

Modèle thermochimique bidimensionnel de pyrolyse de la biomasse

R. Vîjeu, L. Gerun^{*}, J. Bellettre, M. Tazerout, Z. Younsi et C. Castelain

¹ Ecole des Mines de Nantes, 'DSEE',
4, Rue Alfred Kasiler, R.P 20722, 44307 Nantes Cedex 3, France

² Ecole Polytechnique de l'Université de Nantes, 'Polytech-Nantes',
Rue Christian Pauc, B.P. 50609, 44306 Nantes Cedex 3, France

(reçu le 07 Mai 2006 – accepté le 25 Septembre 2007)

Résumé - La pyrolyse de la biomasse est étudiée. Un modèle thermochimique bidimensionnel basé sur une méthode nodale a été créé. Il intègre un mécanisme de transfert de chaleur et d'écoulement diphasique. La décomposition du bois s'effectue selon trois réactions concurrentes, produisant coke, gaz et goudrons. Ces derniers subissent également des réactions secondaires. Des essais sur une unité de pyrolyse ont permis de caractériser le comportement de la sciure de chêne durant le process. Les champs de température dans le lit de biomasse ont ainsi pu être obtenus en régime transitoire. Les résultats expérimentaux et numériques coïncident de manière satisfaisante.

Abstract - Biomass pyrolysis is studied. A two-dimension thermochemical model based on a nodal method is created. It integrates a mechanism of two-phase heat and mass transfer. Biomass devolatilization occurs through to three competitive reactions, producing coke, gas and tar. Tars also undergo secondary reactions. Experiments on a pyrolysis unit permitted to characterise the behaviour of oak sawdust throughout the process. The temperature field was thus obtained in an unsteady state. A good fitting is obtained between the experimental and numeric results.

Mots clés: Pyrolyse - Modélisation - Expérimentation - Bois - Biomasse.

1. INTRODUCTION

Les considérations environnementales liées à la production d'énergie, de plus en plus prises en compte depuis le traité de Kyoto, ainsi que la raréfaction des carburants fossiles permettent de prédire aux énergies renouvelables un développement rapide lors des prochaines années.

A ce titre, les procédés de conversion thermique de la biomasse - pyrolyse et gazéification notamment - constituent une alternative des plus intéressantes pour produire un gaz à partir de biomasse [1]. Ce dernier peut être utilisé dans de nombreux procédés de production d'énergie comme les chaudières, les turbines ou les moteurs de cogénération. Ces technologies présentent, outre leur caractère peu polluant en terme de NO_x , l'avantage de n'émettre aucune dioxine.

La modélisation de la pyrolyse, en tant que procédé complet ou étape de la gazéification, devient donc une nécessité pour le développement d'une technologie techniquement et économiquement viable [2]. Le dimensionnement et l'optimisation des installations influent en effet significativement sur leur rendement global.

De plus, les récents développements incluent l'utilisation de gaz de chauffage et des formes géométriques de plus en plus complexes. Les écoulements à l'intérieur des pyrolyseurs influent ainsi sur le procédé complet et se complexifient. C'est pourquoi, l'analyse unidimensionnelle de la plupart des modèles actuels devient limitée.

La présente étude a pour objectif de caractériser la pyrolyse. Pour cela, un modèle de pyrolyse bidimensionnel traite les transferts de chaleur et de matière grâce à une méthode nodale. Il inclut également un mécanisme chimique détaillé et une prise en compte des écoulements.

Un travail d'investigation expérimental a ensuite été réalisé sur une unité de pyrolyse. La comparaison des résultats ainsi obtenus avec ceux du modèle permettra de valider ce dernier.

* luc.gerun@emn.fr _ cathy.castelain@polytech.univ-nantes.fr

2. MODELISATION DE LA PYROLYSE

2.1 Structure du modèle

Le modèle est divisé en trois sous - modèles qui simulent chacun un aspect différent du process: le transfert de chaleur, la chimie de la pyrolyse et le transfert de masse pour la phase fluide. Les trois sont enchaînés selon la 'logique physique'. Le transfert de chaleur est le moteur du processus de pyrolyse, il entraîne les réactions chimiques de pyrolyse. Ces dernières produisent des gaz qui vont ensuite s'écouler dans le réacteur.

Le modèle de transferts thermiques repose sur la méthode numérique nodale. Cette méthode est largement utilisée dans les applications de transfert de chaleur en régime transitoire ou continu, notamment dans les milieux non homogènes [3-5]. Elle permet la construction de modèles de transfert thermique simples et elle est dans cette étude plus adaptée que la méthode des volumes finis ou des éléments finis.

La géométrie cylindrique du réacteur offre l'avantage de la symétrie. Ce volume est discrétisé en plusieurs éléments de volume, de forme annulaire. La figure 1 montre comment les éléments de volume sont assemblés pour modéliser le réacteur.

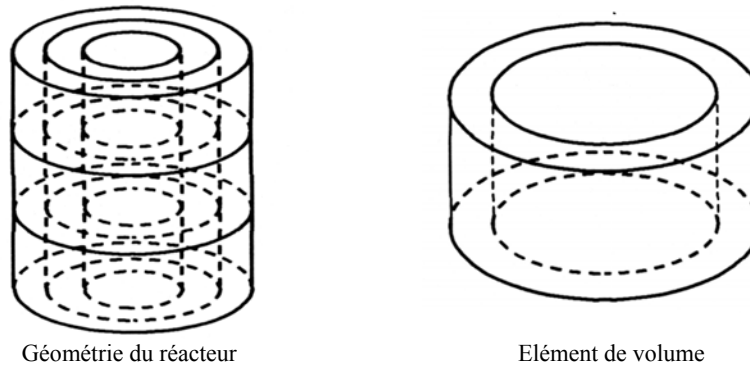


Fig. 1: Discretisation du réacteur

Une grille représente cette discrétisation présentée en figure 2. Chaque point de la grille représente un élément de volume du réacteur. Toutes les propriétés physiques et chimiques de cet élément sont considérées comme égales à celles du centre de la section axiale. De plus, par symétrie, seule la moitié de la section axiale du réacteur est simulée.

Pour simuler les interactions entre la zone de pyrolyse et les parois du réacteur, une distinction est faite entre bois pyrolysé (points blancs) et bois non pyrolysé (points noirs).

Les équations différentielles liées aux transferts de chaleur et de masse sont résolues analytiquement. De plus, l'algorithme utilise le cas échéant les valeurs du pas de temps précédent afin d'éliminer le besoin d'itérations. Des tests d'indépendance de la finesse de la discrétisation spatiale et temporelle ont été réalisés avec succès. Dans le cas présent, la distance optimale entre deux nœuds voisins est de l'ordre du millimètre, le pas de temps de la milliseconde.

2.2 Prédiction des transferts de chaleur

Le modèle de transfert de chaleur utilisé prend en compte deux champs de température distincts pour la phase solide et pour celle gazeuse.

Dans le bilan de l'énergie du lit de particules, les transferts par conduction et par rayonnement pour la phase solide sont couplés. La chaleur des réactions hétérogènes, ainsi que les échanges convectifs avec le fluide sont eux intégrés comme un terme source.

La phase fluide échange de la chaleur seulement par convection avec le solide, les transferts conductifs et radiatifs étant négligés.

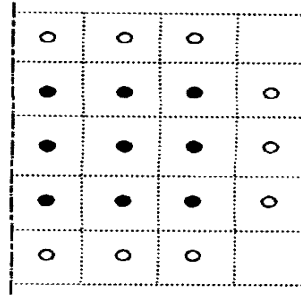


Fig. 2: Grille nodale

L'équation de transfert de chaleur pour un nœud i entouré par les nœuds j est donnée par [3]:

$$m_i C_{pi} \frac{dT_i}{dt} = \sum_j \Phi_{ij} + \sum_k \Phi_{ki} \quad (1)$$

Le terme Φ_{ij} représente le flux de chaleur échangé par le nœud i avec le nœud j et le terme Φ_{ki} représente les sources de chaleur dans le nœud i , soit la chaleur de réaction et le flux convectif solide - fluide. Les flux de chaleur échangés par deux nœuds voisins s'écrivent en fonction des températures des deux nœuds et de la caractéristique de transfert du matériel:

$$\Phi_{ij} = G_{ij} \cdot (T_i - T_j) \quad (2)$$

Le terme G_{ij} représente la conductance thermique entre les nœuds. Il est fonction de la géométrie du réacteur et des propriétés de transfert de chaleur du milieu poreux.

2.3 Modèle chimique de pyrolyse

La dégradation thermique de la biomasse est modélisée par sa décomposition en trois produits; gaz - regroupant le CO, le CO₂, le CH₄ et le H₂ - goudrons et coke - le résidu solide. Les goudrons subissent également des réactions secondaires produisant gaz et coke [2]. C'est la compétition entre ces réactions qui fixe l'équilibre final. Le mécanisme global est synthétisé par la figure 3.

Chaque taux de réaction, k_i , est calculé suivant l'équation modifiée d'Arrhenius. Une équation de conservation par espèce, comme l'équation 3 pour les goudrons, permet de calculer leur densité, ce qui influencera le transfert de masse entre les phases fluide et solide.

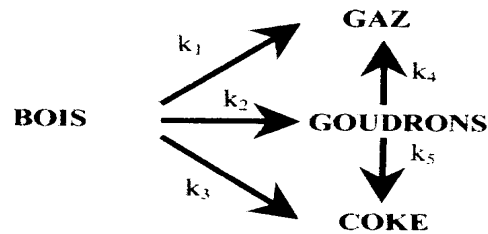


Fig. 3: Mécanisme chimique de la pyrolyse

$$\frac{d\rho_{\text{goudrons}}}{dt} = k_2 \cdot \rho_{\text{bois}} - (k_4 + k_5) \cdot \rho_{\text{goudrons}} \quad (3)$$

2.4 Modèle d'écoulement

En ce qui concerne le modèle de transfert de masse, il repose sur deux hypothèses simplificatrices: le fluide accumule dans un nœud, pendant le pas de temps, doit quitter le réacteur dans le même pas de temps ; le fluide ne peut pas s'écouler vers le bas du réacteur.

La loi de Darcy pour les milieux poreux est ensuite appliquée pour calculer les quantités de fluide qui circule entre les nœuds de la grille en fonction des écarts de pression entre eux. Cette simplification permet la séparation du processus de transfert de masse des deux autres processus, séparation nécessaire à cause de la grande différence entre les constantes de temps de l'écoulement du fluide par rapport au transfert de chaleur et la chimie.

Les travaux antérieurs sur ce modèle sont présentés en [6]. Les trois sous-modèles y sont détaillés et accompagnés par les équations différentielles afférentes.

3. MOYENS EXPERIMENTAUX

3.1 Matériau

Les expériences ont été conduites avec de la sciure de chêne de formule $\text{CH}_{1,51}\text{O}_{0,81}\text{N}_{0,046}$ calculée grâce à l'analyse élémentaire présentée dans le **Tableau 1**. Les échantillons de granulométrie comprise entre 800 et 900 μm ont été séchés dans une étuve à 110 °C. Ils ont été ensuite soumis à l'humidification jusqu'à saturation, puis remis en séchage à une température de 70 °C et pesé à intervalle régulier jusqu'à l'obtention de la teneur en eau désirée comprise entre 0 et 55 % base sèche.

Tableau 1: Analyse élémentaire des échantillons de sciure de chêne

Analyse élémentaire (% base sèche)	C	H	O	N	S
Chêne	45,18	5,7	48,87	0,22	0,00

3.2 Unité de pyrolyse

L'unité de pyrolyse, présentée en figure 4, est constituée d'un réacteur de pyrolyse cylindrique, d'une enceinte chauffante, d'un brûleur et d'une installation de traitement des gaz [3].

Les dimensions du réacteur sont les suivantes: diamètre intérieur 166 mm, hauteur 255 mm et épaisseur des parois 2 mm. Le chauffage de la paroi est assuré au moyen de résistances électriques de puissance totale 15 kW, fixées à la surface d'un matériau isolant réfractaire et placées tout autour du réacteur.

Un régulateur PID maintient la température de la paroi, mesurée par un thermocouple de type N, à la valeur de consigne désirée. Pour une estimation plus précise des températures atteintes dans le bois et dans les différentes zones du réacteur, deux sondes mobiles, sont placées afin de mesurer la température à différentes hauteurs. Chacune est équipée de deux thermocouples de type N. Elles ont été placées, l'une à 1 cm du centre du four et l'autre à 1,5 cm de la paroi. La température de travail maximale (T_1) est de 1000 °C.

Le réacteur a deux orifices situés en partie haute. Le premier orifice possède une vanne (V_1) et assure l'évacuation des gaz de pyrolyse lors de son ouverture, cette évacuation est causée par une augmentation de pression dans le réacteur par rapport à la pression atmosphérique. Ils sont ensuite brûlés avant d'être relâchés. Le deuxième orifice est relié à une soupape de sécurité (V_2) pour éviter tout risque de surpression importante.

Des échantillons de gaz sont également prélevés afin d'être analysés par chromatographie en phase gazeuse. Pour cela, un système de traitement permet d'épurer la phase gazeuse pour éviter la dégradation de l'appareil. Il se décompose en plusieurs parties. Les gaz condensables - principalement les goudrons - sont éliminés par barbotage dans un double bain d'eau. Ensuite un condenseur filtre les vapeurs d'eau présentes dans le gaz par refroidissement. Enfin un filtre à particule élimine la fraction solide résiduelle. Les gaz sortant du dispositif sont aspirés par un

compresseur pour être stocké dans un sac plastique, le reste est dirigé vers un brûleur permettant de mesurer le temps de pyrolyse.

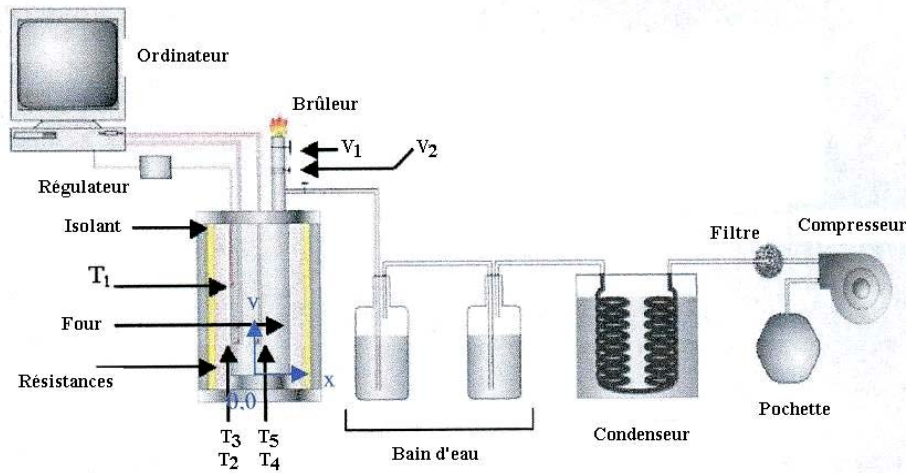


Fig. 4: Unité de pyrolyse

4. RESULTATS ET DISCUSSION

Le modèle présenté à la partie 2 a été utilisé pour la simulation d'un processus de pyrolyse ayant lieu dans l'installation décrite précédemment (Fig. 4). La vitesse de montée en température est de 12 °C par minute. Jusqu'à 600 °C où elle reste constante.

Les caractéristiques du bois utilisé dans le modèle sont celles annoncées dans le paragraphe précédent et l'humidité est de 15 %.

Les points de mesure dans l'installation se trouvent dans les endroits suivants.

Tableau 2: Emplacement des points de mesure

	T ₂	T ₃	T ₄	T ₅
Rayon (mm)	10	10	70	70
Hauteur (mm)	125	125	150	150

Du fait que le modèle ne prend pas en compte le rétrécissement du lit de biomasse, les points de mesure situés en haut du réacteur et qui ne sont donc plus dans le lit à la fin de l'expérience ne peuvent pas être utilisés pour la comparaison avec les résultats du modèle. Seules les températures T₂ et T₄ seront finalement comparées.

La figure 5 présente la comparaison entre les mesures expérimentales dans les endroits T₂ et T₄ avec leurs correspondantes fournies par le modèle. On peut observer que les données du modèle sont proches des données expérimentales. Il faut néanmoins préciser que le modèle ne prend pas en compte l'influence de l'humidité de la biomasse pyrolysée, ce qui explique l'erreur relative importante (Fig. 6) dans les premières 1500 secondes de simulation - phase de séchage ($T \leq 100^\circ\text{C}$). Après cette zone, l'erreur relative est inférieure à 20 %, ce qui est satisfaisant pour valider le modèle sur le plan des transferts thermiques.

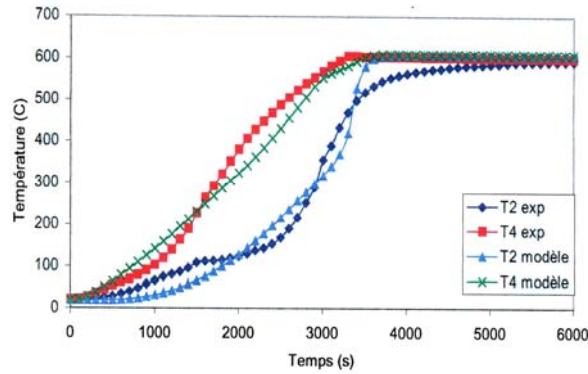


Fig. 5: Comparaison entre les valeurs expérimentales et celles prédites par le modèle

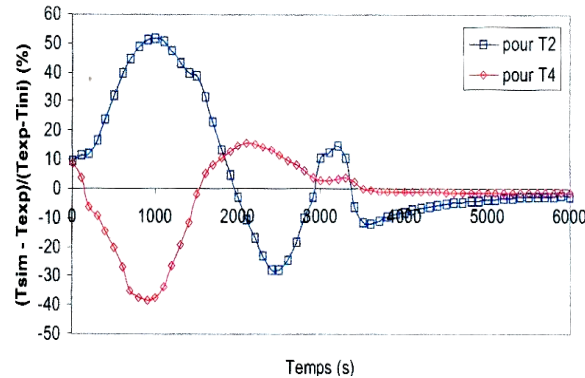


Fig. 5: Erreur relative

5. CONCLUSION

En conclusion, malgré la phase de séchage qui est ignorée par le modèle et où par conséquent les erreurs sont assez importantes, la modélisation par la méthode nodale du processus transitoire de pyrolyse de la biomasse est un succès. La validation sur les gaz produits doit maintenant être entreprise. Dans les futurs développements, le modèle devra être également capable de considérer le rétrécissement du lit et de prendre en compte la phase de séchage de la biomasse.

REFERENCES

- [1] P. Mc Kendry, 'Energy Production from Biomass (Part 3): Gasification Technologies', Bioresource Technology, N° 83, N°1, pp. 55 – 63, 2002.
- [2] P. Mousques, 'Modélisation du Couplage Réactions Chimiques - Transferts de Chaleur / Matière en vue du Dimensionnement des Réacteurs de Pyrolyse', Doctorat, Université de Perpignan, 2001.
- [3] J.B. Saulnier et A. Alexandre, 'La Modélisation Thermique par la Méthode Nodale, ses Succès et ses Limites', Revue Générale de Thermique, N° 280, pp. 363 – 372, 1985.
- [4] P. Lagnotte, Y. Bertin et J.B. Saulnier, 'Analyse de la Qualité de Modèles Nodaux Réduits à l'Aide de la Méthode des Quadripôles', International Journal of Thermal Sciences, Vol. 38, pp. 51 – 65, 1999.
- [5] J. Bellettre, V. Sartre, F. Biaist and A. Lallemand, 'Transient State Study of Electric Motor Heating and Phase Change Solid-Liquid Cooling', Applied Thermal Engineering, Vol. 17, N°, pp. 17 – 31, 1999.
- [6] R.A. Vîjeu, J. Bellettre and M. Tazerout, 'Nodal Modelling of Biomass Thermochemical Decomposition', SIMS'04, pp. 129 – 135, Copenhagen, Denmark, 23 - 24 Septembre 2004.