles à mesurer expérimentalement. Ce modèle pourrait être utilisé comme outil de dimensionnement du réacteur. Par exemple, le diamètre du réacteur, qui limite sa puissance, pourrait être étudié ainsi que des conditions opératoires liées à l'agent oxydant comme sa composition, son débit ou l'emplacement de l'injection. D'autre part, la composition du combustible, la sphéricité et le diamètre des particules sont des paramètres d'entrée du modèle, qui permettent l'étude de différents intrants hétérogènes afin de valider la faisabilité de leur conversion dans un réacteur à lit fixe co-courant.

Chapitre IV. Etude de l'influence du diamètre de particule sur la dynamique de la gazéification

Dans ce chapitre, le modèle développé dans le Chapitre III est utilisé afin d'étudier l'influence du diamètre des particules de biomasse sur la dynamique de la gazéification. Pour rappel, dans le Chapitre III, le diamètre des particules était de 6,9 mm. Deux tailles de particules ont été étudiées, à savoir 10 mm et 15 mm.

Pour ces simulations, les conditions initiales restent inchangées (Tableau III-5), à l'exception du diamètre initial des particules d_{p0} . De la même manière, l'étape d'ignition est réalisée dans les mêmes conditions que dans la simulation précédente : la source de chaleur est appliquée à l'interface biomasse/char, sa puissance et durée (arrêt à 1300 secondes) sont les mêmes que celles utilisées lors de la simulation de validation. De même, le diamètre minimal des particules (déclenchant l'arrêt des réactions) a été fixé à 1,7 mm.

La Figure IV-1 montre les profils de température des phases solide et gazeuse à 1000, 2000 et 3000 secondes.

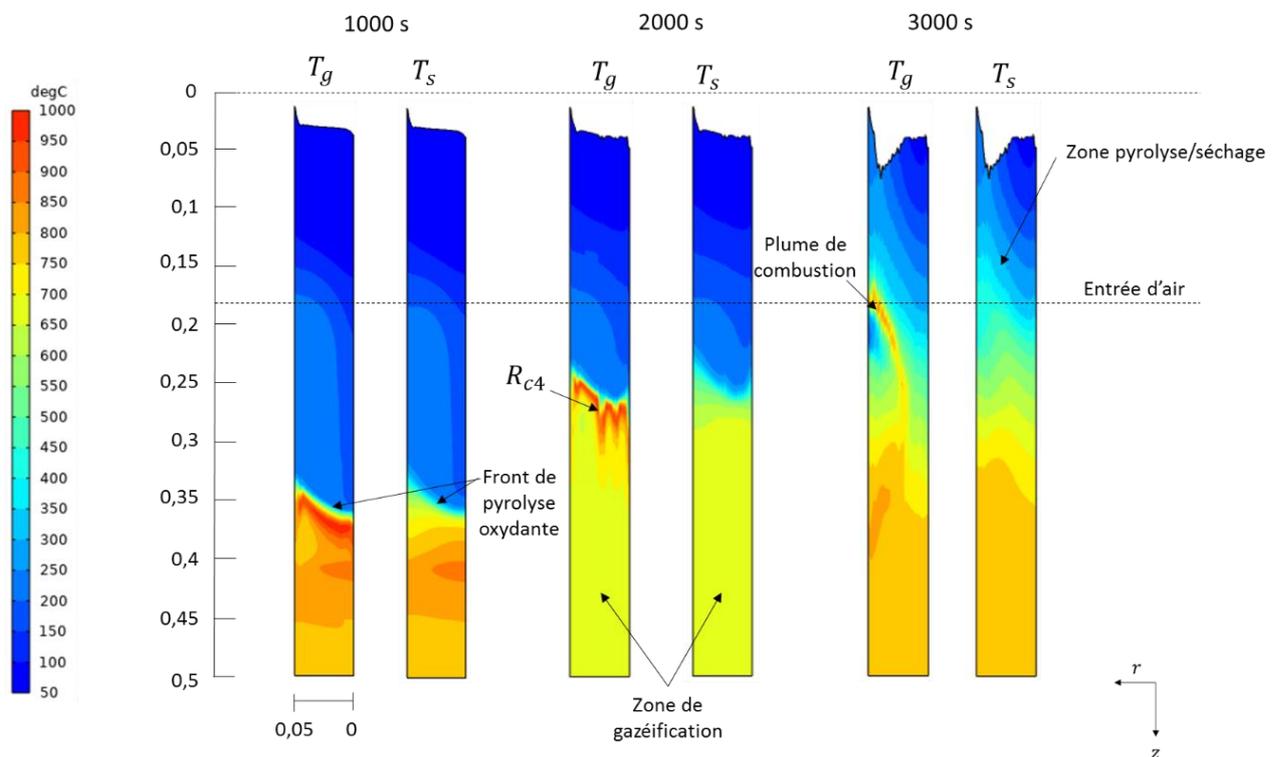


Figure IV-1. Évolution de la température solide et gaz pour un diamètre initial de 10 mm

Lors de l'étape d'ignition (1000 secondes), au niveau du front de réaction (correspondant au fort gradient de températures), il est possible d'observer que la température la plus élevée est atteinte dans la phase gaz (de l'ordre de 950-990 °C). Nous pouvons aussi constater un écart significatif de température entre les deux phases. Le gradient radial de la température de la phase gazeuse au niveau du front est de 600 K, tandis que celui dans la phase solide est de 300 K. L'écart de température entre les 2 phases peut être expliqué par un faible échange thermique convectif entre les phases solide et gazeuse, directement lié à la taille des particules (Eqs. (III-55) et (III-56)). En effet, lorsque le diamètre de la particule augmente, le coefficient de chaleur h_{sg} diminue.

A 2000 secondes, entre les côtes $z = 0,3$ m et $z = 0,5$ m, une zone de température homogène s'est établie pour les deux phases. La température est proche de 700 °C, dans une plage de température représentative des réactions de gazéification.

La Figure IV-2 illustre les pourcentages molaires d' H_2O , de CO , de CO_2 et d' H_2 à 2000 s. Sur cette figure, dans la moitié basse du réacteur, assez près de la paroi du réacteur, il est possible d'observer la production de CO et d' H_2 alors que H_2O est consommé à partir de la réaction $R_{g3} : C + H_2O \xrightarrow{k_{g3}} CO + H_2$. Vers le centre (suivant l'axe radial) du réacteur, nous observons la consommation du CO et du H_2 pour former du CO_2 et du H_2O , principalement selon les réactions $R_{c4} : 2CO + O_2 \xrightarrow{k_{c4}} 2CO_2$ et $R_{c5} : 2H_2 + O_2 \xrightarrow{k_{c5}} 2H_2O$.

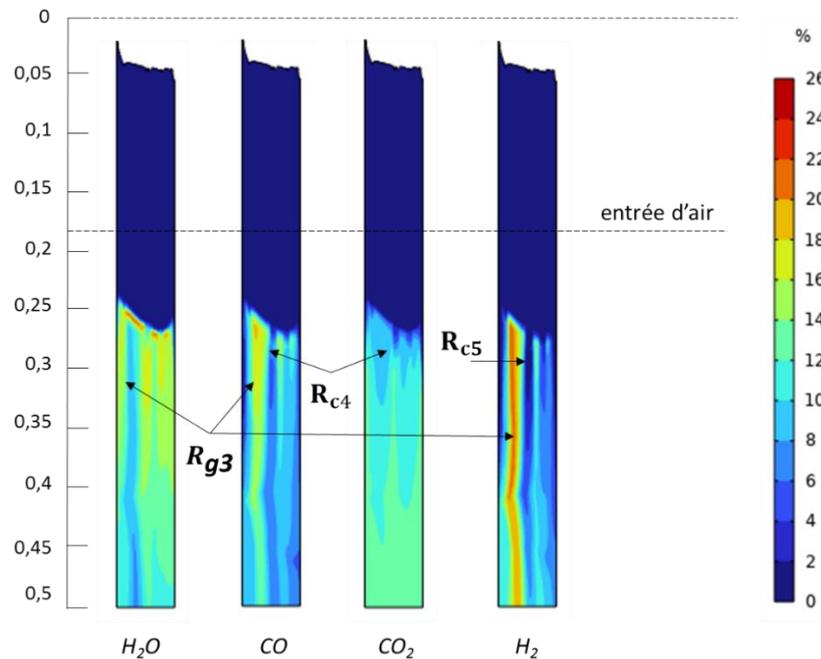


Figure IV-2. Pourcentages molaires des espèces gazeuses à 2000 secondes pour un diamètre initial de 10 mm

D'autre part, au niveau du front réactif (Figure IV-1, T_g), une zone de combustion s'étend de manière hétérogène sur une dizaine de centimètres sur l'axe z , caractérisée par des températures comprises entre 850 et 950 °C. L'allure du profil de température T_g dans cette zone correspond à celle du pourcentage molaire du CO_2 . En effet la réaction de combustion du CO (\mathbf{R}_{c4} : $2\text{CO} + \text{O}_2 \xrightarrow{k_{c4}} 2\text{CO}_2$) est prédominante dans cette zone.

Finalement, à 3000 secondes (Figure IV-1), le front de réaction a dépassé l'entrée d'air, située à $z = 0,190$ m. Au-dessus de l'entrée d'air, une zone de pyrolyse/séchage s'établit à des températures comprises entre 50 et 450 °C. Au-dessous de l'entrée d'air, la température dans les 2 phases augmente avec z , et plusieurs gradients de température allant de 550 °C à 950 °C peuvent être observés. Sur le profil de la température gazeuse, nous observons la formation d'un canal de combustion, commençant à l'entrée d'air et s'étalant sur 0,90 m vers le bas du réacteur.

La Figure IV-3, montre les pourcentages molaires du CO , de l' O_2 , et du CO_2 à 3000 secondes. Ces molécules sont les principaux réactifs et produits des réactions de combustion.

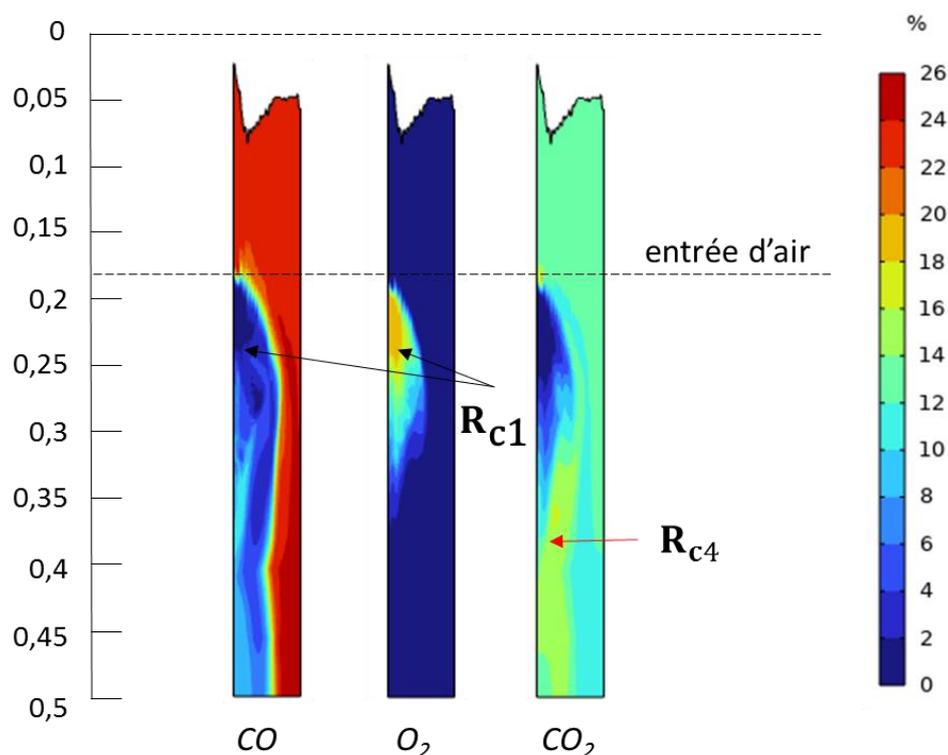


Figure IV-3. Pourcentages molaires des espèces gazeuses à 3000 secondes pour un diamètre initial de 10 mm

L'oxygène est consommé rapidement lorsqu'il est introduit dans le réacteur. En effet, il réagit avec le char chaud selon la réaction $R_{c1} : C + 0,5O_2 \xrightarrow{k_{c1}} CO$ puisque les produits volatils ont été précédemment consommés. Le profil du CO est complémentaire de celui de l'oxygène. Le CO est ensuite converti en CO_2 par la réaction $R_{c4} : 2CO + O_2 \xrightarrow{k_{c4}} 2CO_2$, ces deux réactions donnant lieu au canal de combustion observé sur la Figure IV-1 et évoqué précédemment.

Les profils de concentration des espèces solides et du diamètre des particules sont présentés sur la Figure IV-4.

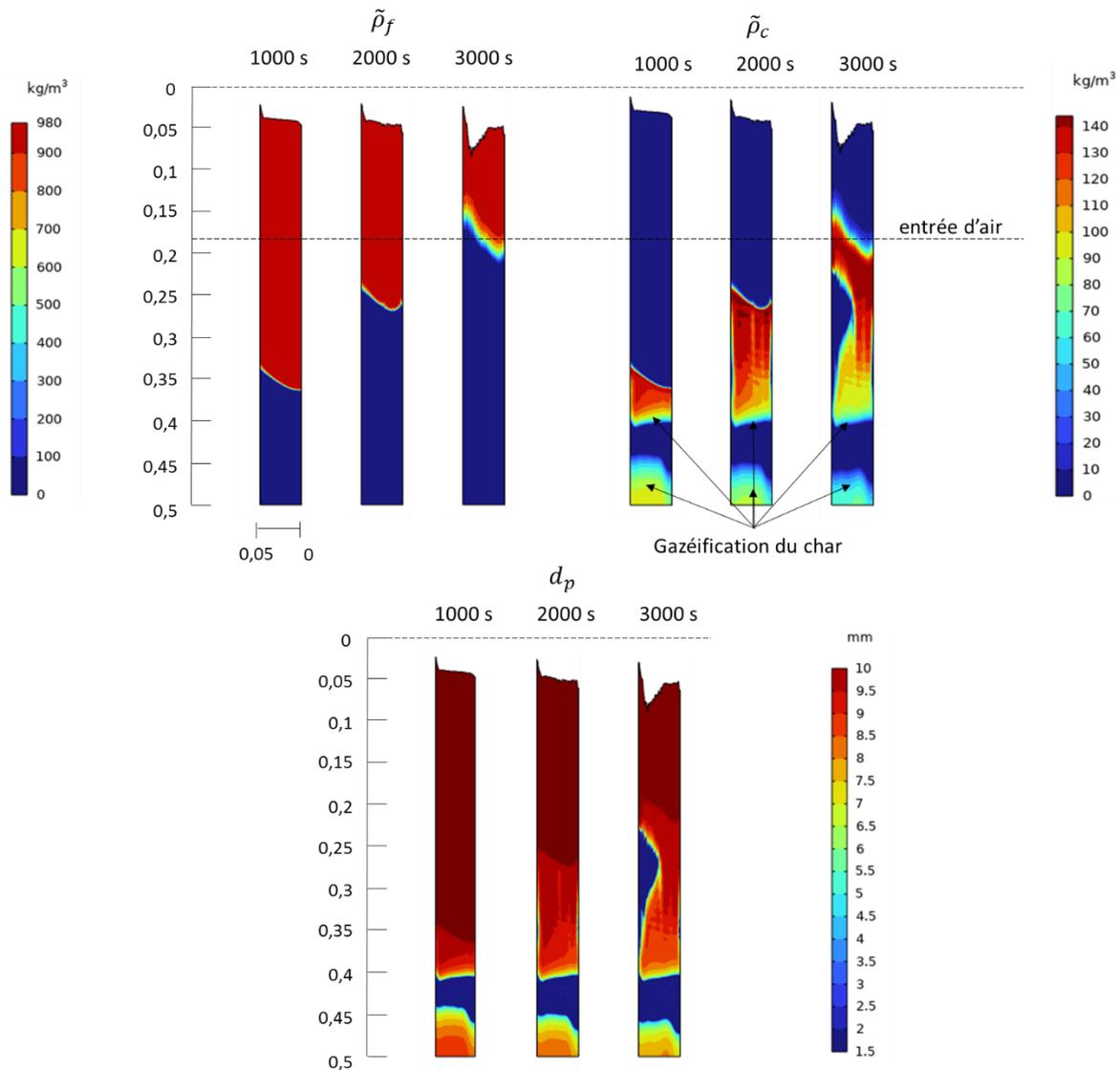


Figure IV-4. Concentration massique des espèces solides et diamètre des particules pour un diamètre initial de 10 mm

Le profil de la biomasse permet de repérer la position au cours du temps du front de oxydation/pyrolyse, au cours de laquelle la biomasse (de concentration initiale $\tilde{\rho}_{f0} = 978,7$ kg/m³ de solide) est convertie en char ($\tilde{\rho}_{c0} = 141,2$ kg/m³).

Dans les trois profils tracés pour la concentration en char, nous constatons des gradients importants sur la hauteur du réacteur. Tout d'abord, le char initialement introduit dans le réacteur pour assurer l'ignition ($z > 0,4$ m), a été complètement consommé près de la source de chaleur, alors que la conversion est incomplète dans la partie basse du réacteur ($0,45 < z < 0,5$ m). De même, nous observons un gradient de concentration dans le char produit par pyrolyse lors de l'avancée du front ($z < 0,4$ m). Sous le front de pyrolyse oxydante, le char est partiellement converti, d'abord par la réaction de combustion ($R_{c1} : C + 0,5O_2 \xrightarrow{k_{c1}} CO$). Le char est ensuite converti par les réactions de gazéification, plus lentes ($z > 0,4$ m). Lorsque le front de pyrolyse avance vers le haut du réacteur, la zone de char non consommé s'étend sur une hauteur plus grande. Finalement, à 3000 secondes, le front de pyrolyse a dépassé l'entrée d'air. L'air oxydant rencontre du char chaud lors de son introduction dans le réacteur. Les particules de char sont complètement consommées. Cette consommation a pour conséquence la diminution du niveau du lit, et ce de manière non homogène suivant l'axe radial.

Nous pouvons également constater que le front de pyrolyse (au-dessus de l'entrée d'air) à 3000 s s'étale sur quelques centimètres, *a contrario* des profils à 1000 et 2000 secondes. En effet, étant donné que le front a dépassé l'entrée de l'agent oxydant, les réactions de combustion n'ont pas lieu dans la partie haute du réacteur ($z < 190$ mm) ; l'échange de chaleur se fait donc principalement par conduction, ralentissant la propagation du front de pyrolyse.

Les profils du diamètre des particules permettent d'observer aussi la consommation hétérogène du char lors de l'avancée du front. D'après la simulation, les particules sont partiellement consommées sous le front de pyrolyse oxydante (diamètre minimal de 8,5 mm). Dans la zone de gazéification précédemment identifiée, le diamètre des particules atteint maximum 5 mm, la consommation par gazéification est plus importante dans le centre du réacteur ($z = 0$). En effet, les réactions de combustion homogènes consomment davantage les réactifs gazeux des réactions de gazéification au niveau de la paroi, limitant leur déroulement sur cette zone.

La Figure IV-5 monte l'évolution de la température des phases solide et gazeuse, du diamètre des particules et des concentrations massiques en phase solide des espèces solides à 1500

secondes, pour un diamètre initial de 15 mm. Ce temps de simulation correspond à l'arrivée du front de réaction près de l'entrée d'air, permettant l'analyse des différentes zones réactives dans le réacteur. L'augmentation de la taille initiale des particules accentue le caractère hétérogène de la conversion des particules. Comme pour la simulation avec un diamètre initial de particules de 10 mm, la combustion en phase homogène est prédominante (température du gaz plus élevée que celle du solide). L'écart de température entre les deux phases au niveau du front de réaction est plus élevé que pour la simulation à 10 mm (100 K à 1500 secondes) ; ici, l'écart s'élève à 500 K (au point le plus chaud, situé près de la paroi), montrant que l'inertie thermique est plus grande dans cette simulation. La consommation des particules est également ralentie par rapport aux simulations précédentes : les particules les plus petites se trouvent près de la source de chaleur et la taille minimale est de 7 mm.

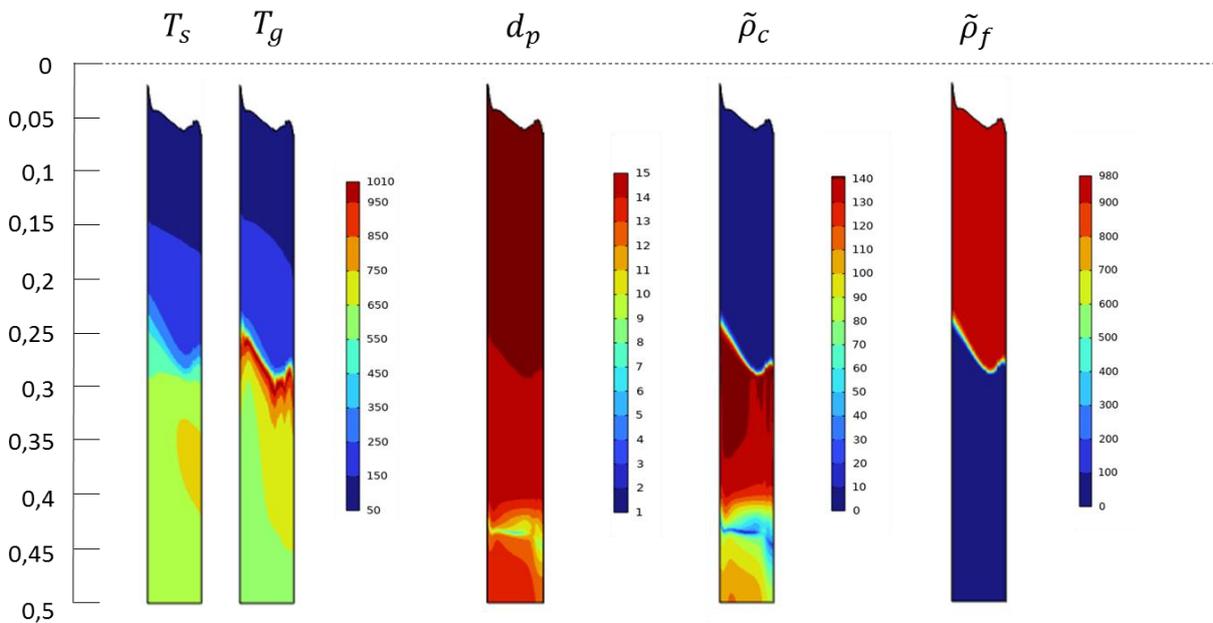


Figure IV-5. Température des phases solide et gazeuse, concentrations massiques des espèces solides et diamètre des particules pour un diamètre initial de 15 mm (1500 secondes)

IV.1. Analyse de l'influence du diamètre initial de la particule sur la dynamique de la gazéification

Dans cette partie, l'impact de la taille initiale de la particule sur l'avancement du front de réaction, la consommation de la taille des particules et les températures des phases solides et gazeuse sont étudiés.

IV.1.1. Profils de température des phases solide et gazeuse

Les profils axiaux (au centre du réacteur, en $r = 0$) dynamiques de la température du gaz et du solide sont présentés sur les Figure IV-6, Figure IV-7, Figure IV-8 pour des diamètres initiaux de particules respectivement de 6,9 mm, 10 mm et 15 mm.

Les profils de la température des phases solide et gazeuse lors de la gazéification avec des particules de diamètre initial de 6,9 mm ont la même allure (Figure IV-6). La montée en température de la phase gazeuse se fait légèrement en avance par rapport à la montée en température de la phase solide. Il est possible d'observer que la température du gaz est plus élevée que celle du solide lorsque la température maximale a été atteinte, ce phénomène est plus prononcé à 1500 secondes. En effet, à ce moment la source de chaleur, qui auparavant maintenait en température le milieu poreux, est arrêtée.

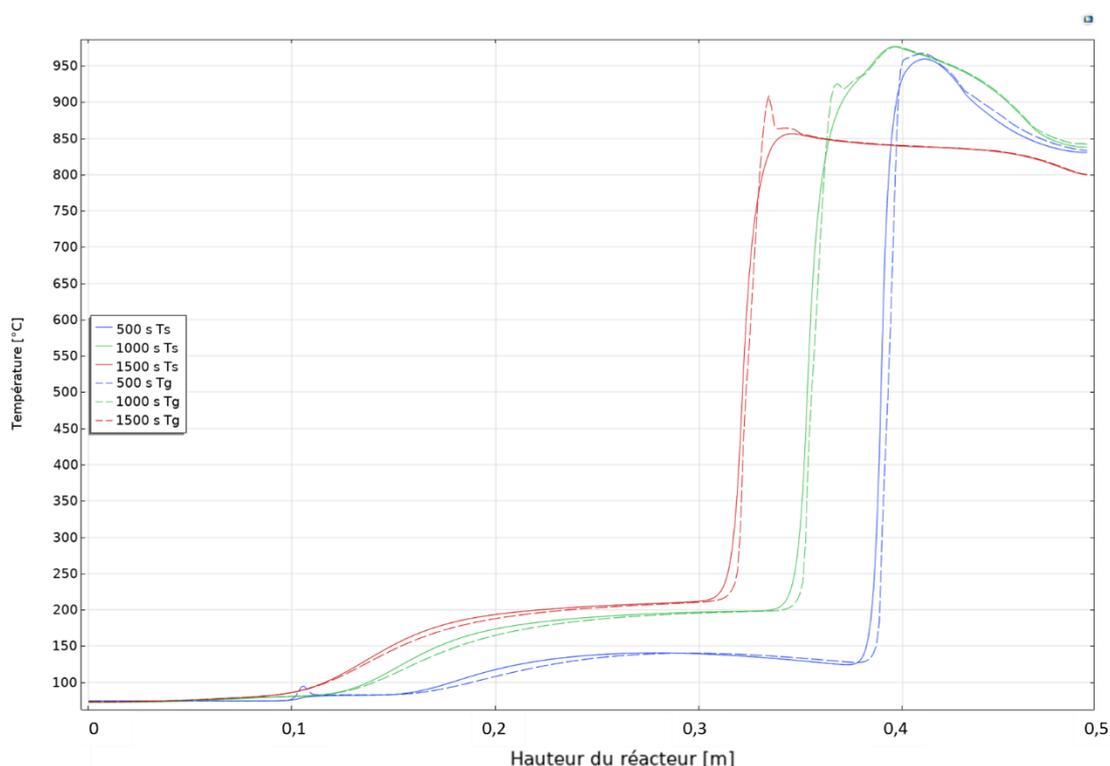


Figure IV-6. Profil axial dynamique de la température du gaz et du solide pour un diamètre initial de particules de 6,9 mm

Sur la Figure IV-7, nous observons que la température de la phase gazeuse est toujours plus élevée que celle du solide. La montée en température de la phase gazeuse est toujours en avance par rapport à celle de la phase solide, mais de manière plus marquée que dans la simulation avec un diamètre initial de 6,9 mm. Il est possible d'observer également que la pente des courbes de la température du gaz est un peu plus raide que celle des courbes de la température du solide.

A 1500 secondes, il y a une rupture de pente (température du gaz) qui pourrait être due à la compétition entre les réactions. Le pic de température de la phase gazeuse s'étend sur plusieurs centimètres. Comme le montraient les profils de concentrations du char (Figure IV-4), la zone de gazéification s'établit sous le front de réaction et elle s'étend lorsque le front se déplace vers le haut du réacteur. En partie basse du réacteur, après le pic, la température de la phase gaz diminue et se stabilise ; cela correspond à ce phénomène (réactions de gazéification endothermiques). Sur le profil à 1500 secondes (lorsque l'étape d'ignition est terminée), nous observons que la pente de la température du solide est un peu moins prononcée que celle de la température du gaz et au point maximal, le gradient est de 150 K. Cet écart peut être expliqué par l'inertie thermique entre les deux phases, liée à la taille des particules.

D'autre part en comparant les profils à 1500 secondes des simulations avec un diamètre initial de 6,9 mm et 10 mm, nous observons que les températures maximales sur le front de combustion et dans la zone de gazéification sont plus basses pour des particules de plus grand diamètre. Ces températures plus basses que celles atteintes lors de la simulation de validation ont limité la combustion du char.

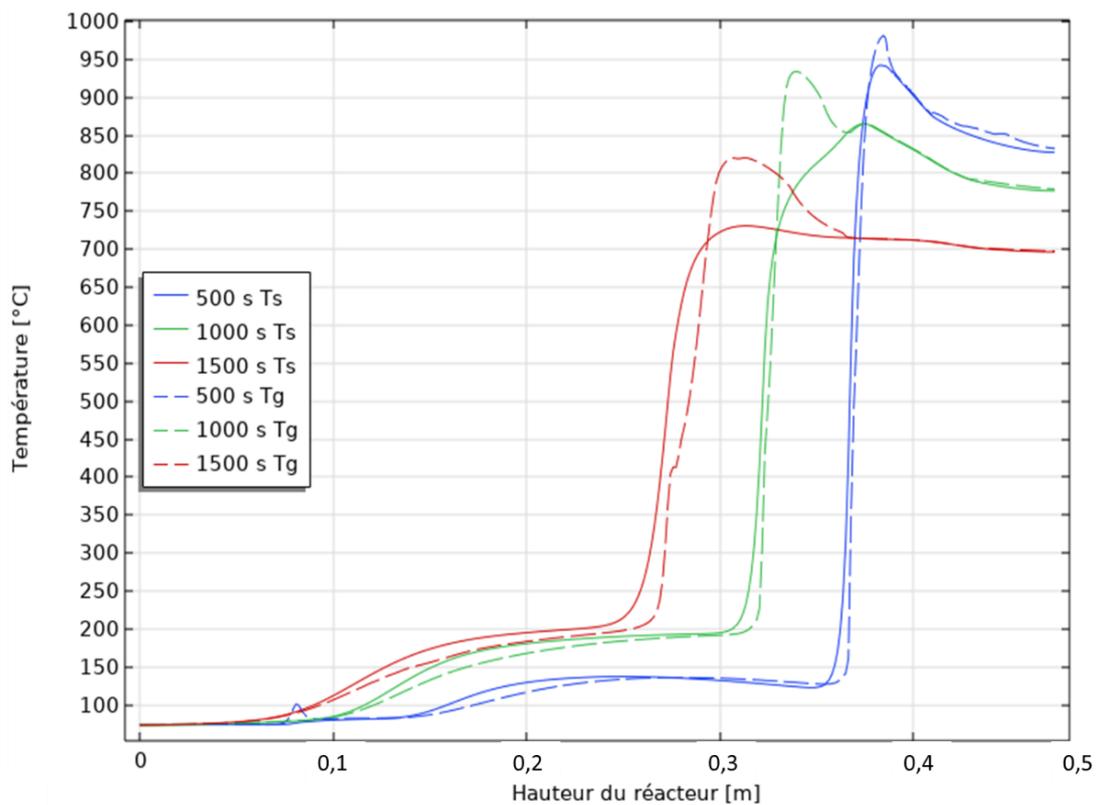


Figure IV-7. Profil axial dynamique de la température du gaz et du solide pour un diamètre initial de particules de 10 mm

La simulation avec une particule de diamètre initial de 15 mm (Figure IV-8) permet d'observer une accentuation des phénomènes cités précédemment : la montée de température est en avance et est plus prononcée pour la phase gazeuse par rapport à la phase solide avec de plus un gradient plus important des températures maximales entre les deux phases. Sur les profils à 1000 et 1500 secondes, il est possible d'observer une rupture de la pente du profil de la température du solide à environ 500-550°C. Cette rupture de pente peut être expliquée par le déroulement des réactions de gazéification et l'échange thermique entre les deux phases, qui ralentissent la montée en température de la phase solide jusqu'à la mise en place de l'équilibre thermique entre les deux phases.

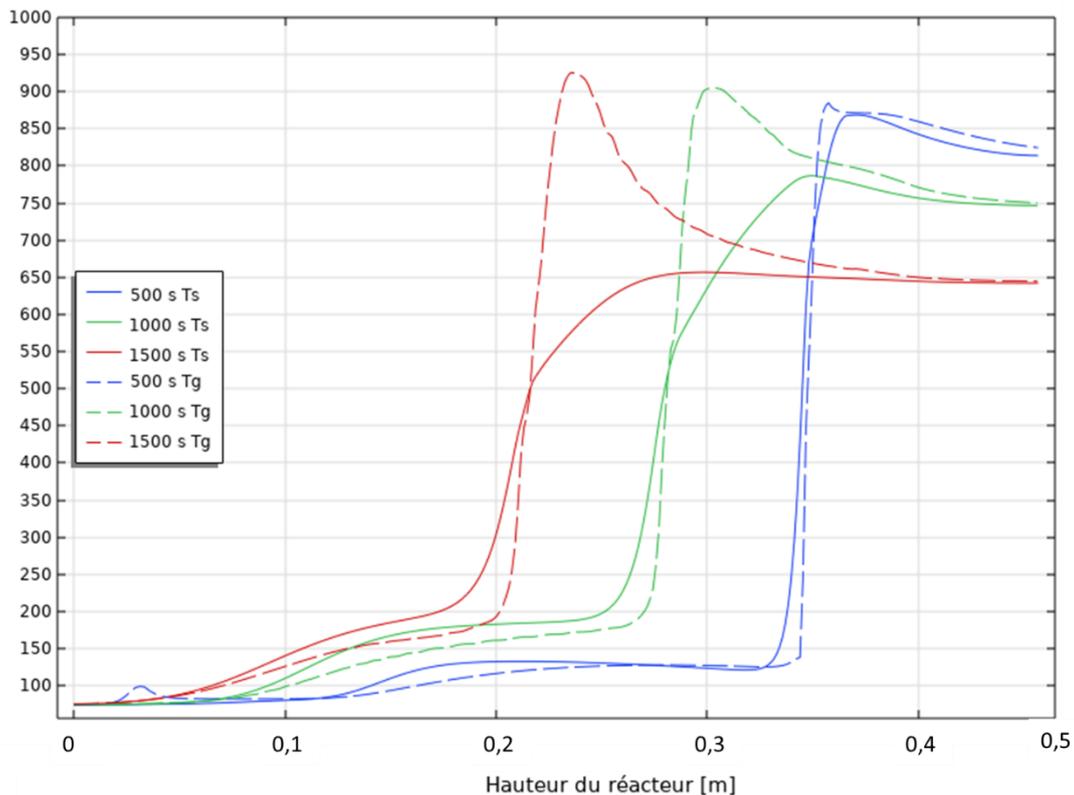


Figure IV-8. Profil axial dynamique de la température du gaz et du solide pour un diamètre initial de particules de 15 mm

Des tendances similaires ont été retrouvées par Tinaut *et al.* [67] qui ont étudié la gazéification de particules de diamètre 4, 9 et 15 mm dans un lit à contre-courant. Sur les profils obtenus par ces auteurs et reportés sur la Figure IV-9, nous observons que la température modélisée du gaz (Tg) est largement supérieure à celle modélisée du solide (Ts), et que le pic de température devient de plus en plus large lorsque la taille de la particule augmente. Pour la simulation faite

avec une particule ayant un diamètre de 4mm (profil identifié comme C2), la montée de la température solide est presque confondue avec celle de la phase gazeuse. Contrairement à la courbe de température avec une particule de 9 (profil identifié comme C11) et 15 mm (profil identifié comme C4), les courbes de la phase solide présentent plusieurs ruptures de pente avant la montée en température du gaz (déroulement du séchage, pyrolyse). La combustion des gaz volatils fait augmenter la température de la phase gazeuse et la montée en température plus limitée de la phase solide est expliquée par les auteurs par le début des réactions de gazéification et l'échange thermique lent entre les phases jusqu'à trouver l'équilibre thermique.

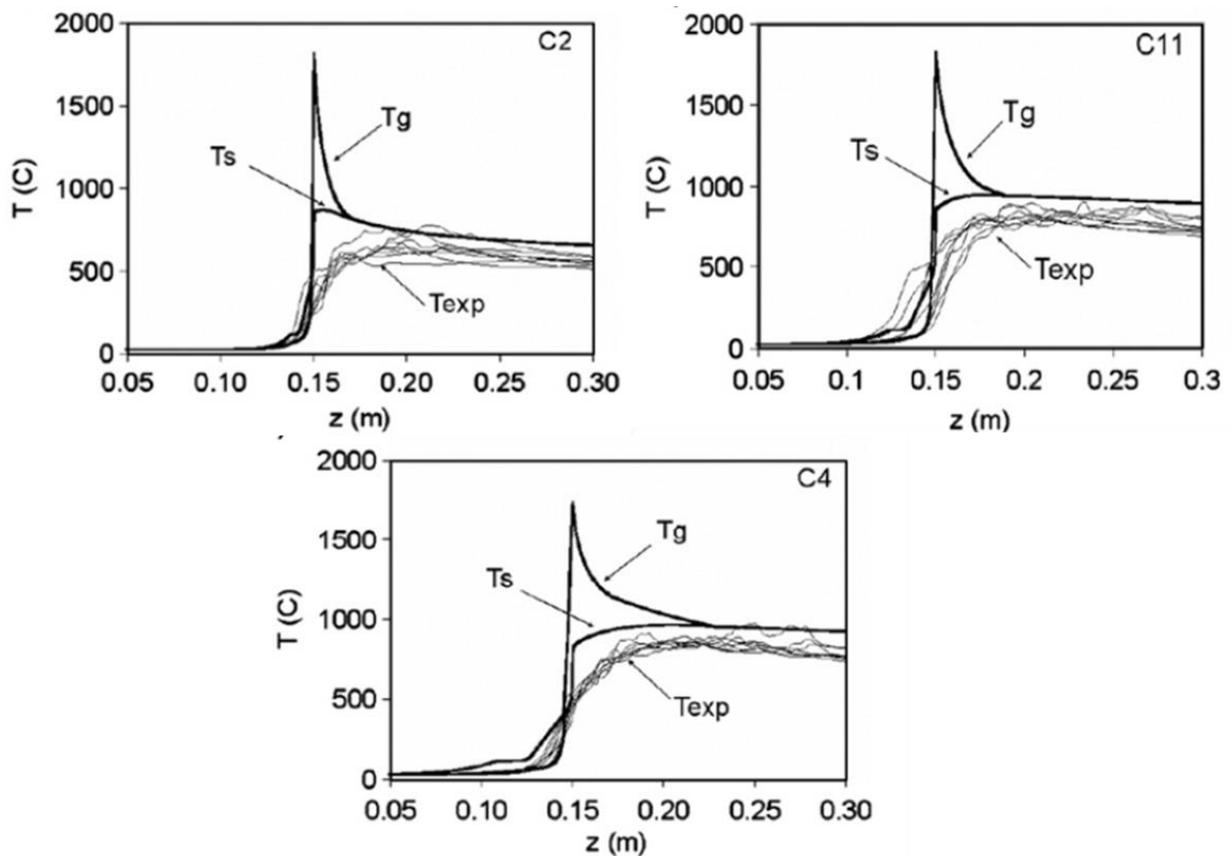


Figure IV-9. Influence de la taille initiale de la particule sur la température de la phase solide et gazeuse dans [67]

IV.1.2. Conversion des particules

Les profils axiaux (au centre du réacteur, en $r = 0$) dynamiques du diamètre des particules sont présentés sur les Figure IV-10, Figure IV-11 et Figure IV-12 pour des diamètres initiaux de particules respectivement de 6,9 mm, 10 mm et 15 mm.

Lorsque le diamètre initial de la particule augmente, nous pouvons observer que la conversion des particules est plus hétérogène dans le réacteur. Même si la vitesse de conversion est plus

rapide (augmentation de la surface d'échange), la conversion complète des particules est plus longue. Pour la simulation avec un diamètre initial de 6,9 mm et 10 mm, à 500 secondes, les particules proches de la source de chaleur ($z=0,4$ m) ont été complètement consommées. Pour la simulation avec un diamètre initial de 15 mm, la conversion à cette hauteur est partielle : les particules les plus consommées ont un diamètre égal à 12 mm.

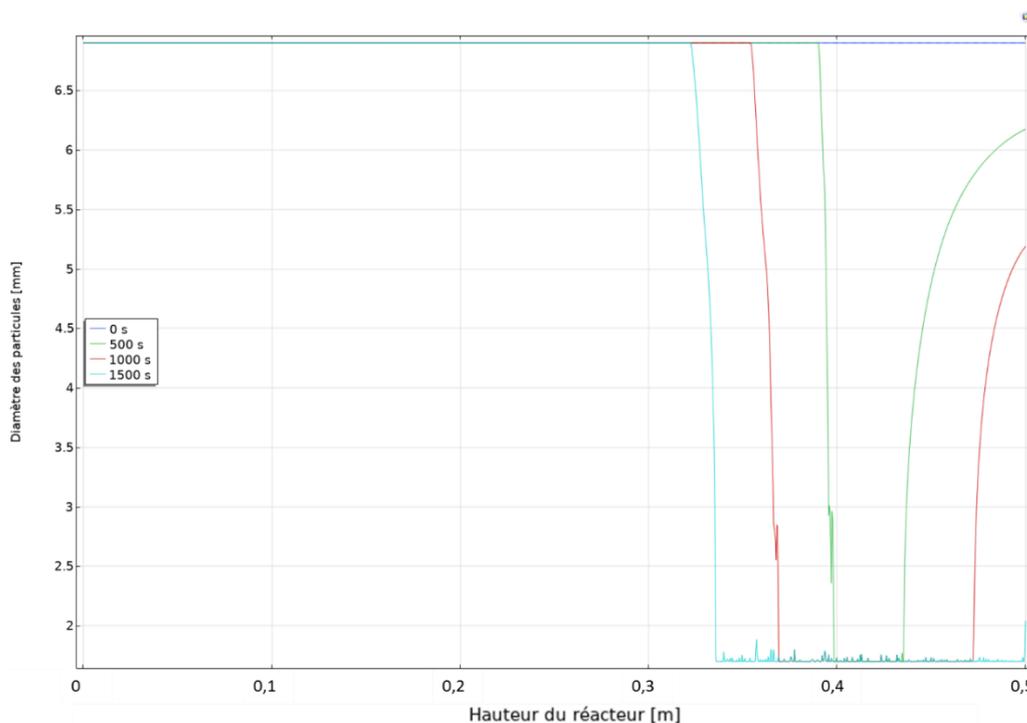


Figure IV-10. Profil axial dynamique du diamètre des particules pour un diamètre initial de 6,9 mm

Lorsque le front s'éloigne de la source de chaleur, la zone dans laquelle les particules sont partiellement consommées s'étend entre l'emplacement du front et le bas du réacteur. Pour 1500 secondes, le diamètre des particules diminue jusqu'à 6,5 mm (vers $z = 0,3$ m), par combustion ($Rc1$) et ensuite on peut identifier des particules à 8 mm dans la zone de gazéification sous le front de pyrolyse oxydante. Il est également possible d'observer que l'avancement du front de consommation par des réactions de gazéification sous le front de combustion se propage plus lentement une fois que la source de chaleur est arrêtée (entre 1000 et 1500 secondes).

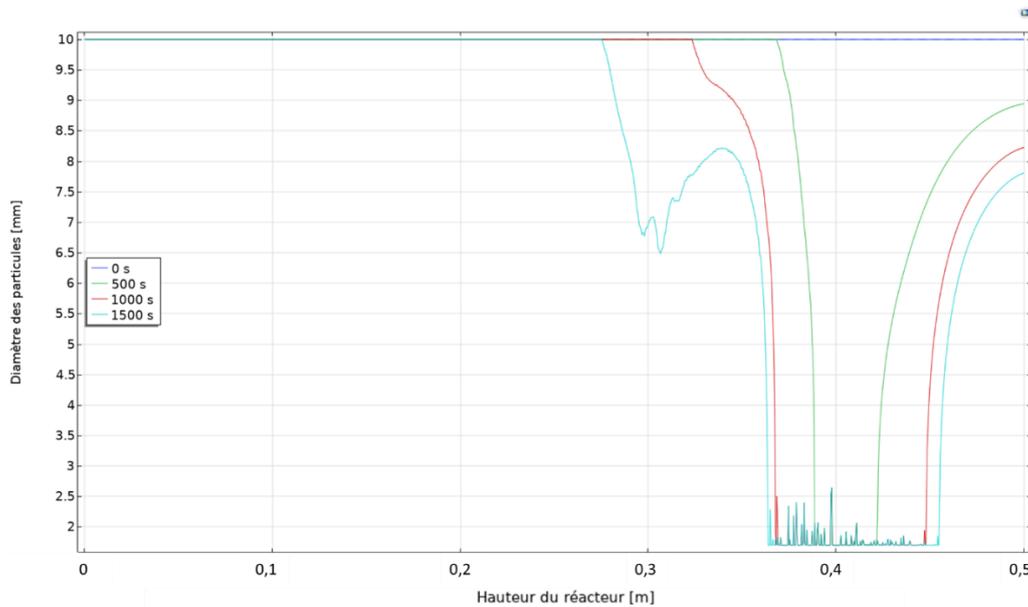


Figure IV-11. Profil axial dynamique du diamètre des particules pour un diamètre initial de 10 mm

Lorsque le diamètre initial des particules est de 15 mm, la conversion complète des particules n'est pas atteinte lors des 1500 premières secondes de simulation.

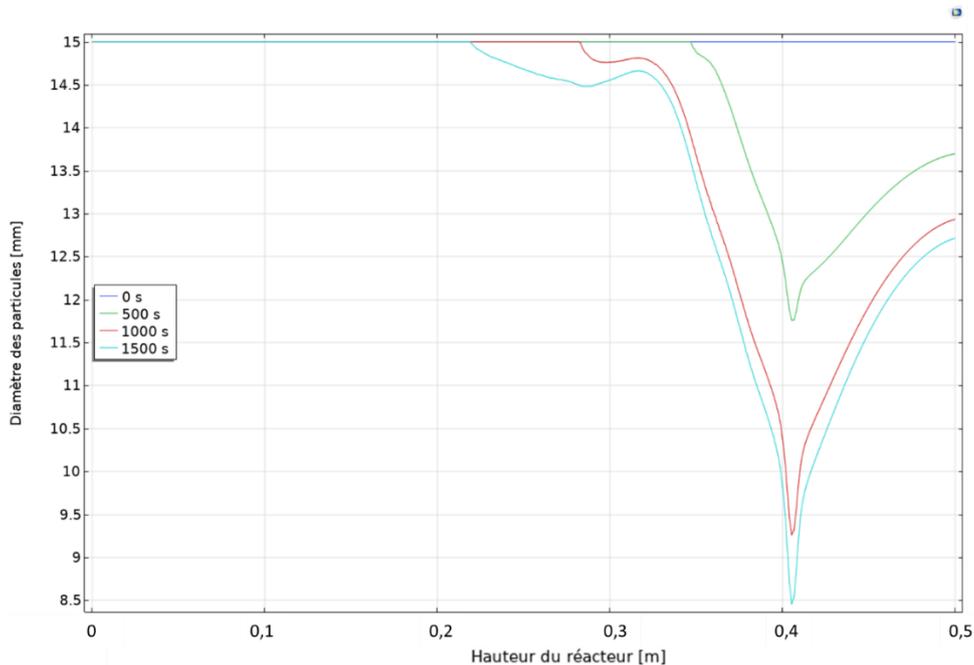


Figure IV-12. Profil axial dynamique du diamètre des particules pour un diamètre initial de 15 mm

La zone où la conversion est la plus avancée se trouve près de la source de chaleur, comme pour la simulation à 10 mm. La consommation des particules par combustion est moins prononcée que pour les simulations précédentes : on observe une première diminution du diamètre des

particules d'environ 0,5 mm (1500 s), caractérisée par une pente moins prononcée que lors de la consommation de particules plus petites par combustion.

IV.1.3. Evolution de la concentration massique de la biomasse et du char

Les profils axiaux (au centre du réacteur, en $r = 0$) dynamiques des concentrations de biomasse et de char en phase solide sont présentés sur les Figure IV-13, Figure IV-14 et Figure IV-15 pour des diamètres initiaux de particules respectivement de 6,9 mm, 10 mm et 15 mm.

Sur ces figures, le front de pyrolyse est bien visible : il correspond à la diminution brusque de la concentration en biomasse qui est convertie en char par pyrolyse.

Les températures élevées dans la simulation avec un diamètre initial de 6,9 mm ont provoqué la conversion complète du char par combustion. Le front a avancé à partir de la source de chaleur du fait de la réaction de combustion du char ($R_{c1} : C + 0,5O_2 \xrightarrow{k_{c1}} CO$), laissant un front de char non (entièrement) consommé sur quelques centimètres sous le front de pyrolyse oxydante (pics observés sur la Figure IV-13 à $z = 0,39$ m (500 s), $z = 0,35$ m (1000 s) et $z = 0,32$ m (1500 s)).

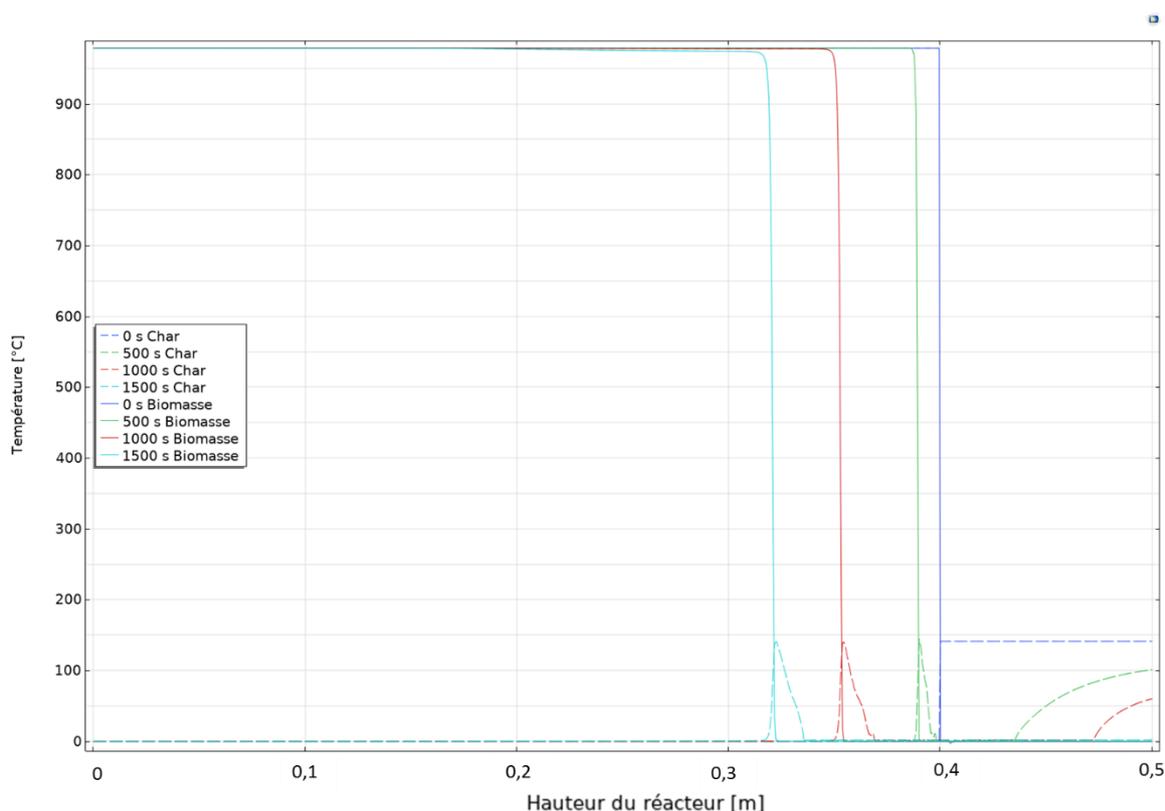


Figure IV-13. Concentration massique des espèces solides pour une diamètre initial de 6,9 mm

Lorsque le diamètre des particules augmente (Figure IV-14 et Figure IV-15), nous observons que le front réactif se propage plus vite vers le haut du réacteur, mais la consommation de char sous le front réactif est plus lente et hétérogène : des gradients de concentration du char sont visibles dans la partie basse du réacteur, comme évoqué précédemment. Il est également possible d'observer que la conversion de la biomasse par pyrolyse est plus lente (pente moins raide) par rapport à la simulation avec un diamètre initial de particules plus petit.

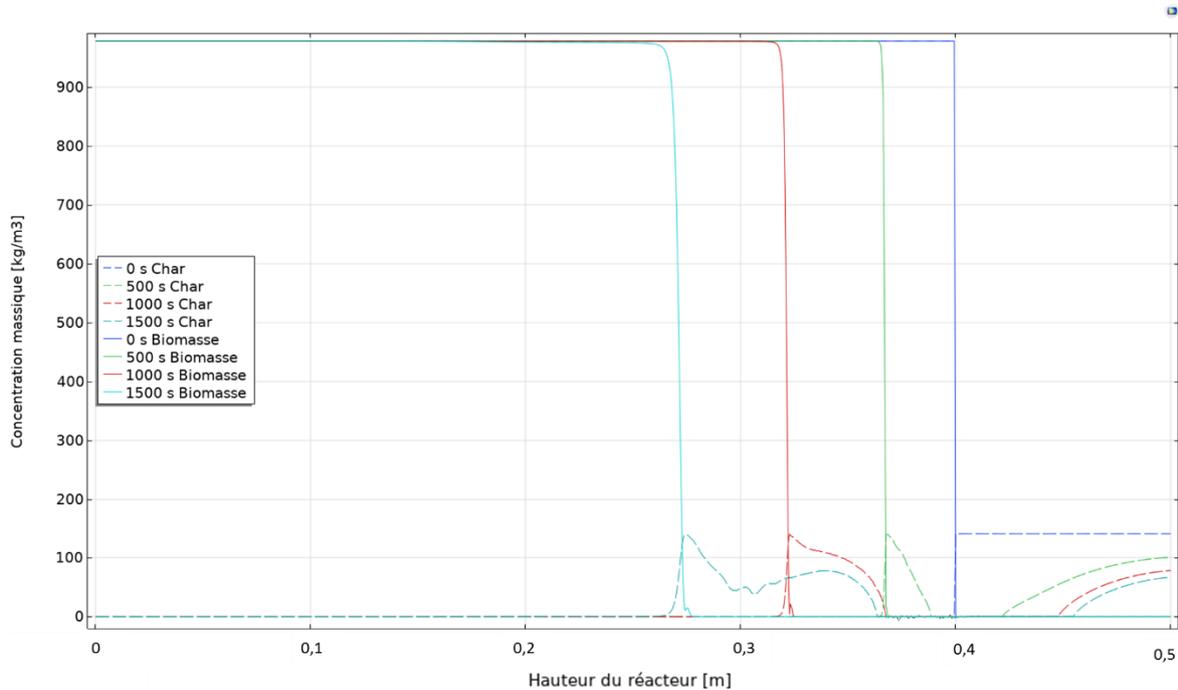


Figure IV-14. Concentration massique des espèces solides pour une diamètre initial de 10 mm

Ces phénomènes sont particulièrement visibles pour des particules de 15 mm de diamètre initial (Figure IV-15) : jusqu'à 1500 secondes de simulation, le char n'a pas été complètement consommé dans le réacteur, ce qui est cohérent avec le diamètre des particules montré sur la Figure IV-12. En ce qui concerne le front de pyrolyse oxydante, à 1500 secondes de simulation, il se trouve à $z = 320$ mm pour un diamètre initial de 6,9 mm, à $z = 270$ mm pour des particules de 10 mm de diamètre initial, et à $z = 210$ mm pour des particules de 15 mm de diamètre initial.

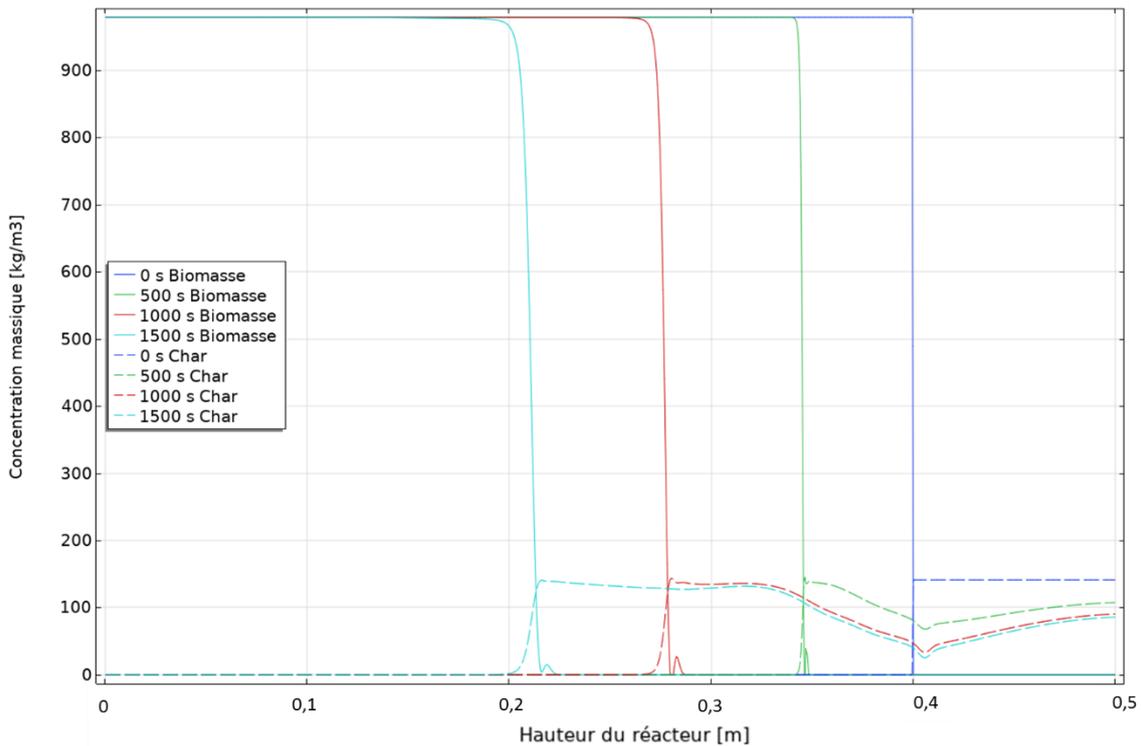


Figure IV-15. Concentration massique des espèces solides pour une diamètre initial de 15 mm

IV.2. Conclusion

Le modèle a été utilisé pour étudier l'influence de la taille des particules sur les températures des phases solide et gazeuse, l'évolution des concentrations des espèces solides et la conversion des particules. Lorsque le diamètre initial des particules est augmenté, le modèle prend bien compte de l'augmentation de l'inertie thermique entre les deux phases : l'échange de chaleur est ralenti. D'autre part, le modèle permet d'observer une conversion plus hétérogène sur la longueur et le rayon du réacteur lorsque les particules sont plus grandes. Bien que le ralentissement de l'échange de chaleur et de la conversion des particules soient cohérents avec ceux retrouvés dans la littérature [67,96], la vitesse de propagation du front de réaction augmente avec la taille des particules, ce qui est contraire aux tendances retrouvées dans la littérature. Cette différence peut être expliquée par l'hypothèse forte sur l'adiabaticité du réacteur ainsi que par la durée et la puissance de la source de chaleur intégrée dans la simulation qui maintient le réacteur en température. D'autre part, le diamètre minimal des particules (déclenchant l'arrêt des réactions) déterminé à l'aide de l'équation (III-26) en fonction de la teneur en cendres du combustible, n'a pas été ajusté (fixé à 1,7 mm pour les 3 simulations). En conséquence, les simulations avec des particules plus grandes admettent une teneur plus grande

de matière volatile dans les particules. De ce fait, la combustion de ces dernières devient plus importante, provoquant une propagation plus rapide du front de température dans le réacteur. Il serait pertinent de modifier ce paramètre et d'évaluer la précision du modèle pour vérifier la cohérence des vitesses de front obtenues (ralentissement du front lorsque la taille de particules augmente). Cette étude de sensibilité n'a pu être menée de façon satisfaisante dans le cadre de cette thèse du fait de problèmes de modélisation de l'ignition à faible diamètre. La finalisation de ce travail passe sans doute par une meilleure représentation des conditions opératoires de démarrage et notamment de la modélisation de la source de chaleur (durée et intensité).

Conclusion générale

Dans le cadre de la transition énergétique, les gazéificateurs à lit fixe co-courants représentent une solution technologique intéressante à l'échelle des territoires pour la valorisation des déchets. Dans ces réacteurs, le taux de conversion est élevé mais la conversion homogène du combustible est difficile à atteindre et représente une barrière à leur utilisation à des performances optimales. L'hétérogénéité de la conversion est notamment due aux phénomènes de rétrécissement, de fissuration, de gonflement et de fragmentation des particules. En conséquence, la porosité du lit est modifiée, provoquant parfois des défauts d'écoulement tels que des passages préférentiels ou des effondrements du lit. Pour progresser dans la compréhension et la prédiction de ces phénomènes, le principal objectif de cette thèse est de proposer un modèle numérique de gazéification en lit fixe, prenant en compte les réactions chimiques, les transferts de chaleur et de matière, l'écoulement de la phase gazeuse et le tassement du lit et ce en dynamique.

L'étude bibliographique présentée dans le Chapitre II a mis en évidence que la compréhension des phénomènes fortement couplés mis en jeu dans un réacteur de gazéification à lit fixe nécessite leur description mathématique à plusieurs échelles représentatives. L'échelle de la particule permet d'étudier les mécanismes de conversion et l'évolution morphologique des particules (porosité, taille). Le passage à l'échelle du réacteur permet quant à lui l'analyse des grandeurs physiques macroscopiques telles que la perte de charge, l'écoulement gazeux et la température. La modélisation du réacteur de gazéification à partir d'un sous-modèle de conversion particulaire permet d'étudier l'évolution morphologique du lit, notamment lors du phénomène de tassement. Différentes mises en équation du phénomène de tassement ont été identifiées. L'étude bibliographique a permis de conclure que parmi celles-ci, la modélisation du tassement par déformation du domaine est la plus adaptée à notre problématique. C'est cette approche qui a été intégrée dans cette thèse.

Le Chapitre III présente le développement du modèle et sa validation. Le modèle inclut les phénomènes de gazéification à l'échelle de la particule ainsi qu'à l'échelle du lit. Le schéma réactionnel proposé permet l'établissement des zones réactives selon les conditions opératoires et l'avancement du front. La diminution de la taille des particules a été modélisée à l'aide d'un

modèle de particule à cœur rétrécissant. Le niveau du lit diminue en fonction de la conversion des particules (phénomène de tassement). À l'échelle du lit, le transport des espèces gazeuses, l'écoulement du gaz et les transferts thermiques sont modélisés. Le modèle permet de simuler la gazéification depuis l'ignition du réacteur et d'étudier l'avancement du front réactif dans le combustible. Il s'agit d'une avancée significative, car peu d'études dans la littérature modélisent et valident l'état transitoire en gazéification. La validation est réalisée à l'aide de données expérimentales issues de la littérature [36]. Cependant, certaines conditions expérimentales n'ont pas pu être reproduites à l'identique dans la simulation. La validation de la dynamique du procédé est réalisée à partir de l'avancement du front de réaction dans le réacteur depuis l'ignition. Pour ce faire, les profils dynamiques de températures expérimentales et simulées ont été comparés. Un écart d'approximativement 200 K entre les températures expérimentales et simulées est observé, les températures simulées étant supérieures à celles expérimentales. Cet écart est du même ordre de grandeur que ceux constatés dans des études similaires [51], [96]. Les vitesses de l'avancement du front de réaction expérimentales et simulées ont aussi été comparées. L'écart relatif est compris entre 3 et 31%.

Pour comparer plus facilement les profils dynamiques de température lors de l'avancée du front dans le réacteur, les courbes expérimentales et modélisées ont été adimensionnalisées par rapport au temps et à la température. Cette comparaison a permis de conclure que le modèle est capable de reproduire de manière fiable les transitoires de la gazéification. Les pentes des courbes ont des allures très similaires et il est possible d'identifier certains phénomènes réactifs. Les oscillations de température observées dans l'expérience et résultant de la compétition entre les réactions sont retrouvées dans les profils simulés. Les écarts constatés entre les données expérimentales et simulées peuvent être expliqués de manière cohérente par les différences entre les conditions opératoires du modèle et de l'expérience :

- la puissance de la source de chaleur, inconnue dans l'expérience, a été imposée par tâtonnement dans la simulation. La durée d'une simulation complète (environ 15 jours) limite le nombre d'essais réalisables ;
- dans le modèle, l'hypothèse forte de considérer le réacteur comme adiabatique a été faite ;
- dans le modèle, le combustible est présent dès l'ignition, ce qui provoque prématurément le séchage de la biomasse ;
- dans le modèle, la réalimentation en combustible frais lorsque le front s'éteint n'a pas été modélisée.

Le modèle ayant été développé en 2 dimensions, il permet d'étudier la distribution radiale des phénomènes de gazéification dans le réacteur : gradients de température, du diamètre des particules, de concentration des espèces gazeuses et distribution de l'agent oxydant.

Dans le chapitre IV, le modèle a été utilisé pour étudier l'influence de la taille des particules sur les températures des phases solide et gazeuse, l'évolution des concentrations des espèces solides et la diminution de la taille des particules. Lorsque le diamètre initial des particules augmente, le modèle traduit de façon satisfaisante l'augmentation résultante d'inertie thermique entre les deux phases : l'échange de chaleur est ralenti de même que la distribution non-homogène des particules, reconnue comme une source de dysfonctionnement des lits fixes. Ces travaux d'exploitation du modèle devront être complétés par l'étude de diamètres des particules faibles. Ces difficultés sont probablement liées à la modélisation de la source de chaleur initiale dont l'amélioration ou tout du moins la réalisation d'une étude de sensibilité seraient des pistes intéressantes à poursuivre.

D'autre part, la précision de la modélisation du tassement doit être également vérifiée. Sur les simulations, nous pouvons observer que la déformation du lit suit la tendance des zones de consommation des particules plus prononcées. Néanmoins, la diminution du niveau du lit semble sous-estimée. L'inclusion de l'extraction du combustible consommé ainsi que la réalimentation en combustible frais restent à intégrer pour améliorer encore la représentativité du modèle et permettre l'étude de la gazéification depuis l'ignition jusqu'à l'état stationnaire ainsi que des variations de chargement.

Dans le modèle développé dans cette thèse, les phénomènes réactionnels fortement couplés à l'écoulement de la phase gaz et aux phénomènes de transfert thermique dans le milieu poreux sont simulés de manière satisfaisante. Le tassement a été pris en compte. Le caractère 2D du modèle permet d'observer et de comprendre des phénomènes difficiles à mesurer. Ces informations peuvent être précieuses pour comprendre certains dysfonctionnements des réacteurs à lit fixe. De plus, ce modèle pourrait être utilisé comme outil de dimensionnement du réacteur. L'influence de plusieurs paramètres opératoires pourrait être étudiée, tels que le diamètre du réacteur, la composition de l'agent oxydant, le ratio équivalent ou l'emplacement de l'injection. D'autre part, la composition et masse volumique du combustible, et le diamètre des particules sont des paramètres d'entrée du modèle, qui permettent l'étude de différents intrants hétérogènes afin de valider la faisabilité de leur conversion dans un réacteur à lit fixe co-courant.

Bibliographie

- [1] CCNUCC 1992 https://treaties.un.org/doc/Treaties/1994/03/19940321%2004-56%20AM/Ch_XXVII_07p.pdf CHAPITRE XXVII. ENVIRONNEMENT. 7. Convention-cadre des Nations Unies sur les changements climatiques. New York, 9 mai 1992
- [2] Climate Change 2014: Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Core Writing Team, R.K. Pachauri and L.A. Meyer (eds.)]. IPCC, Geneva, Switzerland, 151 pp.
- [3] IPCC, 2021: Summary for Policymakers. In: Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Masson-Delmotte, V., P. Zhai, A. Pirani, S.L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M.I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J.B.R. Matthews, T.K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu, and B. Zhou (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 3–32, doi:10.1017/9781009157896.001.
- [4] IPCC, 2021: Climate Change 2021: Technical Summary Arias, P.A., N. Bellouin, E. Coppola, R.G. Jones, G. Krinner, J. Marotzke, V. Naik, M.D. Palmer, G.-K. Plattner, J. Rogelj, M. Rojas, J. Sillmann, T. Storelvmo, P.W. Thorne, B. Trewin, K. Achuta Rao, B. Adhikary, R.P. Allan, K. Armour, G. Bala, R. Barimalala, S. Berger, J.G. Canadell, C. Cassou, A. Cherchi, W. Collins, W.D. Collins, S.L. Connors, S. Corti, F. Cruz, F.J. Dentener, C. Dereczynski, A. Di Luca, A. Diongue Niang, F.J. Doblas-Reyes, A. Dosio, H. Douville, F. Engelbrecht, V. Eyring, E. Fischer, P. Forster, B. Fox-Kemper, J.S. Fuglestedt, J.C. Fyfe, N.P. Gillett, L. Goldfarb, I. Gorodetskaya, J.M. Gutierrez, R. Hamdi, E. Hawkins, H.T. Hewitt, P. Hope, A.S. Islam, C. Jones, D.S. Kaufman, R.E. Kopp, Y. Kosaka, J. Kossin, S. Krakovska, J.-Y. Lee, J. Li, T. Mauritsen, T.K. Maycock, M. Meinshausen, S.-K. Min, P.M.S. Monteiro, T. Ngo-Duc, F. Otto, I. Pinto, A. Pirani, K. Raghavan, R. Ranasinghe, A.C. Ruane, L. Ruiz, J.-B. Sallée, B.H. Samset, S. Sathyendranath, S.I. Seneviratne, A.A. Sörensson, S. Szopa, I. Takayabu, A.-M. Tréguier, B. van den Hurk, R. Vautard, K. von Schuckmann, S. Zaehle, X. Zhang, and K. Zickfeld, 2021: Technical Summary. In Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Masson-Delmotte, V., P. Zhai, A. Pirani, S.L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M.I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J.B.R. Matthews, T.K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu, and B. Zhou (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 33–144. doi:10.1017/9781009157896.002.
- [5] Accord de Paris de 2015 sur le climat <https://www.un.org/fr/climatechange/paris-agreement>
- [6] Commission européenne https://ec.europa.eu/info/strategy/priorities-2019-2024/european-green-deal_fr consulté le 02/11/2022
- [7] <https://www.ecologie.gouv.fr/loi-transition-energetique-croissance-verte> consulté le 02/11/2022
- [8] <https://www.ecologie.gouv.fr/strategie-nationale-bas-carbone-snbc> consulté le 02/11/2022

- [9] Parlement européen 1
<https://www.europarl.europa.eu/news/fr/headlines/society/20180301STO98928/emissions-de-gaz-a-effet-de-serre-par-pays-et-par-secteur-infographie> consulté le 02/11/2022
- [10] Parlement européen 2 <https://www.europarl.europa.eu/factsheets/fr/sheet/70/energies-renouvelables> consulté le 02/11/2022
- [11] Larousse <https://www.larousse.fr/dictionnaires/francais/biomasse/9439> consulté le 04/11/2022
- [12] Code de l'énergie
https://www.legifrance.gouv.fr/codes/article_lc/LEGIARTI000023986186/ consulté le 04/11/2022
- [13] [Code de l'environnement]
https://www.legifrance.gouv.fr/codes/texte_lc/LEGITEXT000006074220 consulté le 09/11/2022
- [14] ADEME, <https://www.ademe.fr/expertises/dechets/passer-a-l'action/valorisation-energetique/dossier/pyrolyse-gazeification/enjeux-pyrolyse-gazeification>, (dernière visite 14/02/2022).
- [15] Vonk G. Caractérisation de la gazéification de combustibles solides de récupération (CSR) en vue d'optimiser leur utilisation dans une unité de cogénération par gazogène :287.
- [16] Statistiques développement durable <https://www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr/edition-numerique/chiffres-cles-energies-renouvelables-2021/1-les-energies-renouvelables-en-france#images-1> consulté le 04/11/2022
- [17] Brown, R. *Thermochemical Processing of Biomass*. 2e ed. 2019.
- [18] Hermansson S, Thunman H. CFD modelling of bed shrinkage and channelling in fixed-bed combustion. *Combustion and Flame* 2011;158:988–99. <https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2011.01.022>.
- [19] US Department of Energy, Biomass Cofiring in Coal-Fired Boilers (DOE/EE-0288), 2004. <https://www.nrel.gov/docs/fy04osti/33811.pdf>, (dernière visite 14/02/2022).
- [20] EUROSTAT
https://ec.europa.eu/eurostat/databrowser/view/env_wasfac/default/map?lang=fr
- [21] Bassil, Gazéification de la biomasse : élimination des goudrons, Lyon: Thèse de l'Université Claude Bernard -Lyon I, 2012
- [22] Le Brech Yann. Analyse des mécanismes primaires de pyrolyse de la biomasse. Thèse de doctorat, Université de Lorraine, 2015.
- [23] Antonini, G., & Hazi, M. (2004). Pyrolyse-Gazéification de déchets solides. Etude ADEME/PROCEDIS. Juin.
- [24] Antonini G. Valorisation énergétique des déchets par voie thermochimique (pyrolyse, dépolymérisation, gazéification). Retour sur les développements passés et avis d'expert :140.
- [25] Arena U. Process and technological aspects of municipal solid waste gasification. A review. *Waste Management* 2012;32:625–39. <https://doi.org/10.1016/j.wasman.2011.09.025>.
- [26] Jones, A. M., & Harrison, R. M. (2016). Emission of ultrafine particles from the incineration of municipal solid waste: A review. *Atmospheric Environment*, 140, 519-528.
- [27] Vicente, E. D., & Alves, C. A. (2018). An overview of particulate emissions from residential biomass combustion. *Atmospheric Research*, 199, 159-185.
- [28] EBA, Gasification: A Sustainable Technology For Circular Economies, 2021.
- [29] Deglise X. La gazéification thermochimique: histoire et développement de la recherche
- [30] IEA Bioenergy Annual Report 2019 :148.

- [31] Dekker M. *Solid Fuels Combustion and Gasification* 2004:462.
- [32] Allesina G, Pedrazzi S, Tartarini P. Modeling and investigation of the channeling phenomenon in downdraft stratified gasifiers. *Bioresource Technology* 2013;146:704–12. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2013.07.132>.
- [33] Waldheim L. *Gasification of waste forenergy carriers: a review*. 2018.
- [34] Warnecke R. Gasification of biomass: comparison of fixed bed and fluidized bed gasifier. *Biomass and Bioenergy* 2000;18:489–97. [https://doi.org/10.1016/S0961-9534\(00\)00009-X](https://doi.org/10.1016/S0961-9534(00)00009-X).
- [35] Puig-Arnabat M, Bruno JC, Coronas A. Review and analysis of biomass gasification models. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 2010;14:2841–51. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2010.07.030>.
- [36] Barrio M. EXPERIMENTAL INVESTIGATION OF SMALL-SCALE GASIFICATION OF WOODY BIOMASS :236.
- [37] McKendry P. Energy production from biomass (part 3): gasification technologies. *Bioresource Technology* 2002;83:55–63. [https://doi.org/10.1016/S0960-8524\(01\)00120-1](https://doi.org/10.1016/S0960-8524(01)00120-1).
- [38] Kirchmeyr F. CATEGORIZATION OF EUROPEAN GASIFICATION TECHNOLOGIES 2020:51.
- [39] Corella, J., Herguido, J., & Alday, F.J., *Pyrolysis and steam gasification of biomass in fluidized beds. Influence of the type and location of the biomass feeding point on the product distribution*, 1988. *Research in Thermochemical Biomass Conversion*, 384-398. Elsevier Science Publishers Ltd.
- [40] Babcock & Wilcox, *Fluidized-bed combustion. Steam: Its Generation and Use*, 41e (ed. J.B. Kitto and S.C. Sutlitz), 17-12. Barbeton, OH/ Babcock & Wilcox.
- [41] Heidenreich, S., Müller, M., and Foscolo, P.U., *Advanced Biomass Gasification/ New Concepts for Efficiency Increase and Product Flexibility*, 2016. 69. Ann Arbor, MI/ Elsevier.
- [42] Magnus R., Anders L., Tobias M., *Production of H₂ and synthesis gas by chemical-looping reforming*, 2006. Presented at GHGT-8, Trondheim, Norway.
- [43] Simo Sepponen, *A Development and Application of a One-Dimensional Model for a Sorbent-Enhanced CFB Gasifier*, 2017. Master thesis, Lappeenranta University of Technology.
- [44] <https://cortus.se/solution-2/>.
- [45] Kwiatkowski, K., Bajer, K., Celińska, A., Dudyński, M., Korotko, J., & Sosnowska, M. (2014). Pyrolysis and gasification of a thermally thick wood particle—Effect of fragmentation. *Fuel*, 132, 125-134.
- [46] Z.A. Zainal, R. Ali, G. Quadir, K.N. Seetharamu, Experimental investigations of a downdraft biomass gasifier, *Biomass Bioener.* 23 (2002) 283–289.
- [47] F. Miccio, Barletta, D., & Poletto, M. (2013). Flow properties and arching behavior of biomass particulate solids. *Powder technology*, 235, 312-321.
- [48] Madadian, E., Lefsrud, M., Lee, C. P., Roy, Y., & Orsat, V. (2016). Gasification of pelletized woody biomass using a downdraft reactor and impact of material bridging. *Journal of Energy Engineering*, 142(4), 04016001.
- [49] Teixeira G, Van de Steene L, Martin E, Gelix F, Salvador S. Gasification of char from wood pellets and from wood chips: Textural properties and thermochemical conversion along a continuous fixed bed. *Fuel* 2012;102:514–24. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2012.05.039>.

- [50] Teixeira G, Steene LVD, Salvador S, Gelix F, Dirion J-L, Paviet F. Gasification of continuous wood char bed: modelling and experimental approach. *Chemical Engineering Transactions* 2014004:247–52. <https://doi.org/10.3303/CET1437042>.
- [51] Gómez MA, Porteiro J, Patiño D, Míguez JL. CFD modelling of thermal conversion and packed bed compaction in biomass combustion. *Fuel* 2014;117:716–32. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2013.08.078>.
- [52] Yucel O, Hastaoglu MA. Kinetic modeling and simulation of throated downdraft gasifier. *Fuel Processing Technology* 2016;144:145–54. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2015.12.023>.
- [53] Zuo, H., Zeng, K., Li, J., Qiu, Y., Xu, H., Flamant, G., ... & Chen, H. (2023). Multi-dimensional shrinkage models developed by phase field method for gasification of carbonaceous feedstock in packed-bed solar reactor. *Fuel*, 331, 125749.
- [54] A.A.P. Susastriawan, H. Saptoadi, Small-scale downdraft gasifiers for biomass gasification: A review. *Renew. Sustain. Energy Rev.* 2017;76:989–1003.
- [55] Martínez JD, Silva Lora EE, Andrade RV, Jaén RL. Experimental study on biomass gasification in a double air stage downdraft reactor. *Biomass Bioenergy* 2011;35(8):3465–80.
- [56] Patel VR, Upadhyay DS, Patel RN. Gasification of lignite in a fixed bed reactor: influence of particle size on performance of downdraft gasifier. *Energy* 2014;78(0):323–32.
- [57] Sarker S, Nielsen HK. Assessing the gasification potential of five woodchips species by employing a lab-scale fixed-bed downdraft reactor. *Energy Convers Manag* 2015;103:801–13.
- [58] Ma Z, Zhang Y, Zhang Q, Qu Y, Zhou J, Qin H. Design and experimental investigation of a 190 kW e biomass fixed bed gasification and polygeneration pilot plant using a double air stage downdraft approach. *Energy* 2012;46(1):140–7.
- [59] Gai C, Dong Y. Experimental study on non-woody biomass gasification in a downdraft gasifier. *Int. J. Hydrogen Energy* 37 (6) (2012) 4935–4944.
- [60] Guo F, Dong Y, Dong L, Guo C. Effect of design and operating parameters on the gasification process of biomass in a downdraft fixed bed: an experimental study, *Int. J. Hydrogen Energy* 2014;39(11):5625–33.
- [61] A.K. Sharma, Experimental study on 75 kWth downdraft (biomass) gasifier system, *Renew. Energy* 34 (7) (2009) 1726-1733.
- [62] Sharma S, Sheth PN. Air-steam biomass gasification: experiments, modeling and simulation. *Energy Convers Manag* 2016;110:307–18.
- [63] Sheth PN, Babu BV. Experimental studies on producer gas generation from wood waste in a downdraft biomass gasifier. *Bioresour Technol* 2009;100(12):3127–33.
- [64] Galindo AL, Lora ES, Andrade RV, Giraldo SY, Jaén RL, Cobas VM. Biomass gasification in a downdraft gasifier with a two-stage air supply: effect of operating conditions on gas quality. *Biomass Bioener.* 2014;61:236–44.
- [65] Khodaei H, Al-Abdeli YM, Guzzomi F, Yeoh GH. An overview of processes and considerations in the modelling of fixed-bed biomass combustion 2015:27.
- [66] Bryden KM. Numerical Modeling of a Deep, Fixed Bed Combustor :7.
- [67] Tinaut FV, Melgar A, Pérez JF, Horrillo A. Effect of biomass particle size and air superficial velocity on the gasification process in a downdraft fixed bed gasifier. An experimental and modelling study. *Fuel Processing Technology* 2008;89:1076–89. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2008.04.010>.
- [68] Mandl C, Obernberger I, Biedermann F. Modelling of an updraft fixed-bed gasifier operated with softwood pellets. *Fuel* 2010;89:3795–806. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2010.07.014>.

- [69] Hobbs ML, Radulovic PT, Smoot LD. Combustion and gasification of coals in fixed-beds. *Progress in Energy and Combustion Science* 1993;19:505–86. [https://doi.org/10.1016/0360-1285\(93\)90003-W](https://doi.org/10.1016/0360-1285(93)90003-W).
- [70] Di Blasi C. Modeling wood gasification in a countercurrent fixed-bed reactor. *AIChE Journal* 2004;50:2306–19. <https://doi.org/10.1002/aic.10189>.
- [71] Patra TK, Nimisha KR, Sheth PN. A comprehensive dynamic model for downdraft gasifier using heat and mass transport coupled with reaction kinetics. *Energy* 2016;116:1230–42. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2016.10.036>.
- [72] Yang YB, Nasserzadeh V, Goodfellow J, Swithenbank J. Simulation of Channel Growth in a Burning Bed of Solids. *Chemical Engineering Research and Design* 2003;81:221–32. <https://doi.org/10.1205/026387603762878683>.
- [73] Sharma AKr. Modeling and simulation of a downdraft biomass gasifier 1. Model development and validation. *Energy Conversion and Management* 2011;52:1386–96. <https://doi.org/10.1016/j.enconman.2010.10.001>.
- [74] Yang YB, Goodfellow J, Goh YR, Nasserzadeh V, Swithenbank J. Investigation of Channel Formation Due to Random Packing in a Burning Waste Bed. *Process Safety and Environmental Protection* 2001;79:267–77. <https://doi.org/10.1205/095758201753189703>.
- [75] Di Blasi C, Branca C. Modeling a stratified downdraft wood gasifier with primary and secondary air entry. *Fuel* 2013;104:847–60. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2012.10.014>.
- [76] Blasi CD. Dynamic behaviour of stratified downdraft gasifiers. *Chemical Engineering Science* 2000;14.
- [77] Chaurasia A. Modeling, simulation and optimization of downdraft gasifier: Studies on chemical kinetics and operating conditions on the performance of the biomass gasification process. *Energy* 2016;116:1065–76. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2016.10.037>.
- [78] Smith Lewin C, Fonseca de Aguiar Martins AR, Pradelle F. Modelling, simulation and optimization of a solid residues downdraft gasifier: Application to the co-gasification of municipal solid waste and sugarcane bagasse. *Energy* 2020;210:118498. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2020.118498>.
- [79] Anca-Couce A, Zobel N, Jakobsen HA. Multi-scale modeling of fixed-bed thermochemical processes of biomass with the representative particle model: Application to pyrolysis. *Fuel* 2013;103:773–82. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2012.05.063>.
- [80] M. L. Hobbs, P. T. Radulovic, and L. D. Smoot. Combustion and gasification of coals in fixed-beds. *Progress in Energy and Combustion Science*, 19(6) :505586, 1993. Journal Article
- [81] Fogler HS. *Elements of chemical reaction engineering*. 3. ed., internat. ed. Upper Saddle River, NJ: Prentice Hall Internat; 1999.
- [30] WALKER, P. U, RUSINKO, F. and AUSTIN, L. G., *Advances in Catalysis*, p. 134, D. D. Eley, P. W. SeTwood and P. B. Weisz (Eds), XI, Academic Press Inc., New York (1959).
- [83] Teixeira G. Gazéification de charbon de granules de bois: comportement thermochimique et mécanique d'un lit fixe continu :234.
- [84] Van de steene L, Tagutchou JP, Escudero Sanz FJ, Salvador S. Gasification of woodchip particles: Experimental and numerical study of char–H₂O, char–CO₂, and char–O₂ reactions. *Chemical Engineering Science* 2011;66:4499–509. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2011.05.045>.
- [85] Golfier F, Van de steene L, Salvador S, Mermoud F, Oltean C, Bues MA. Impact of peripheral fragmentation on the steam gasification of an isolated wood charcoal particle

- in a diffusion-controlled regime. *Fuel* 2009;88:1498–503. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2009.02.043>.
- [86] Giltrap DL, McKibbin R, Barnes GRG. A steady state model of gas-char reactions in a downdraft biomass gasifier. *Solar Energy* 2003;7.
- [87] Babu, B. V., & Sheth, P. N. (2006). Modeling and simulation of reduction zone of downdraft biomass gasifier: effect of char reactivity factor. *Energy conversion and management*, 47(15-16), 2602-2611.
- [88] Hoang QN, Vanierschot M, Blondeau J, Croymans T, Pittoors R, Van Caneghem J. Review of numerical studies on thermal treatment of municipal solid waste in packed bed combustion. *Fuel Communications* 2021;7:100013. <https://doi.org/10.1016/j.jfueco.2021.100013>.
- [89] Bryden, K. M., Ragland, K. W., & Rutland, C. J. (2002). Modeling thermally thick pyrolysis of wood. *Biomass and Bioenergy*, 22(1), 41-53.
- [90] Hagge MJ, Bryden KM. Modeling the impact of shrinkage on the pyrolysis of dry biomass. *Chemical Engineering Science* 2002;57:2811–23. [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(02\)00167-7](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(02)00167-7).
- [91] Ström H, Thunman H. A computationally efficient particle submodel for CFD-simulations of fixed-bed conversion. *Applied Energy* 2013;112:808–17. <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2012.12.057>.
- [92] Mehrabian R, Zahirovic S, Scharler R, Obernberger I, Kleditzsch S, Wirtz S, et al. A CFD model for thermal conversion of thermally thick biomass particles. *Fuel Processing Technology* 2012;95:96–108. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2011.11.021>.
- [93] Karim MdR, Naser J. Numerical study of the ignition front propagation of different pelletised biomass in a packed bed furnace. *Applied Thermal Engineering* 2018;128:772–84. <https://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2017.09.061>.
- [94] Cooper J, Hallett WLH. A numerical model for packed-bed combustion of char particles. *Chemical Engineering Science* 2000;55:4451–60. [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(00\)00097-X](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(00)00097-X).
- [95] Duffy NTM, Eaton JA. Investigation of factors affecting channelling in fixed-bed solid fuel combustion using CFD. *Combustion and Flame* 2013;160:2204–20. <https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2013.04.015>.
- [96] González WA, Pérez JF, Chapela S, Porteiro J. Numerical analysis of wood biomass packing factor in a fixed-bed gasification process. *Renewable Energy* 2018;121:579–89. <https://doi.org/10.1016/j.renene.2018.01.057>.
- [97] Thunman, H., Niklasson, F., Johnsson, F., & Leckner, B. (2001). Composition of volatile gases and thermochemical properties of wood for modeling of fixed or fluidized beds. *Energy & Fuels*, 15(6), 1488-1497.
- [98] Guide utilisateur COMSOL Multiphysics version 5.6
- [99] Barrio M. Experimental investigation of small-scale gasification of woody biomass. PhD thesis, The Norwegian University of Science and Technology, Trondheim, Norway; 2002. <[ntnu.diva-portal.org/smash/get/diva2:126378/ FULLTEXT01](https://ntnu.diva-portal.org/smash/get/diva2:126378/FULLTEXT01)>
- [100] N. Wakao, S. Kaguei, and T. Funazkri, Effect of fluid dispersion coefficients on particle-to-fluid heat transfer coefficients in packed beds, *Chem. Engng Sci.* 34, pp. 325-336, 1979.
- [101] D.A. Nield and A. Bejan, *Convection in Porous Media*, in *Convection Heat Transfer*, Fourth Edition, John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, NJ, USA, 2013.
- [102] Groenli MG. A theoretical and experimental study of the thermal degradation of biomass
- [103] Zhou, H., Jensen, A. D., Glarborg, P., Jensen, P. A., & Kavaliuskas, A. (2005). Numerical modeling of straw combustion in a fixed bed. *Fuel*, 84(4), 389-403.

- [104] Hobbs ML, Radulovic PT, Smoot LD. Modeling fixed-bed coal gasifiers. *AIChE Journal* 1992;38:681–702. <https://doi.org/10.1002/aic.690380506>.
- [105] Brown D, Fuchino T, Maréchal F. Solid fuel decomposition modelling for the design of biomass gasification systems. *Computer Aided Chemical Engineering*, vol. 21, Elsevier; 2006, p. 1661–6. [https://doi.org/10.1016/S1570-7946\(06\)80286-5](https://doi.org/10.1016/S1570-7946(06)80286-5).

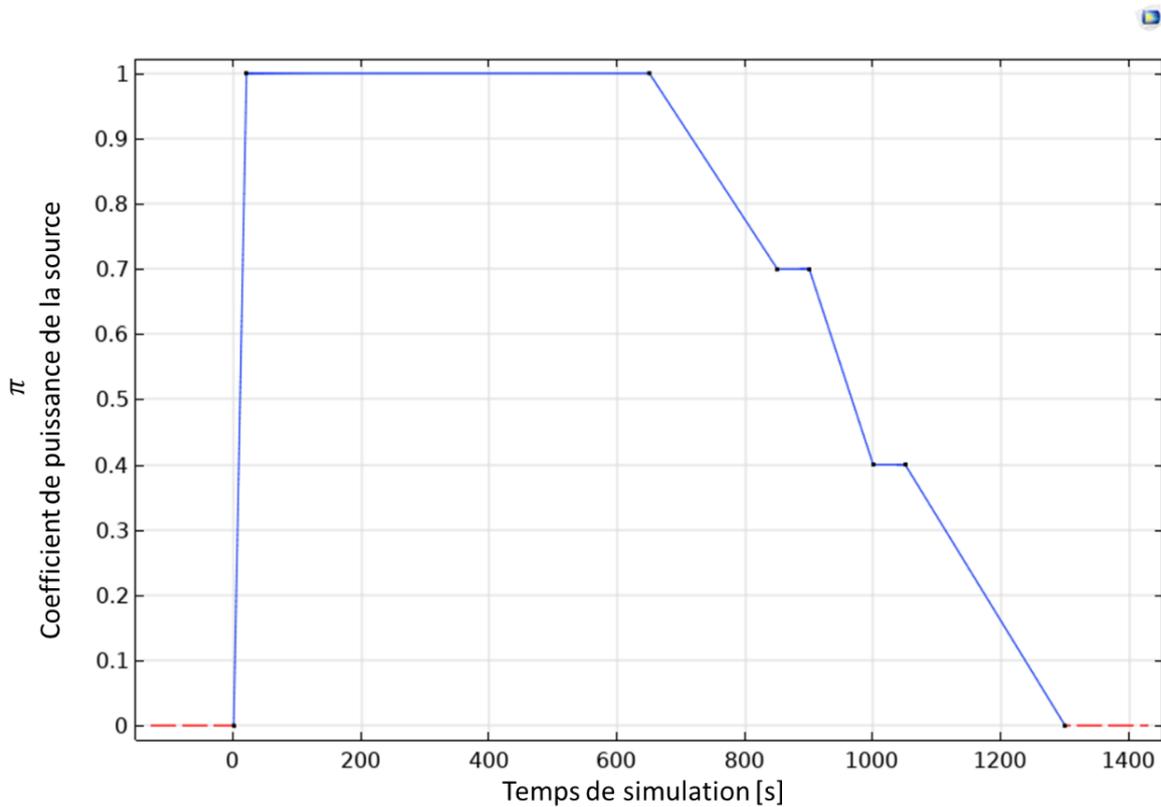
Annexes

Annexe 1

Fonction rampe appliquée à la source de chaleur pour l'étape de démarrage (ignition).

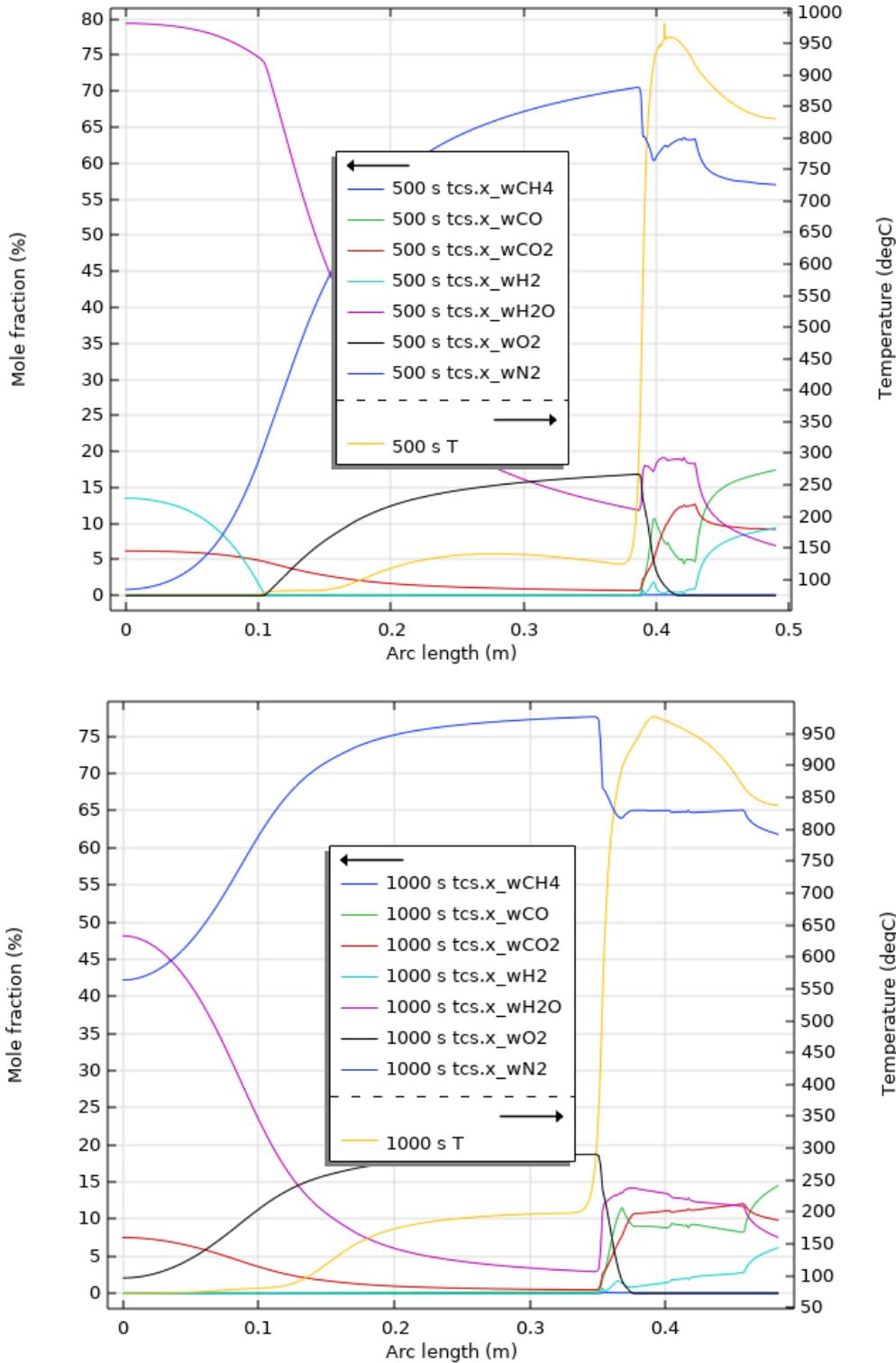
La puissance de la source Q_{ing} appliquée au domaine en fonction du temps correspond à la puissance initiale $Q_{ing,0}$ (déterminée par tâtonnement) multipliée par un coefficient π qui permet de réguler la puissance de la source en évitant des changements très brusques de température.

$$Q_{ing} = Q_{ing,0} * \pi$$



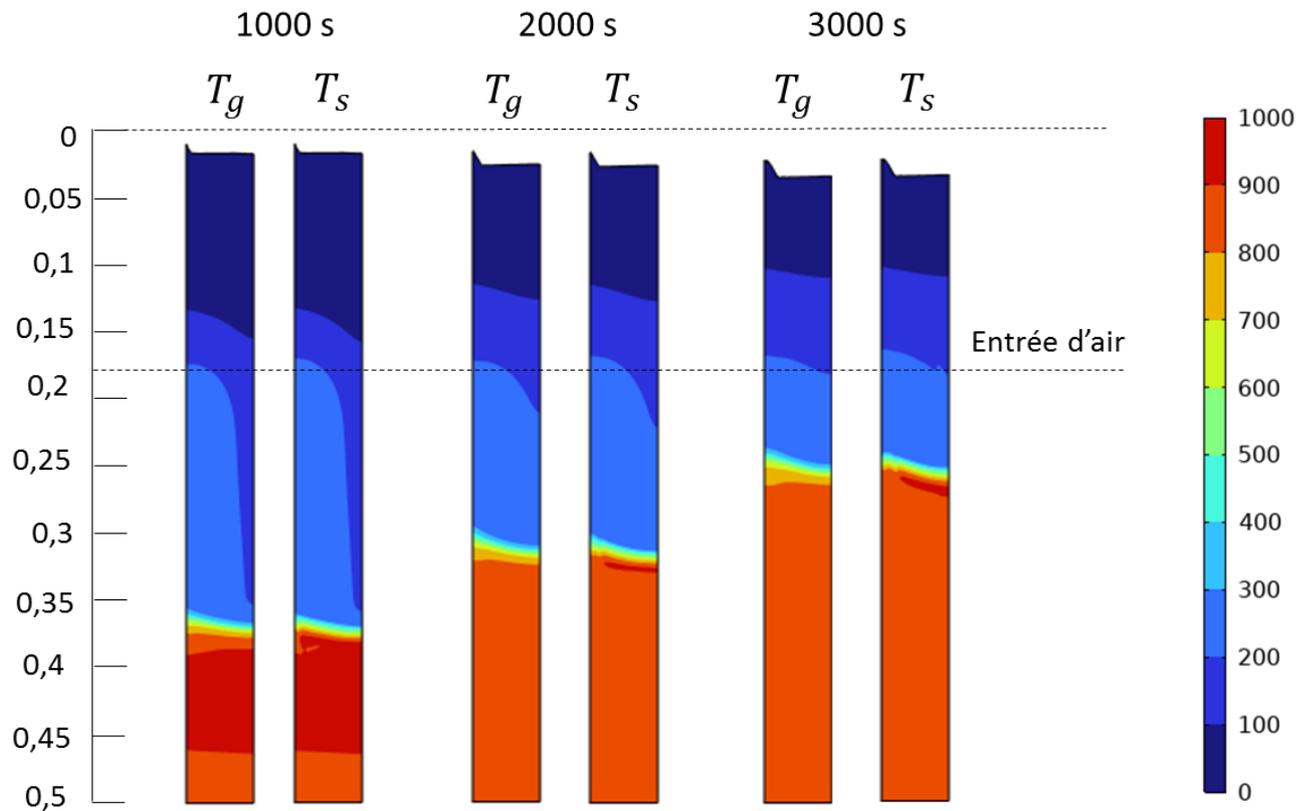
Annexe 2

Profils des pourcentages molaires des espèces gazeuses à 500 et 1000 secondes pour un diamètre initial de 6,9 mm.



Annexe 3

Distribution radiale de la température des phases gazeuse et solide pour un diamètre initial de 6,9 mm.





FOLIO ADMINISTRATIF

THESE DE L'INSA LYON, MEMBRE DE L'UNIVERSITE DE LYON

NOM : RUIZ SANCHEZ

DATE de SOUTENANCE : 24/10/2023

Prénoms : Janett Bianca

TITRE : Gazéification en lit fixe co-courant : étude des transitoires

NATURE : Doctorat

Numéro d'ordre : 2023ISAL0083

Ecole doctorale : MEGA

Spécialité : Thermique et énergétique

RESUME : La gazéification de combustibles alternatifs permet la production locale et non-intermittente d'énergie renouvelable et peut devenir une contribution majeure à la transition énergétique et à la promotion de l'économie circulaire et territoriale. Les réacteurs à lit fixe co-courant sont les mieux adaptés aux enjeux territoriaux liés à la valorisation des déchets. Dans ces réacteurs, le taux de conversion est élevé mais la conversion homogène du combustible est difficile à atteindre et représente une barrière à leur utilisation à des performances optimales. Dans ce contexte, le projet ECoGaz (valorisation Énergétique de COMbustibles alternatifs issus de déchets par GAZéification) vise à accroître les connaissances afin de développer l'utilisation de la gazéification pour la conversion de combustibles alternatifs dans ces réacteurs. Ainsi, le principal objectif de ce travail de thèse est de proposer un modèle numérique fiable de gazéification en lit fixe co-courant permettant de représenter avec justesse la conversion de combustibles complexes. Dans le modèle développé dans cette thèse, les phénomènes réactionnels fortement couplés à l'écoulement de la phase gaz et aux phénomènes de transfert thermique dans le milieu poreux sont simulés de manière satisfaisante. Le tassement a été pris en compte. Le caractère 2D du modèle permet d'observer et de comprendre des phénomènes difficiles à mesurer. Ces informations peuvent être précieuses pour comprendre certains dysfonctionnements des réacteurs à lit fixe. De plus, ce modèle pourrait être utilisé comme outil de dimensionnement du réacteur. L'influence de plusieurs paramètres opératoires pourrait être étudiée, tels que le diamètre du réacteur, la composition de l'agent oxydant, le ratio équivalent ou l'emplacement de l'injection. D'autre part, la composition du combustible, et le diamètre des particules sont des paramètres d'entrée du modèle, qui permettent l'étude de différents intrants hétérogènes afin de valider la faisabilité de leur conversion dans un réacteur à lit fixe co-courant.

MOTS-CLÉS : Gazéification, Lit fixe co-courant, Modélisation dynamique, État transitoire

Laboratoire (s) de recherche : Centre d'Énergétique et de Thermique de Lyon (CETHIL, UMR 5008) et Laboratoire Déchets Eaux Environnement Pollutions (DEEP)

Directeur de thèse : Marc CLAUSSE

Président de jury : Jean-Henry FERRASSE

Composition du jury :

BOUALLOU, Chakib	Professeur	MINES Paris-PSL	Rapporteur
VAN DE STEENE, Laurent	Habilité à Diriger de Recherches	CIRAD	Rapporteur
FERRASSE, Jean-Henry	Professeur des Universités	Aix-Marseille Université	Président
VALIN, Sylvie	Docteur	CEA	Examinatrice
CLAUSSE, Marc	Professeur des Universités	INSA-LYON	Directeur de thèse
DUCOM, Gaëlle	Maître des conférences	INSA-LYON	Co-directeur de thèse