



HAL
open science

Étude et modélisation de la pyrolyse du charbon en four tournant

Étienne Lebas

► **To cite this version:**

Étienne Lebas. Étude et modélisation de la pyrolyse du charbon en four tournant. Alimentation et Nutrition. Institut National Polytechnique de Lorraine, 1995. Français. NNT : 1995INPL143N . tel-01751226

HAL Id: tel-01751226

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01751226>

Submitted on 29 Mar 2018

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.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

**ETUDE ET MODELISATION DE LA PYROLYSE
DU CHARBON EN FOUR TOURNANT**

THESE

présentée devant l'Institut National Polytechnique de Lorraine
pour l'obtention du titre de

Docteur de l'INPL

(Génie des Procédés - Science et Génie des Matériaux)

par

Etienne LEBAS

soutenue le 23 Novembre 1995 devant la commission d'examen

JURY

**Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois**

Monsieur G. FLAMAND

Monsieur G. MARTIN

Rapporteurs

Monsieur A. SIMON

Monsieur D. ABLITZER

Monsieur J.L. HOUZELLOT

Monsieur F. HANROT

Monsieur D. GREFF

Examineurs



D 136 001479 3

1995

**ETUDE ET MODELISATION DE LA PYROLYSE
DU CHARBON EN FOUR TOURNANT**

(M) 1995 LEBAS, E.

THESE

présentée devant l'Institut National Polytechnique de Lorraine
pour l'obtention du titre de

Docteur de l'INPL

(Génie des Procédés - Science et Génie des Matériaux)

par

Etienne LEBAS

soutenue le 23 Novembre 1995 devant la commission d'examen

JURY

*Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois*

Monsieur G. FLAMAND
Monsieur G. MARTIN

Rapporteurs

Monsieur A. SIMON
Monsieur D. ABLITZER
Monsieur J.L. HOUZELOT
Monsieur F. HANROT
Monsieur D. GREFF

Examineurs

1995

*à Anne,
à ma famille.*

Remerciements

Ce travail est issu d'une étroite collaboration entre le Laboratoire des Sciences du Génie Chimique de l'ENSIC et le Laboratoire de Science et Génie des Matériaux Métalliques de l'Ecole des Mines de Nancy sur le thème du Génie des Procédés d'Elaboration des Matériaux. J'adresse donc en premier lieu mes remerciements à Messieurs D. Tondeur, directeur du LSGC, et A. Simon, directeur du LSG2M, pour m'avoir accueilli dans leurs laboratoires.

Monsieur G. Flamand, directeur de recherche du CNRS, Monsieur A. Zoulalian, Professeur à l'Université Nancy I Henri Poincaré, et Monsieur G. Martin, chef de projet de l'Institut Français du Pétrole, m'ont fait un grand honneur en acceptant de consacrer une partie importante de leur temps à l'examen de ce mémoire et d'en être les rapporteurs, qu'ils en soient ici sincèrement remerciés.

Je suis particulièrement reconnaissant envers mes directeurs de thèse, Messieurs les Professeurs J-L Houzelot et D. Ablitzer, pour la confiance qu'ils m'ont témoigné en m'acceptant dans leur équipe de recherche et pour m'avoir fait profiter de leur expérience et de leur compétence tout au long de cette étude. Je leur adresse mes plus vifs remerciements.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à F. Hanrot, ingénieur du Centre de Pyrolyse de Marienau, qui a été durant ses trois années un interlocuteur privilégié. Je le remercie pour ses conseils, son soutien et son amitié.

Cette étude a bénéficié du soutien financier du Centre de Pyrolyse de Marienau. J'adresse mes remerciements à Monsieur D. Ysler, actuel directeur de ce centre, et à Monsieur D. Vogt, directeur-adjoint, pour avoir suivi avec intérêt ces travaux. Je tiens aussi à remercier Monsieur E. Yax, ancien directeur du CPM, pour l'intérêt qu'il a porté à cette étude et ses conseils avisés.

Je remercie vivement Messieurs Uettwiller et Greffe, ingénieurs à la cokerie de Carling, qui ont suivi cette étude, ainsi que Monsieur Dawid, chef de fabrication au four tournant, et Monsieur Segura, responsable études et essais, avec qui j'ai eu des discussions très enrichissantes.

Mon travail à l'Ecole des Mines a été grandement facilité par la compétence et la disponibilité de J.P. Buren et A. Huguin, qu'ils soient assurés de ma reconnaissance et de mon amitié.

Les collaborations extérieures ont été nombreuses durant cette thèse, c'est pourquoi j'associe également à ces remerciements les personnes rencontrées au LTCA, au DCPR, au laboratoire Gestion des Risques et Environnement de Mulhouse et au CORIA de Rouen.

Enfin, je remercie tous mes amis du LSGC et du LSG2M pour leur aide, leur soutien et leur bonne humeur.

Table des matières

Chapitre I : Introduction	1
I.1 La pyrolyse du charbon en four tournant	1
I.1.1 Historique du procédé	1
I.1.2 Description de l'installation industrielle.....	1
I.2 But et intérêt de l'étude	2
I.3 Phénomènes mis en jeu.....	3
I.4 Modélisation.....	5
Chapitre II : Pyrolyse du charbon	7
II.1 Transformations physico-chimiques	7
II.1.1 Formation des produits de la pyrolyse.....	7
II.1.2 Phénomènes limitants	9
II.2 Propriétés thermophysiques du semi-coke	10
II.2.1 Chaleur spécifique	10
II.2.2 Conductivité thermique.....	11
II.2.3 Masse volumique	12
II.3 Cinétique de séchage.....	13
II.4 Cinétique de dévolatilisation	14
II.4.1 Etude expérimentale	15
II.4.2 Paramètres cinétiques.....	16
II.4.3 Influence de la vitesse de chauffe.....	17
II.5 Enthalpie de réaction de la pyrolyse	19
II.5.1 Principe de la mesure.....	20
II.5.2 Résultats et discussion	21
II.6 Modèle de grain	22
II.6.1 Principe du calcul	22
II.6.1 Hypothèses	23
II.6.3 Résultats	23
II.6.3.1 Profil thermique et taux de conversion.....	23
II.6.3.2 Etude de sensibilité.....	25

II.6.3.3 Validation du modèle.....	26
II.7 Conclusion	27
Chapitre III : Mouvement de la charge en four tournant	29
III.1 Etude bibliographique.....	29
III.1.1 Mouvement d'un grain au sein de la charge.....	29
III.1.2 Temps de séjour moyen.....	30
III.1.3 Profil de chargement	32
III.1.4 Temps de séjour moyen en surface du talus	32
III.2 Etude expérimentale en four pilote.....	33
III.2.1 Dispositif expérimental et méthodes de mesure	33
III.2.1.1 Le four tournant	33
III.2.1.2 Mesure du temps de séjour	35
III.2.1.3 Mesure du profil de chargement	36
III.2.1.4 Etude du mouvement d'une particule au sein de la charge.....	36
III.2.2 Résultats	37
III.2.2.1 Influence du taux de remplissage (uniforme le long du four) sur le temps de séjour moyen	37
III.2.2.2 Temps de séjour moyen et profil de chargement pour un taux de remplissage non uniforme le long du four.....	38
III.2.2.3 Distribution des temps de séjour.....	43
III.2.2.4 Fraction du temps de séjour passée en surface du lit	44
III.2.2.5 Comparaison des résultats obtenus avec le charbon et le coke	46
III.3 Application au four tournant industriel.....	47
III.3.1 Modélisation.....	47
III.3.2 Validation du modèle	49
III.4 Conclusion.....	50
Chapitre IV : Transferts de chaleur	51
IV.1 Phénomènes de rayonnement à l'intérieur du four	52
IV.1.1 Propriétés radiatives du gaz, du solide et de la paroi	52
IV.1.1.1 Emissivité et absorptivité du gaz	52
IV.1.1.2 Emissivité du solide et de la paroi	53
IV.1.2 Modèle de rayonnement en four tournant	54

IV.2 Phénomènes de convection à l'intérieur du four	56
IV.2.1 Convection gaz/paroi.....	56
IV.2.2 Convection gaz/solide	56
IV.3 Conduction paroi couverte/solide.....	57
IV.4 Pertes thermiques.....	59
IV.4.1 Rayonnement paroi/air ambiant.....	59
IV.4.2 Convection paroi/air ambiant.....	60
IV.4.2.1 Calcul théorique du coefficient de transfert	60
IV.4.2.2 Mesure du coefficient de transfert	60
IV.5 Transfert de chaleur dans la paroi	61
IV.5.1 Propriétés thermophysiques du béton réfractaire.....	61
IV.5.2 Calcul du profil thermique dans la paroi.....	65
IV.6 Conclusion.....	67
Chapitre V : Phénomènes de combustion.....	69
V.1 Combustion des matières volatiles	69
V.1.1 Situation du problème.....	69
V.1.2 Combustion / craquage des goudrons.....	71
V.1.3 Combustion des gaz légers.....	72
V.1.3.1 Résultats obtenus avec le logiciel Chemkin	73
V.1.3.2 Optimisation des paramètres du modèle cinétique.....	76
V.1.4 Simulation de la combustion des MV dans le four tournant	78
V.2 Combustion du coke	84
V.2.1 Combustion des grains en surface du lit.....	84
V.2.1.1 Mise en évidence du phénomène	84
V.2.1.2 Modélisation.....	84
V.2.2 Combustion des poussières	86
V.3 Conclusion.....	87
Chapitre VI : Modèle de four tournant	89
VI.1 Principe de la modélisation et hypothèses	89
VI.1.1 Discrétisation du four en "tranches"	89
VI.1.2 Hypothèse du "grain-témoin"	90
VI.2 Déroulement du calcul.....	92

VIII

VI.2.1 Profil de chargement	92
VI.2.2 Grain en surface du lit	92
VI.2.3 Grain contre la paroi.....	93
VI.2.4 Fin du calcul dans la paroi.....	94
VI.2.5 Grain à l'intérieur du lit	95
VI.2.6 Bilan matière dans le gaz.....	95
VI.2.7 Bilan thermique dans le gaz.....	96
VI.2.8 Simulation de l'extinction	97
VI.3 Etude de sensibilité.....	98
VI.3.1 Influence des paramètres de discrétisation	98
VI.3.2 Influence des paramètres liés aux transferts thermiques	100
VI.4 Validation du modèle.....	102
VI.4.1 Mesures effectuées sur le four tournant industriel	102
VI.4.1.1 Techniques utilisées	102
• Température de la charge.....	102
• Température des fumées	102
• Prélèvements de solide.....	103
• Prélèvements de gaz.....	103
VI.4.1.2 Résultats	105
• Températures charge et fumées	105
• Température de la paroi extérieure.....	106
• Analyse des prélèvements de charbon et de semi-coke.....	107
• Analyse des prélèvements de gaz	108
• Mesure du débit de fumées sortant du four.....	109
• Mesure du débit de refus du charbon.....	109
VI.4.2 Comparaison des résultats du modèle avec les mesures	109
VI.4.2.1 Profils thermiques	109
VI.4.2.2 Taux de conversion	111
VI.4.2.3 Composition du gaz	111
VI.5 Conclusion.....	112
Chapitre VII : Exploitation du modèle.....	113
VII.1 Simulation du four tournant en marche normale	113
VII.1.1 Bilan matière.....	113
VII.1.2 Bilan thermique	114
VII.1.3 Transferts de chaleur.....	115

VII.2 Influence des paramètres de contrôle du four.....	118
VII.2.1 Vitesse de rotation.....	118
VII.2.2 Débit d'air	120
VII.2.3 Débit d'eau.....	122
VII.3 Déplacement de la zone d'extinction.....	124
VII.3.1 Comparaison avec la situation précédente	124
VII.3.2 Influence du débit d'eau	126
VII.4 Conclusion	128
Chapitre VIII : Conclusions et perspectives.....	129
Références bibliographiques	133

ANNEXES

Annexe I Mesure de la cinétique de dévolatilisation du charbon	141
AI.1 Dispositif expérimental et principe de la mesure.....	141
AI.2 Résultats.....	143
Annexe II Mesure de l'enthalpie de réaction de la pyrolyse du charbon	147
AII.1 Principe de la mesure	147
AII.2 Dispositif expérimental	147
AII.3 Résultats.....	148
Annexe III Résultats de l'étude expérimentale du mouvement de la charge en four tournant	153
AIII.1 Courbes de distribution des temps de séjour.....	153
AIII.1.1 Influence du taux de remplissage	153
AIII.1.2 Influence de la vitesse de rotation	155
AIII.2 Profils de chargement.....	157
AIII.2.1 Alimentation par débordement.....	157
AIII.2.2 Alimentation sans débordement	158
AIII.3 Etude du mouvement d'un grain au sein de la charge.....	159
AIII.3.1 Taux de remplissage uniforme dans le four (23 %)	159
AIII.3.2 Taux de remplissage non-uniforme dans le four.....	159

Annexe IV Mise en équation du modèle de grain.....	165
AIV.1 Cinétique des réactions de pyrolyse :	166
AIV.2 Terme source :	167
AIV.2.1 Chaleur consommée par le séchage :.....	167
AIV.2.2 Chaleur consommée par les réactions de pyrolyse :.....	167
AIV.2.3 Chaleur perdue par échange avec les matières volatiles :.....	168
AIV.2.4 Chaleur apportée par la combustion du grain :	168
AIV.2.5 Chaleur cédée lors de l'extinction :	169
AIV.3 Bilan thermique sur le volume v_i (i compris entre 2 et N-1)	169
AIV.4 Bilan thermique sur le volume v_N	171
1er cas : grain sur le talus	171
2e cas : grain contre la paroi.....	172
3e cas : grain au coeur de la charge	173
AIV.5 Bilan thermique sur le volume v_1	173
AIV.6 Résolution.....	173
Annexe V Mise en équation du modèle de transfert thermique dans la paroi.....	175
AV.1 Bilan thermique sur le volume v_i (i compris entre 2 et N_p-1)	176
AV.2 Bilan thermique sur le volume v_{N_p}	177
AV.3 Bilan thermique sur le volume v_1	178
1er cas : l'élément de paroi considéré est au contact de la charge.....	178
2e cas : l'élément de paroi considéré est au contact du gaz.....	179
AV.4 Résolution.....	180
Annexe VI Simulation de la combustion simultanée du méthane et de l'hydrogène en réacteur parfaitement agité	183
Annexe VII Données du modèle de four tournant	185
Annexe VIII Caractéristiques du charbon La Houve	189

Liste des symboles

A	surface d'échange	m ² /m
A _s	surface du talus	m ²
C _p	chaleur spécifique	J/kg/K
D	diamètre intérieur du four	m
\mathcal{D}	diffusivité matérielle moléculaire	m ² /s
D _{app}	diamètre apparent d'un grain	m
D _p	diamètre d'un grain	m
E	énergie d'activation	kJ/mol
e	constante dans la formule III.6	-
f	débit molaire des matières volatiles	mol/s
F	débit molaire des gaz	mol/s
g	débit molaire des produits de craquage des goudrons	mol/s
Gr	nombre de Grashoff	-
h	coefficient d'échange de chaleur	W/m ² /K
H	hauteur de la charge au milieu du talus	m
K	constante dans les formules III.1 et III.6	-
k	constante cinétique	s ⁻¹
k _o	facteur de fréquence	s ⁻¹
k _D	coefficient de transfert de matière	m/s
l	largeur du talus	m
L	longueur du four	m
L _m	longueur de libre parcours moyen	m
n	vitesse de rotation du four	tr/min
N	nombre de mailles dans le grain	-
N _θ	nombre de secteurs pour la discrétisation de la paroi	-
N _p	nombre de mailles dans l'épaisseur de la paroi	-
Nu	nombre de Nusselt	-
Pe	nombre de Peclet	-
Pr	nombre de Prandlt	-
Q	flux de chaleur	W/m
Q _e	débit d'eau d'extinction	m ³ .h ⁻¹
Q _v	débit volumique de charbon dans le four	m ³ .h ⁻¹
Q _s	débit massique de charbon dans le four	kg.h ⁻¹
r	rayon dans la paroi du four	m

r	vitesse de réaction	$\text{mol/m}^3/\text{s}$
R	constante des gaz parfaits	J/mol/K
Re	nombre de Reynolds	-
Ra	nombre de Rayleigh	-
R_{pe}	rayon de la paroi extérieure du four tournant	m
R_{pi}	rayon de la paroi intérieure du four tournant	m
s_{app}	surface couverte par un grain dans une section transversale de la charge	m^2
S	surface d'une section transversale de la charge	m^2
Sc	nombre de Schmidt	-
Sh	nombre de Sherwood	-
T	température	K
u	vitesse de progression axiale d'un grain le long du four	m.s^{-1}
v	vitesse vraie d'un grain sur le talus	m.s^{-1}
x	distance le long de l'axe du four depuis l'entrée	m
X	avancement généralisé	-
	taux de conversion	-
Z	taux de remplissage	-
α	diffusivité thermique	-
β	angle de repos dynamique du charbon	rad
ϵ	émissivité	-
ΔH_p	enthalpie de réaction de la pyrolyse du charbon	J/kg
ΔH_c	enthalpie de réaction du craquage des goudrons	J/mol
ΔL	largeur d'une portion du four tournant	m
Δt	pas de temps dans le modèle de grain	s
ΔT_p	précision du calcul de la température dans la paroi	K
κ	coefficient correctif de la combustion du coke	-
λ	conductivité thermique	W/m/K
ρ	masse volumique apparente	kg.m^{-3}
ρ_v	masse volumique en vrac	kg.m^{-3}
θ_1	angle d'inclinaison du four par rapport à l'horizontale	rad
θ_2	angle d'inclinaison du lit par rapport à l'axe du four	rad
θ	angle d'inclinaison du lit par rapport à l'horizontale = $\theta_1 + \theta_2$	rad
σ	constante de Stephan-Boltzmann	$\text{W/m}^2/\text{K}^4$
τ	temps de séjour moyen de la charge	min
τ_f	temps de séjour moyen sur le talus	min
τ_p	temps de séjour moyen contre la paroi	min
ω	angle de remplissage	rad

Indices

a	air ambiant
cgp	convection gaz/paroi interne
cgs	convection gaz/solide
cpa	convection paroi externe/air ambiant
cps	conduction paroi interne/solide
f	four
g	gaz
rgp	rayonnement gaz/paroi interne
rgs	rayonnement gaz/solide
rpa	rayonnement paroi externe/air ambiant
rps	rayonnement paroi interne/solide
p	paroi
pi	paroi interne
pe	paroi externe
s	solide

Addendum

Conductivité thermique du semicoke (complément au § II.2.2)

Les valeurs de la conductivité thermique du charbon en cours de pyrolyse utilisées dans le modèle de four tournant sont issues de la littérature (Badzioch [13]). Ces valeurs ont pu être confirmées par des mesures effectuées au LSG2M sur du charbon La Houve.

La diffusivité thermique (α) du semicoke est mesurée par la méthode "laser flash" (cf. § IV.5.1). Les valeurs de la masse volumique (ρ) et de la chaleur spécifique (C_p) aux températures considérées proviennent de mesures expérimentales (cf. § II.2). La conductivité thermique (λ) du semicoke est donnée par : $\lambda = \alpha \rho C_p$.

Température (°C)	ρ (kg/m ³)	C_p (J/kg/K)	α (mm ² /s)	λ (W/m/K)
20	1250	1012	0,146	0,185
600	901	1933	0,30	0,522
700	827	1862	0,50	0,770
800	814	1851	0,65	0,979

Tableau A1 : Mesures expérimentales de la diffusivité du semicoke et calcul de la conductivité thermique

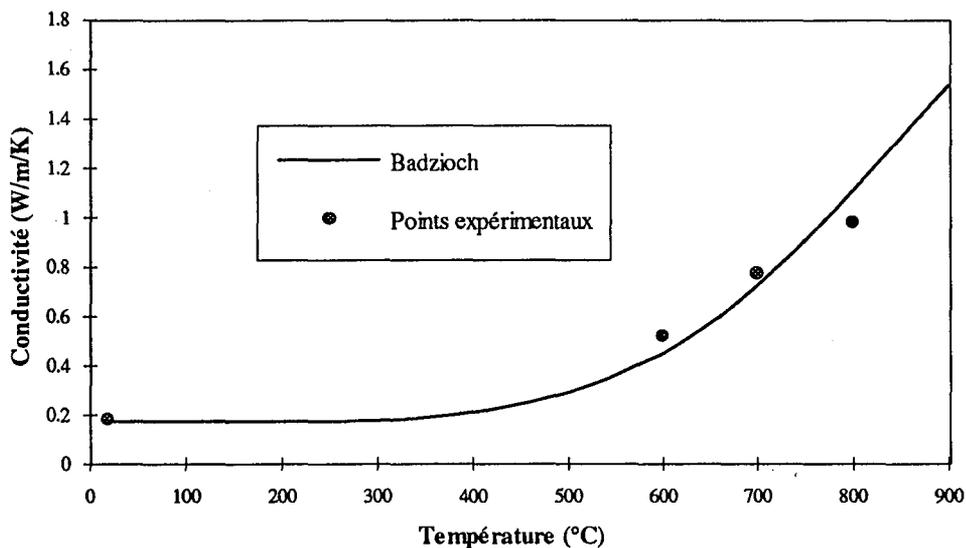


Figure A1 : Conductivité thermique du semicoke

Chapitre I

Introduction

I.1 La pyrolyse du charbon en four tournant

I.1.1 Historique du procédé

Les Houillères du Bassin de Lorraine ont été amenées vers 1965 à s'intéresser au marché des cokes de réduction pour l'électrometallurgie [1]. Cette industrie recherche des produits carbonés à forte réactivité et forte résistivité pour la production de ferro-alliages par carbothermie. Le produit idéal est pour cela le charbon de bois qui se différencie d'un coke sidérurgique classique par une porosité et une réactivité nettement plus élevées. Cependant son coût et sa rareté ont conduit à la recherche d'un substitut aux propriétés comparables. Les charbons lorrains à forte teneur en matières volatiles (supérieure à 35%) semblent alors particulièrement adaptés à la fabrication de cokes réactifs.

La production a tout d'abord débuté en four à coke classique, mais la granulométrie demandée (2 à 20 mm) nécessitait un broyage qui entraînait une production importante de poussier. La technique du four tournant a donc été envisagée car elle permet de traiter directement des grains et de conserver leur granulométrie. De plus, la pyrolyse s'effectue ainsi plus rapidement (2 heures au lieu de 10 à 15 heures en four classique) ce qui favorise l'apparition d'une plus grande porosité. Après une étude sur pilote en 1969 à la Station Expérimentale de Marienau (capacité de 200 kg/h), une unité semi-industrielle a été mise en route en 1972 avec un débit de charbon de 9 t/h. L'installation industrielle actuelle, qui fait l'objet de cette étude, a été construite en 1975. Elle est située sur le site de la cokerie de Carling et a une capacité de traitement de 20 à 24 t/h de charbon.

I.1.2 Description de l'installation industrielle

L'installation (figure I.1) se compose de trois parties principales : le four tournant où s'effectue la pyrolyse, les chambres de post-combustion destinées à brûler les gaz résiduels issus du four et une chaudière produisant de la vapeur.

Le four est constitué d'un corps cylindrique métallique de 3,2 m de diamètre extérieur et de 56 m de longueur, garni intérieurement de 20 cm de béton réfractaire. Il est incliné par

rapport à l'horizontale d'une pente de 4%. Un moteur à courant continu assure l'entraînement en rotation avec une vitesse pouvant varier de 0,1 à 1,5 tour par minute.

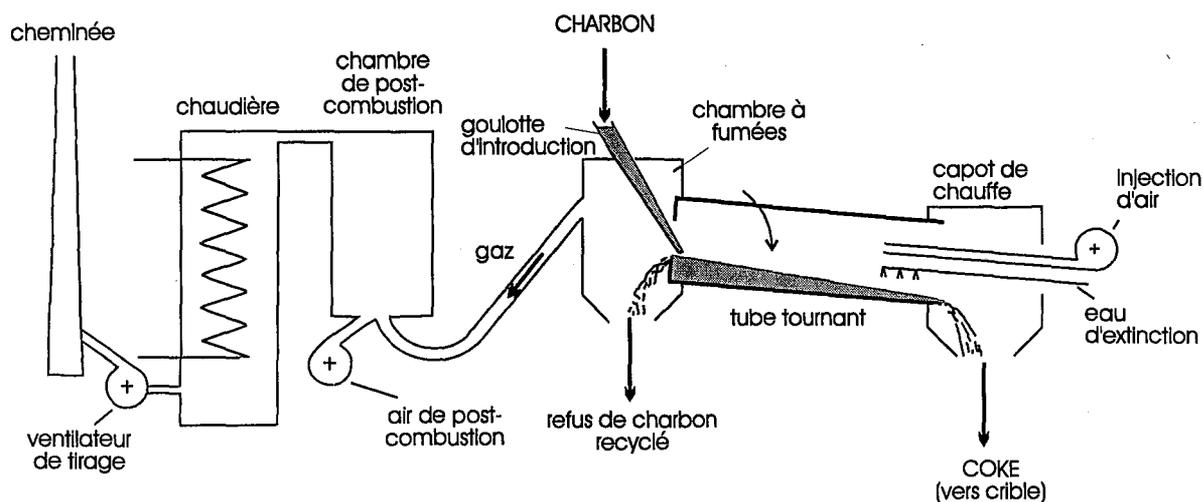


Figure I.1 : Schéma de l'installation industrielle - Cokerie de Carling

Les grains de charbon sont introduits par l'extrémité supérieure du four et progressent sous l'action combinée de la pente et de la rotation. A la sortie du four (côté coke) sont introduits l'air nécessaire à la combustion des matières volatiles et l'eau d'extinction. Ce procédé fonctionne en continu, les réactions de combustion fournissant l'énergie nécessaire à la pyrolyse du charbon. Le démarrage de l'installation s'effectue grâce à l'introduction de gaz de cokerie côté coke.

Les gaz résiduels sont dirigés vers les chambres de post-combustion où un ventilateur apporte l'air nécessaire à la combustion. Les fumées chaudes sont dirigées vers une chaudière de récupération. Celle-ci se compose d'échangeurs de chaleur permettant la production de vapeur surchauffée (35 bars, 340°C).

I.2 But et intérêt de l'étude

La conduite actuelle du four tournant repose avant tout sur un savoir-faire empirique. Il n'a été effectué aucune simulation de la marche du four avant sa construction, qui a été essentiellement basée sur l'expérience acquise sur les fours tournants utilisés en cimenterie. Etant donnée la complexité des phénomènes mis en jeu dans ce procédé, il n'est pas certain que les conditions de marche actuelles du four soient optimales.

Une étude approfondie des phénomènes impliqués doit permettre de mieux comprendre le fonctionnement actuel du four. L'élaboration d'un modèle mathématique poursuit plusieurs objectifs. D'une part, les simulations permettent d'étudier l'influence de divers paramètres et peuvent ainsi constituer une aide à la conduite du four. D'autre part, une

augmentation du rendement pourra être étudiée ainsi que l'augmentation du débit de l'installation.

Cette étude est la deuxième thèse sur ce sujet, la première ayant été réalisée par F. Hanrot de 1988 à 1991 [2]. En conclusion de cette précédente étude, plusieurs thèmes méritaient d'être particulièrement approfondis :

- le mouvement de la charge et en particulier le temps de séjour et le profil de chargement du four tournant

- la cinétique et l'enthalpie de réaction de la pyrolyse
- le transfert de chaleur par rayonnement de la paroi vers la charge
- la cinétique de combustion des matières volatiles dans le four.

En outre, le modèle élaboré par F. Hanrot n'avait pas pu être validé par des mesures sur site industriel. Un des objectifs de ce travail est donc également la réalisation de mesures fiables sur le four tournant de Carling (profils thermiques et composition du gaz) afin de valider la simulation de ce four.

I.3 Phénomènes mis en jeu

Les phénomènes à prendre en compte dans la modélisation de ce procédé sont multiples. Les grains de charbon, sous l'action de la chaleur, vont d'abord subir un séchage (figure I.2). La dévolatilisation (départ des matières volatiles) intervient à partir de 350°C. Les goudrons commencent à se dégager en premier, puis viennent CH_4 , H_2O , CO_2 , CO et enfin H_2 dont le dégagement se poursuit jusqu'à 850°C, température maximale atteinte par le solide (figure I.3). Compte tenu de l'apport d'air côté coke, la charge va subir un début de combustion en surface du lit. L'injection d'eau permet l'extinction du coke et une baisse de sa température jusqu'à environ 600°C.

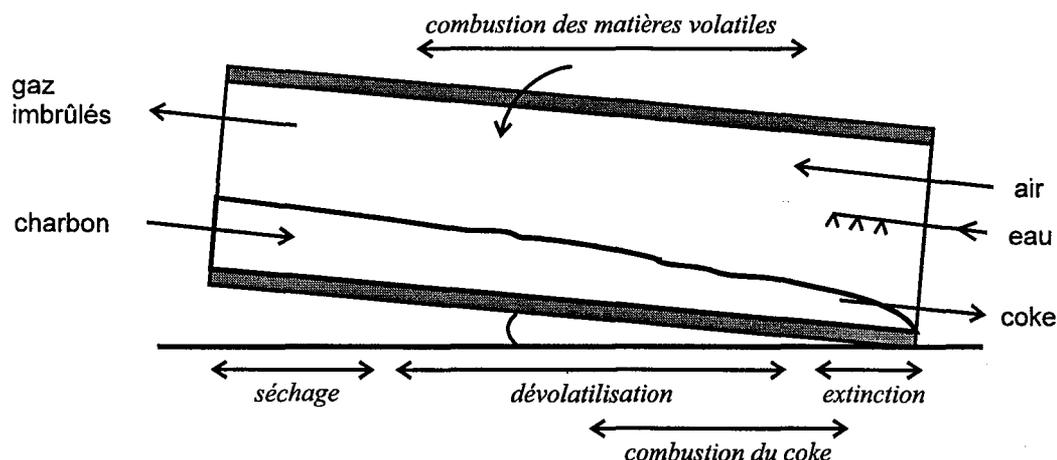


Figure I.2 : Schéma du four tournant

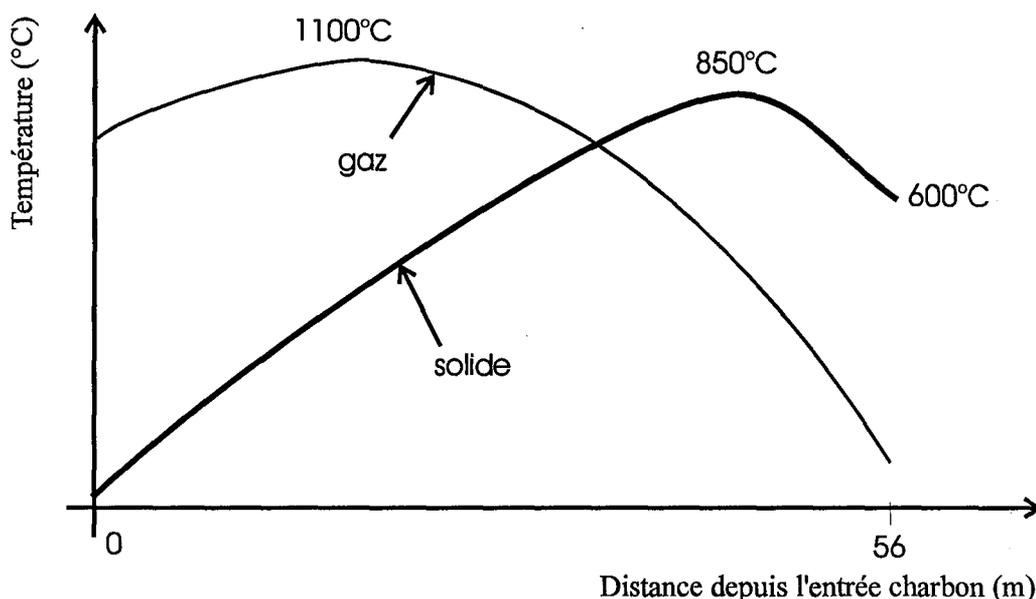


Figure I.3 : Allure des profils thermiques dans le four

L'air injecté à contre-courant du solide se mélange aux matières volatiles et permet leur combustion. Le gaz atteint ainsi une température d'environ 1100°C, puis, lorsque l'oxygène est totalement consommé, les gaz imbrûlés se refroidissent au contact du solide pour atteindre environ 900°C côté charbon.

Les phénomènes à prendre en compte peuvent être regroupés en quatre thèmes qui constitueront les quatre chapitres suivants de ce manuscrit :

- pyrolyse du charbon
- mouvement de la charge
- transferts de chaleur
- phénomènes de combustion.

La pyrolyse du charbon, quoique largement étudiée depuis de nombreuses années, n'a pas encore livré tous ses secrets. F. Hanrot a en effet mesuré pour la première fois la chaleur spécifique vraie d'un charbon en cours de pyrolyse [3]. De nouvelles expériences permettront la mesure de l'enthalpie de réaction de la pyrolyse dont la valeur reste énigmatique. La cinétique de dévolatilisation des matières volatiles fera également l'objet d'une étude expérimentale approfondie.

Le mouvement de la charge en four tournant est un problème qui concerne de nombreux procédés industriels. Une étude expérimentale sur le four pilote du Centre de Pyrolyse de Marienau fournira des données indispensables à une bonne prise en compte du déplacement des grains dans le four.

Les transferts de chaleur entre le gaz, le solide et la paroi conditionnent la vitesse de chauffe du grain. Il faudra en particulier prendre en compte l'absorption partielle du rayonnement entre la paroi et la surface du talus par le gaz qui s'interpose.

Les phénomènes de combustion concernent les matières volatiles, essentiellement des goudrons, du méthane et de l'hydrogène, dont les cinétiques de combustion doivent être étudiées. La combustion partielle du coke constitue également un phénomène important qui a des conséquences sur le rendement du procédé.

I.4 Modélisation

La démarche adoptée pour la modélisation de ce réacteur a consisté à simuler, dans un premier temps, la pyrolyse d'une particule isolée. Le modèle de grain qui a été développé tient compte de tous les phénomènes présents à l'échelle de la particule : transfert de chaleur, séchage, dévolatilisation, combustion partielle et extinction. Ce modèle a ensuite été inséré dans une représentation globale du four en tenant compte de l'hydrodynamique du réacteur, des réactions en phase gazeuse et des transferts de chaleur.

Le modèle mathématique de four tournant ainsi conçu permet l'obtention de résultats au niveau du grain tels que le gradient thermique et le taux de conversion, et sur l'ensemble du four tels que les flux de chaleur et les débits gazeux.

La validation de ce modèle nécessite des données sur le fonctionnement actuel du four. Grâce à une collaboration exemplaire de la part des exploitants du procédé industriel, des mesures sur site ont permis de franchir cette étape décisive. Des simulations visant à l'amélioration de ce procédé ont ainsi pu être effectuées et exploitées dans l'industrie.



Chapitre II

Pyrolyse du charbon

La pyrolyse du charbon est un sujet qui a occupé et occupe encore de nombreux chercheurs, comme en témoigne l'imposante bibliographie rédigée par Solomon [4]. Les résultats expérimentaux obtenus sont parfois très différents, et cela pour plusieurs raisons. Tout d'abord, la diversité des qualités de charbons, ainsi que la grande hétérogénéité de composition d'un charbon donné, ne facilite pas la reproductibilité des mesures. D'autre part, le dispositif expérimental peut varier et la vitesse de chauffe employée peut aller de quelques degrés par minute à plusieurs milliers de degrés par seconde. Enfin, la méthode employée pour déterminer la température du charbon en cours de pyrolyse peut également être la source de différences notables. La diversité des résultats de la littérature nous a conduit à effectuer plusieurs expériences dans le but de déterminer les données nécessaires à la modélisation de la pyrolyse du charbon.

Ce travail s'intéresse principalement à la pyrolyse lente, la vitesse de chauffe mesurée dans le four tournant industriel étant d'environ 9 degrés par minute. La taille des particules considérées est de l'ordre de 10 millimètres (de 4 à 20 mm de diamètre). Il s'agit, dans un premier temps, de déterminer les phénomènes limitants de la pyrolyse dans les conditions opératoires du four tournant. La cinétique de dévolatilisation et l'enthalpie de réaction, qui dépendent fortement de la nature du charbon, doivent faire l'objet d'études expérimentales. Toutes les mesures ont été effectuées avec le charbon La Houve (cf. annexe VIII) utilisé dans le four tournant de Carling ; c'est un "flambant sec" lorrain contenant 35% de matières volatiles.

II.1 Transformations physico-chimiques

II.1.1 Formation des produits de la pyrolyse

La décomposition thermique du charbon conduit à la formation de trois classes de produits : le coke, les goudrons et les gaz. Le coke est le résidu solide de cette transformation, plus riche en carbone que le charbon. Les goudrons et les gaz constituent les matières volatiles (MV) et représentent 4 à 45 % en masse selon le type de charbon.

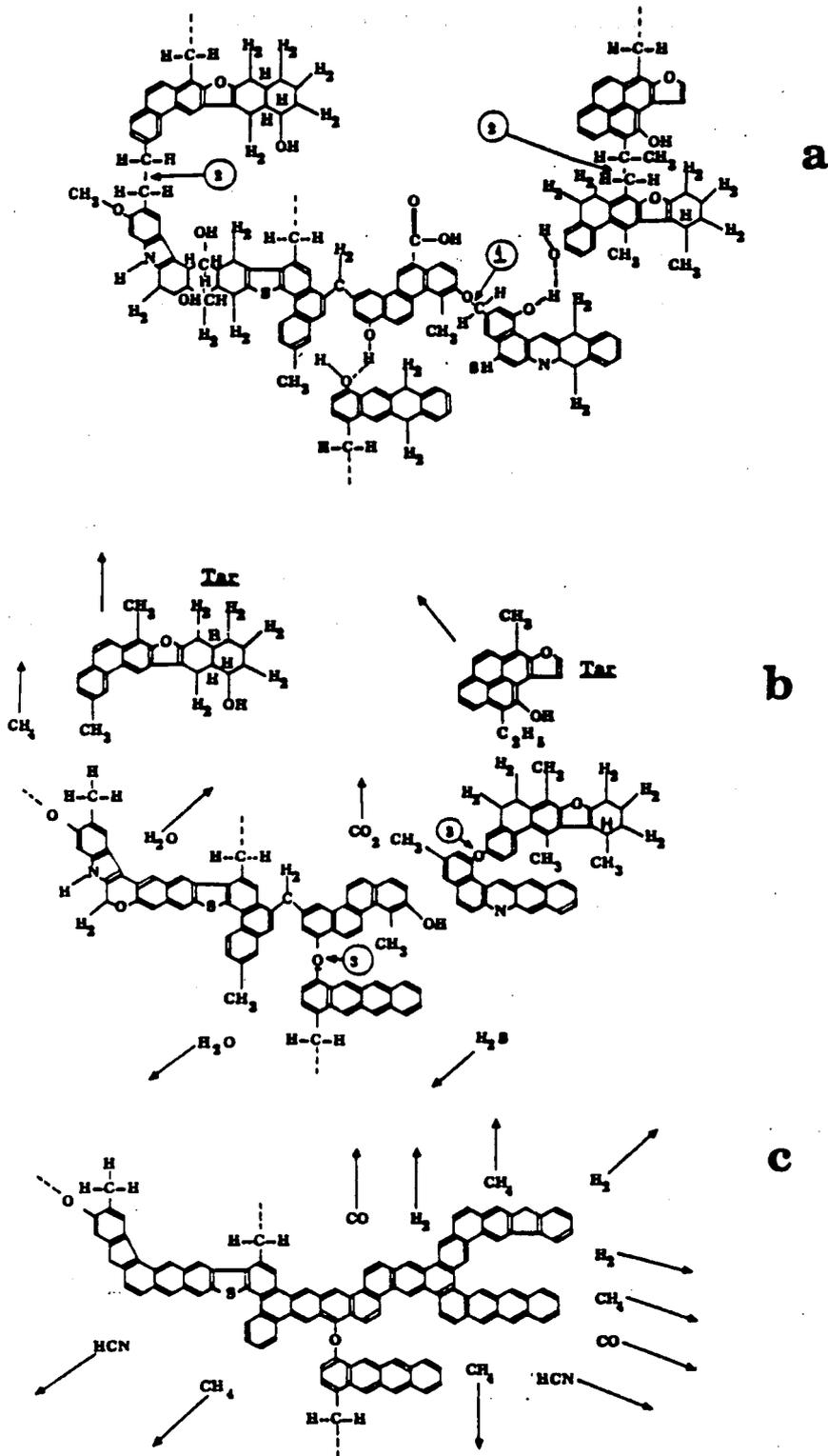


Figure II.1 : Evolution d'une structure moléculaire hypothétique du charbon au cours de la pyrolyse d'après Solomon [5]

La figure II.1 représente l'évolution d'une structure moléculaire hypothétique du charbon au cours de la pyrolyse [5] : (a) le charbon brut, (b) la formation des goudrons et des hydrocarbures légers, (c) la condensation. Lors d'une montée en température, les liaisons les plus faibles (numéros 1 et 2) se cassent à partir de 300-400°C, produisant des fragments moléculaires, on parle alors de dépolymérisation. Ces fragments constitueront un dégagement de goudrons s'ils sont assez petits pour être vaporisés et transportés hors du charbon. Simultanément, la décomposition de groupes fonctionnels conduit au dégagement de gaz légers, principalement CO₂, H₂O, CH₄ et des composés aliphatiques en C₂. La condensation, intervenant à partir de 550-600°C, est à l'origine des dégagements de CO et de H₂. Le monoxyde de carbone provient des liens éther alors que l'hydrogène est dû à la formation des cycles carbonés.

Les transformations physiques qui accompagnent cette dévolatilisation sont nombreuses. La dépolymérisation se traduit pour certains charbons par l'apparition d'une phase "plastique". La porosité du solide augmente au cours de la pyrolyse et il y a apparition de fissures. Certains charbons, dits "gonflants", augmentent fortement de volume. Cette propriété est mesurée par l'indice de gonflement, égal à 1 pour un charbon non gonflant.

II.1.2 Phénomènes limitants

Les phénomènes susceptibles d'avoir une influence sur le processus de pyrolyse d'un grain de charbon sont les suivants :

- le transfert de chaleur de l'environnement vers la surface du grain
- la conduction de la chaleur à l'intérieur de la particule
- la cinétique et la thermicité des réactions de dévolatilisation
- la cinétique et la thermicité du séchage
- le transport des matières volatiles vers l'extérieur du grain
- l'échange de chaleur entre le grain et les gaz qui s'en échappent (en raison du gradient thermique à l'intérieur de la particule, les gaz sont produits à une température inférieure à celle de la surface du grain)
- les réactions de craquage secondaires des matières volatiles lors de leur transport à l'intérieur de la particule (pour la même raison que précédemment)
- le gonflement et la fissuration du grain
- l'augmentation de la pression à l'intérieur du grain engendrée par la formation des gaz.

Le problème de l'augmentation de la pression interne lors de la pyrolyse d'un grain de charbon est largement développé dans la littérature [6,7,8]. Seules des pressions supérieures à 2 bars semblent avoir une influence significative sur la cinétique de dévolatilisation. D'après

les calculs de pression interne publiés, ce problème ne concernerait que les pyrolyses rapides (plus de 30 K/s).

L'influence du transport des matières volatiles dans la particule est également liée à la vitesse de montée en température. Pour des vitesses élevées, Howard et Essenhigh [9] considèrent ce phénomène comme limitant pour la dévolatilisation. Solomon [4] estime que, dans la plupart des cas, le seul effet lié aux transferts des MV est une modification du rendement en goudrons et en gaz. Les goudrons limités par la diffusion auraient en effet tendance à craquer pour donner des produits légers non limités par le transfert de matière. Les expériences réalisées par Hilaire [10] (grains de 20 mm de diamètre, environ 5 K/s) montrent effectivement que le dégagement gazeux cesse lorsque la température est uniforme dans la particule, ce qui signifie que la diffusion des matières volatiles ne limite pas le processus de pyrolyse.

Compte tenu de la taille des grains employés et de la vitesse de chauffe du four tournant, le transfert de chaleur et les cinétiques de séchage et de dévolatilisation permettent à eux seuls de représenter l'évolution de la pyrolyse dans ce procédé. Le coefficient de transfert de chaleur à la surface de la particule doit être déterminé en fonction des conditions environnantes. Il faut en particulier tenir compte de l'éventuelle création d'une fumée opaque qui diminuerait sensiblement le coefficient de transfert par rayonnement. La conduction de la chaleur dans le grain dépend des propriétés thermophysiques du semi-coke, conductivité thermique et chaleur spécifique, qui varient avec l'avancement de la réaction (cf. § II.2). Les cinétiques de séchage et de dévolatilisation peuvent être mesurées expérimentalement (cf. § II.3 et § II.4). Quant à la thermicité des réactions de la pyrolyse, elle peut être évaluée par calorimétrie (cf. § II.5).

II.2 Propriétés thermophysiques du semi-coke

La pyrolyse s'accompagne d'un changement de structure du charbon qui entraîne une évolution importante de la valeur de ses propriétés thermophysiques. La modélisation du transfert de chaleur en régime transitoire nécessite en particulier la connaissance de la chaleur spécifique, de la conductivité thermique et de la masse volumique.

II.2.1 Chaleur spécifique (C_p)

Les valeurs de chaleur spécifique rencontrées dans la littérature sont extrêmement variées comme en témoignent les études bibliographiques de Merrick [11,12] et Hanrot [2]. Outre la diversité des charbons, il faut souligner ici la difficulté d'une mesure directe de la chaleur spécifique du semi-coke par calorimétrie. La réaction de pyrolyse trouble en effet la mesure par sa thermicité et la perte de masse qu'elle provoque.

Hanrot [3] a pu déterminer expérimentalement la chaleur spécifique vraie du charbon La Houve, ainsi que la chaleur spécifique du semi-coke en cours de pyrolyse. La méthode employée a consisté à pyrolyser des échantillons de charbon à différentes températures comprises entre 300°C et 1000°C. La chaleur spécifique des échantillons de semi-coke obtenus a ensuite été mesurée par calorimétrie entre 20°C et la température de pyrolyse de l'échantillon. Cette méthode permet d'effectuer une mesure sur un matériau inerte. Les points extrêmes des courbes $C_p = f(T)$ obtenues donnent l'évolution de la chaleur spécifique vraie du charbon en cours de pyrolyse (figure II.2). Il faut noter que la valeur du C_p passe par un maximum vers 500°C. Cette allure de la courbe $C_p = f(T)$ était prévue par le modèle de Merrick [11], mais les valeurs données par ce modèle sont supérieures d'environ 20 % aux mesures effectuées par Hanrot.

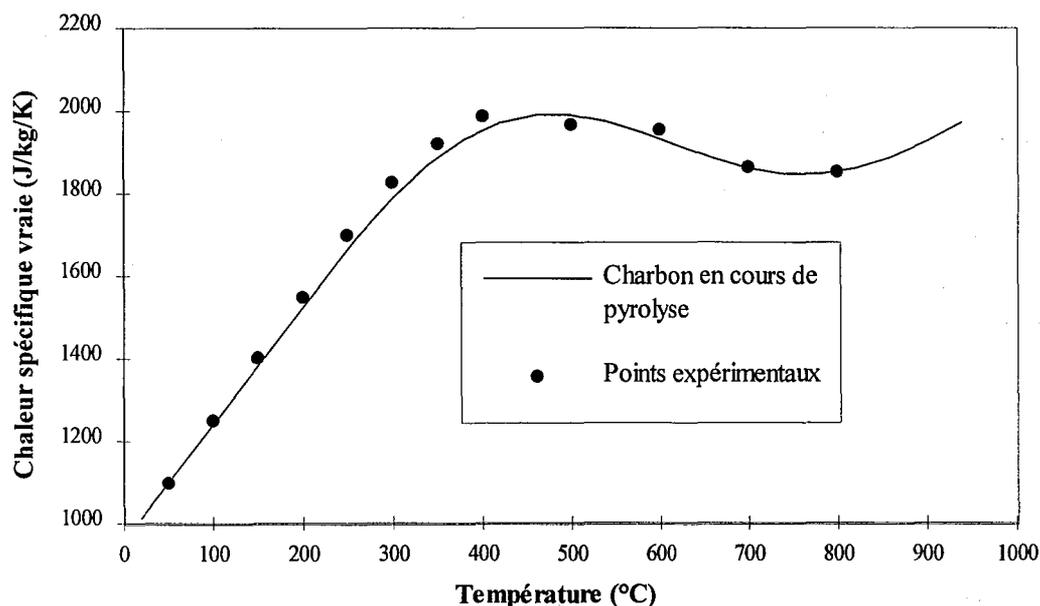


Figure II.2 : Chaleur spécifique vraie du semi-coke en fonction de la température d'après Hanrot [3]

II.2.2 Conductivité thermique (λ)

La littérature relate peu d'études sur la conductivité thermique du charbon. Seul Badzioch [13] a effectué des mesures sur un grand nombre de charbons. Il n'a décelé aucune corrélation entre le pourcentage de matières volatiles et la valeur de λ . La courbe de la figure II.3 donne la valeur moyenne de la conductivité thermique sur tous les échantillons en fonction de la température.

F. Hanrot a pu mesurer la valeur de λ pour le charbon La Houve par la méthode "flash" [2]. La correspondance avec les mesures de Badzioch est très bonne pour la mesure faite sur le charbon à température ambiante. Une mesure fiable n'a pu être effectuée sur les échantillons de semi-coke, car une telle mesure nécessite un appareil comprenant un dispositif de chauffage permettant d'atteindre la température de pyrolyse de l'échantillon.

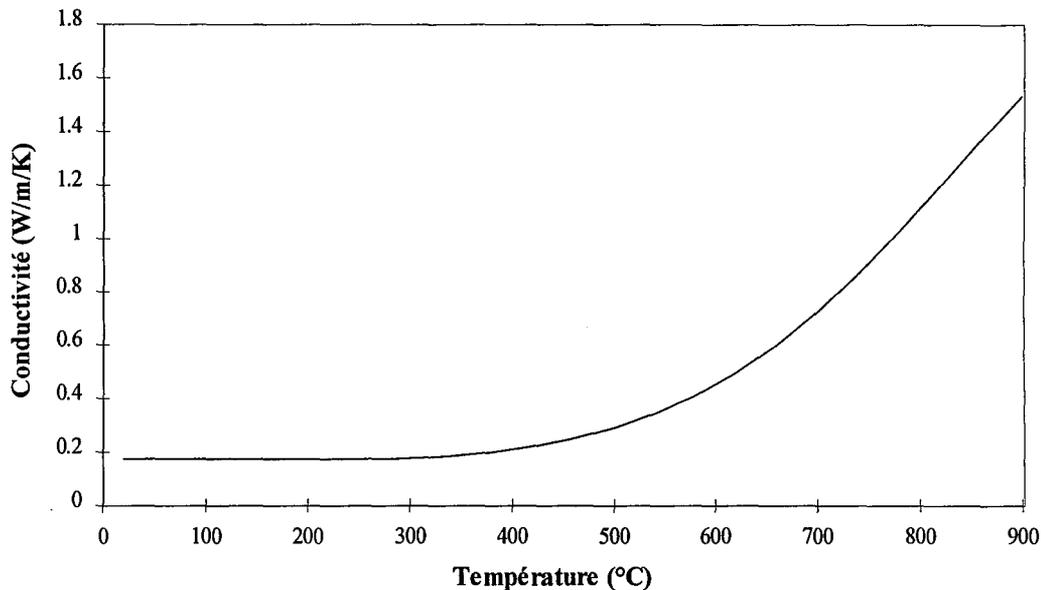


Figure II.3 : Conductivité thermique du semi-coke en fonction de la température d'après Badzioch [13]

II.2.3 Masse volumique (ρ)

La masse volumique apparente d'un charbon peut aisément être déterminée par enrobage d'un grain et utilisation d'un pycnomètre à eau. La mesure effectuée sur le charbon La Houve donne une valeur de 1250 kg/m^3 .

Au cours de la pyrolyse, la masse volumique diminue suite au gonflement et au départ des matières volatiles. Le charbon La Houve étant peu gonflant, il est possible de déterminer la masse volumique en fonction de la température par thermogravimétrie. Des expériences ont été effectuées avec des grains de 10 mm de diamètre (cf. annexe I). La perte de masse est enregistrée au cours d'une montée en température de 20°C à 850°C en 95 minutes (loi de chauffe du four tournant). En considérant le volume de la particule constant, il est alors possible de calculer sa masse volumique au cours de la pyrolyse (figure II.4). Pour des charbons gonflants, il serait nécessaire de tenir compte de l'augmentation de volume.

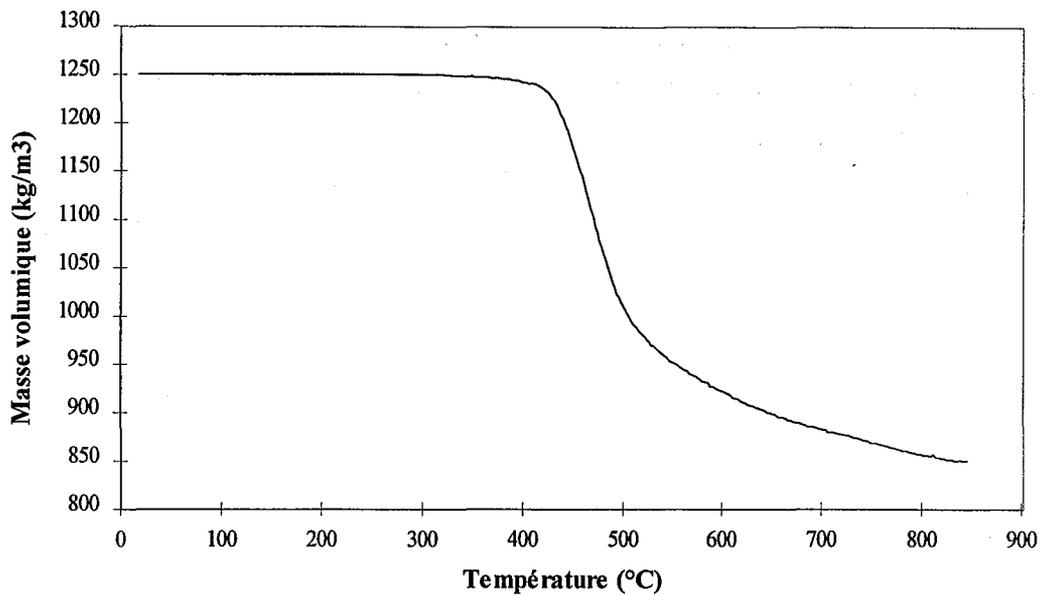


Figure II.4 : Masse volumique du semi-coke en fonction de la température mesurée par thermogravimétrie

II.3 Cinétique de séchage

La littérature est très pauvre en études sur le séchage de grains de charbon. Une étude expérimentale a donc été menée par F. Hanrot [2], qui conclut à la possibilité de représenter la cinétique de séchage par une loi du premier ordre dont les paramètres (facteur de fréquence k_{oS} et énergie d'activation E_S) sont : $k_{oS} = 3,11 \text{ s}^{-1}$ et $E_S = 27,7 \text{ kJ.mol}^{-1}$.

Les expériences de thermogravimétrie effectuées dans le cadre de la présente étude sur des grains de 10 mm de diamètre et une vitesse de montée en température de 8,7 K/min (cf. annexe I) permettent également de déterminer une loi cinétique de séchage. Les paramètres cinétiques correspondants à une loi du premier ordre sont : $k_{oS} = 7,68 \text{ s}^{-1}$ et $E_S = 31,4 \text{ kJ.mol}^{-1}$. Ils ont été déterminés par la méthode des moindres carrés (figure II.5).

Les vitesses de séchage calculées à l'aide des valeurs de k_{oS} et E_S obtenues par Hanrot sont également représentées sur la figure II.5. Les deux courbes obtenues sont assez voisines, l'augmentation du facteur de fréquence compensant l'augmentation de l'énergie d'activation.

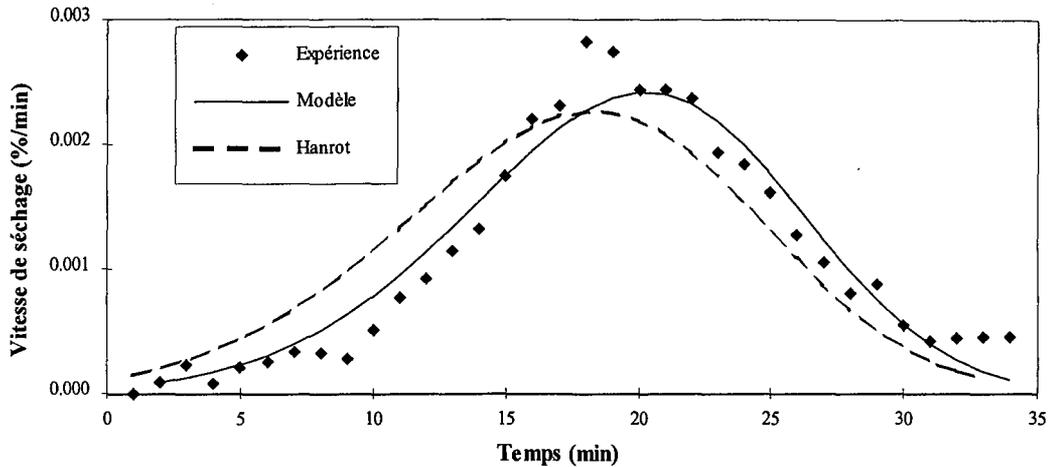


Figure II.5 : Vitesse de séchage mesurée par thermogravimétrie

II.4 Cinétique de dévolatilisation

L'étude bibliographique de Solomon [4] permet de se rendre compte de la diversité des résultats obtenus sur la cinétique de dévolatilisation d'un charbon (figure II.6). Une étude expérimentale effectuée avec du charbon La Houve semble donc nécessaire pour une meilleure prise en compte de ce phénomène dans une modélisation du four tournant.

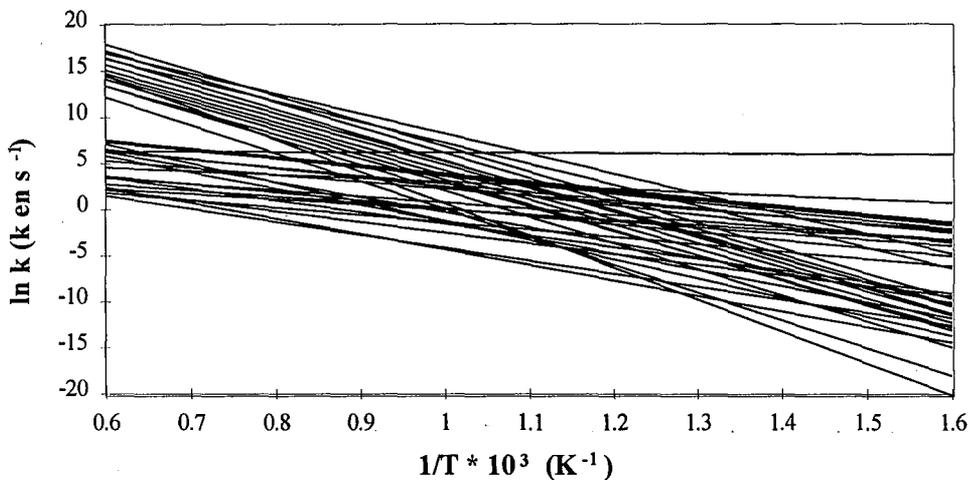


Figure II.6 : Constantes cinétiques de la pyrolyse du charbon issues de la littérature d'après Solomon [4]

Compte tenu de la loi de chauffe du four industriel (8,7 K/min), le décalage dans le temps entre la dévolatilisation des goudrons, du méthane et de l'hydrogène est très marqué. Ces dégagements successifs interviennent dans des zones du four distinctes, d'où une forte

influence sur les phénomènes de combustion et donc sur les profils thermiques de la charge et du gaz. La modélisation de la dévolatilisation du charbon devra donc prendre en compte la cinétique de dégagement de chaque espèce chimique.

II.4.1 Etude expérimentale

La description de l'installation expérimentale ainsi que les résultats complets de cette étude se trouvent en annexe I. Le dispositif de mesure comprend une thermobalance balayée par un gaz inerte (azote ou hélium), la sortie des gaz étant dirigée vers un chromatographe.

Les grains de charbon d'environ 10 mm de diamètre sont suspendus dans le four à l'aide d'une nacelle en fil de platine. La loi de chauffe utilisée (de 20°C à 850°C en 95 minutes) est déduite de mesures effectuées sur le four tournant industriel. La masse de l'échantillon ainsi que la température du four sont mesurées en continu (figure II.7). Les analyses de gaz sont effectuées ponctuellement et aussi souvent que possible en fonction du temps de rétention du gaz analysé dans la colonne du chromatographe. L'analyse du gaz vecteur dans la thermobalance, dont le débit est connu, permet de convertir les compositions obtenues en débits massiques. Le débit des goudrons est obtenu par différence entre la perte de masse et la somme des débits des autres gaz. La figure II.8 présente les résultats de ces mesures.

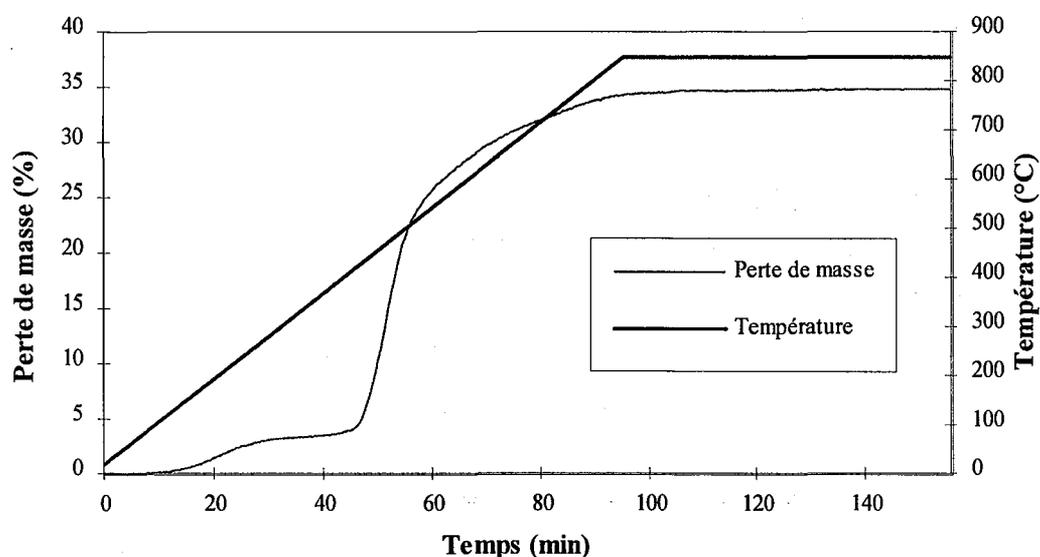


Figure II.7 : Evolution de la température et de la perte de masse en fonction du temps

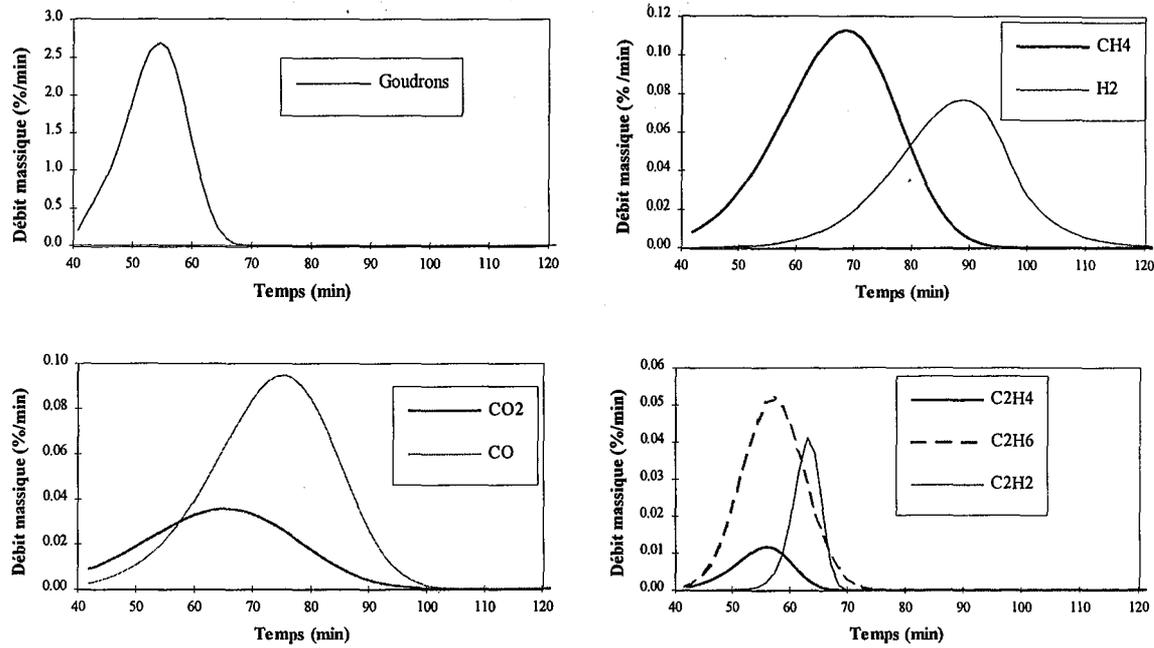


Figure II.8 : Débits massiques des espèces chimiques issues de la pyrolyse du charbon (en % massique du charbon sec/min)

L'intégration des courbes ci-dessus donne la composition des matières volatiles (en % massique du charbon sec) :

goudrons	19,2 %
eau	5,9 %
gaz	7,3 %
autres	2,4 % (benzols, NH ₃ , H ₂ S)

La composition du gaz est donnée dans le tableau II.1. La teneur du charbon en eau de constitution et en benzols, NH₃ et H₂S provient d'une analyse du charbon La Houve en cornue Jenkner effectuée au Centre de Pyrolyse de Marienau [2].

H ₂	CH ₄	CO	CO ₂	C ₂ H ₆	C ₂ H ₄	C ₂ H ₂
70,2	12,8	6,5	1,8	1,7	0,4	0,7

Tableau II.1 : Composition du gaz issu de la pyrolyse du charbon La Houve (% molaire)

II.4.2 Paramètres cinétiques

De nombreux auteurs représentent la cinétique de pyrolyse par un ensemble de réactions du premier ordre, de même facteur de fréquence, et dont les énergies d'activation sont réparties selon une fonction de distribution gaussienne [14]. Cette solution permet de tenir compte du grand nombre de réactions chimiques intervenant dans le processus de

pyrolyse. Cependant, ces auteurs considèrent alors généralement que la vitesse de dévolatilisation est identique pour tous les constituants.

Une approche différente consiste à attribuer à chaque constituant une cinétique de dévolatilisation qui lui est propre. Il peut alors s'agir d'une réaction du premier ordre [15] ou bien d'un ensemble de réactions du premier ordre dont les énergies d'activation suivent une loi de distribution [16]. Solomon [4] précise que seule la seconde méthode permet d'obtenir des paramètres valables sur une large gamme de vitesses de chauffe. Cependant, le nombre de paramètres à déterminer est alors plus important et la modélisation est plus lourde. C'est pourquoi dans le cadre de notre étude les paramètres correspondants à une réaction unique du premier ordre par constituant ont été déterminés (cf. tableau II.2). La valeur donnée pour H₂O est tirée de la littérature [4]. Des expériences effectuées avec une vitesse de chauffe plus rapide permettront d'évaluer la gamme de validité de ces paramètres.

Constituant	k_0 (s ⁻¹)	E (kJ/mol)
Goudrons	8,85 10 ⁵	123,8
H ₂ O	1,1	50,3
CH ₄	27,9	72,4
CO	32,6	78,7
CO ₂	1,12	49,4
H ₂	316,4	108,5
C ₂ H ₆	7,19 10 ⁴	110,6
C ₂ H ₄	1,02 10 ⁶	126,5
C ₂ H ₂	4,21 10 ¹⁹	350,9

Tableau II.2 : Paramètres cinétiques des réactions de dévolatilisation

II.4.3 Influence de la vitesse de chauffe

Les mesures décrites ci-dessus ont été renouvelées avec une vitesse de chauffe plus rapide, la montée en température de 20°C à 850°C s'effectuant en 60 minutes, puis en 30 minutes (durée de la pyrolyse dans le four tournant pilote du Centre de Pyrolyse de Marienau). Les résultats de ces nouvelles expériences sont comparés aux valeurs obtenues avec les paramètres cinétiques calculés précédemment (figures II.9 et II.10).

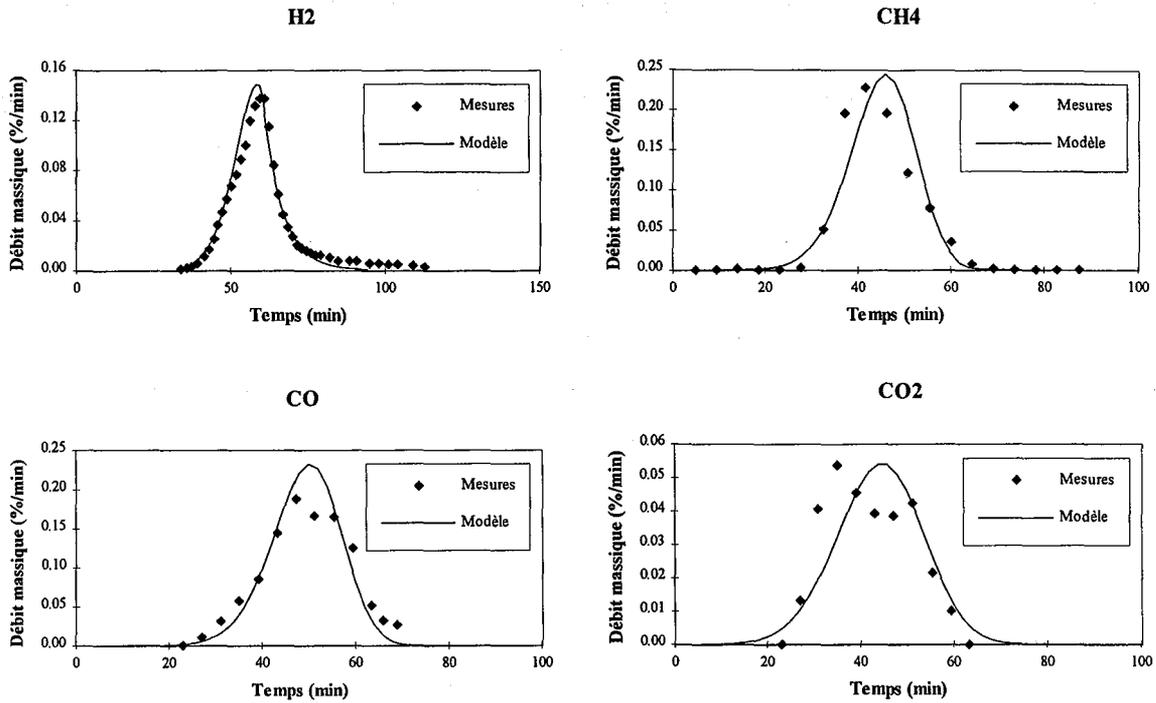


Figure II.9 : Dégagements gazeux en cours de pyrolyse pour une montée en température de 20°C à 850°C en 60 minutes

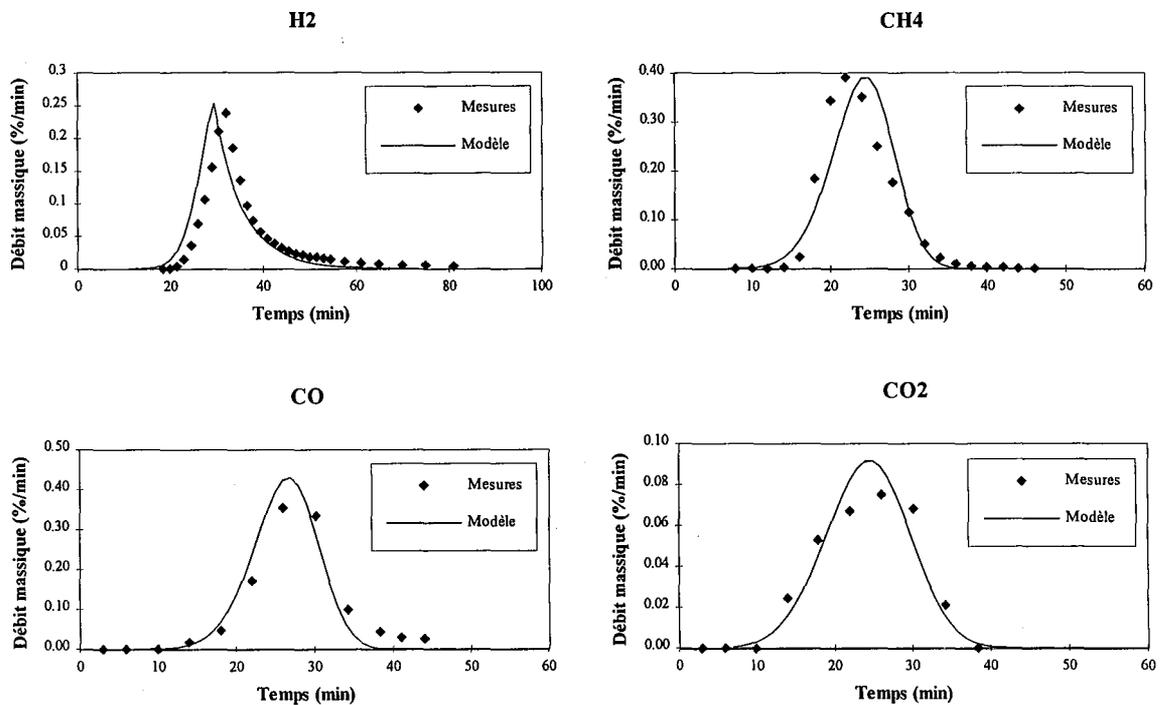


Figure II.10 : Dégagements gazeux en cours de pyrolyse pour une montée en température de 20°C à 850°C en 30 minutes

Sur la plage de vitesses de chauffe considérée (de 9 K/min à 28 K/min), les modèles cinétiques calculés auparavant donnent des résultats très proches des mesures effectuées. Cela signifie que la modélisation pourra s'appliquer aussi bien au four pilote qu'au four industriel, et que les changements de régime du four tournant seront correctement répercutés au niveau de la cinétique de dévolatilisation.

Une conséquence importante de l'augmentation de la vitesse de chauffe concerne cependant le rendement en matières volatiles. Alors que la perte de masse globale reste identique, la quantité de gaz légers augmente (cf. tableau II.3). D'après Solomon [4], ce phénomène s'explique par le fait que les goudrons, limités par la diffusion dans le grain, ont tendance à craquer davantage lorsque la vitesse de chauffe augmente.

Vitesse (K/min)	H ₂	CH ₄	CO	CO ₂
9	1,92	2,81	2,48	1,11
14	2,50	3,88	4,26	1,24
28	2,66	5,00	4,42	1,25

Tableau II.3 : Quantités de gaz légers issus de la pyrolyse du charbon La Houve pour différentes vitesses de chauffe (en % massique du charbon sec)

II.5 Enthalpie de réaction de la pyrolyse

L'enthalpie de réaction de la pyrolyse peut être obtenue grâce à un bilan thermique sur une batterie de fours à coke [17]. Le tableau II.4 présente les résultats obtenus en fonction du taux de matières volatiles du charbon. A titre de comparaison, des résultats obtenus à l'aide d'un bilan thermique en cornue Jenkner [17] sont également présentés.

Bilan en four à coke		Bilan en cornue Jenkner	
MV (%)	ΔH_p (J/g)	MV (%)	ΔH_p (J/g)
22,7	197	23,7	310
26,3	233	24,2	347
30,6	323	36,1	540

Tableau II.4 : Enthalpie de réaction de pyrolyse de quelques charbons obtenues à l'aide d'un bilan thermique (d'après [17])

De nombreuses études calorimétriques ont été publiées sur la pyrolyse du charbon [11,18-21]. Les enthalpies de réaction obtenues vont de -240 J/g à 1400 J/g. Il est parfois fait état d'un pic endothermique suivi d'un pic exothermique [18]. Mais la réaction peut se révéler

totallement exothermique [11,19] ou fortement endothermique [20-21]. Sans aller plus loin dans l'analyse des résultats de la littérature, il faut noter que le type de charbon étudié n'est pas le seul facteur introduisant ces différences notables. La plupart des auteurs ne prennent pas en compte la variation de la chaleur spécifique du semi-coke en cours de réaction ni les effets liés à la perte de masse. De ce point de vue, les résultats de Tromp [20] semblent les plus sûrs, avec un effet endothermique allant de 175 à 385 J/g en fonction du rang du charbon étudié.

Disposant de la mesure de la chaleur spécifique du charbon La Houve effectuée par Hanrot [3], il nous est possible de déterminer expérimentalement l'enthalpie de réaction de ce charbon en mesurant simultanément l'énergie absorbée et la perte de masse au cours de la pyrolyse.

II.5.1 Principe de la mesure

La description du dispositif expérimental ainsi que le détail des mesures effectuées se trouvent en annexe II. L'appareil utilisé est un calorimètre à flux différentiel (DSC) équipé d'une microbalance. Le charbon finement broyé (inférieur à 0,2 mm) est placé dans un creuset en platine. La cellule de référence contient un creuset en platine vide. La mesure s'effectue sous balayage d'argon avec une montée en température de 20°C à 820°C à la vitesse de 1 K/min. La différence de puissance absorbée entre la cellule de mesure et la cellule de référence ainsi que la différence de masse entre les deux creusets sont enregistrées en continu.

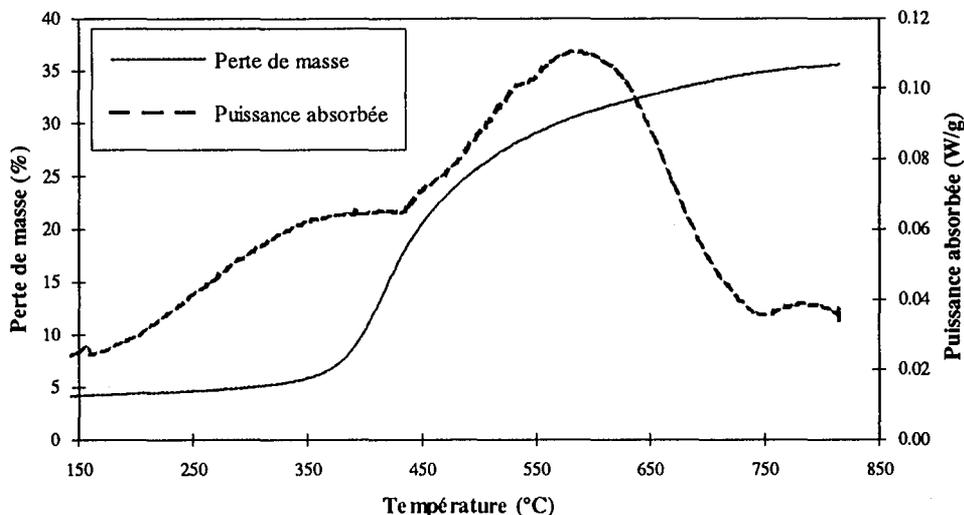


Figure II.11 : Perte de masse et puissance absorbée au cours de la pyrolyse (en W/g de charbon initialement présent)

Un blanc est effectué dans des conditions identiques à la mesure avec des creusets vides. La courbe de puissance absorbée est ainsi corrigée des effets liés au calorimètre et aux

creusets. La figure II.11 présente la puissance absorbée après correction, et la perte de masse en fonction de la température.

II.5.2 Résultats et discussion

La chaleur spécifique du semi-coke en fonction de la température est donnée au paragraphe II.2.1. Cette courbe associée à la mesure de la masse de l'échantillon permet de calculer la puissance absorbée correspondante en cours de pyrolyse. L'augmentation de la valeur du C_p associée à la diminution de masse conduit à une capacité calorifique pratiquement constante en fonction de la température (figure II.12). Ce terme est déduit de la courbe de puissance totale pour donner la puissance effectivement consommée par la réaction. La valeur intégrale de cette courbe sera abusivement appelée "enthalpie de réaction" de la pyrolyse. Le calcul conduit à un effet endothermique de 1280 J/g de charbon. Cette valeur est reproductible à 15 % près (cf. annexe II).

La courbe de puissance effectivement absorbée par la réaction sur la figure II.12 montre la cohérence des mesures effectuées avec les valeurs de chaleur spécifique obtenues précédemment : cette courbe passe par 0 vers 150°C (entre le séchage et la dévolatilisation) et retrouve une valeur proche de 0 à partir de 750°C, en fin de réaction de pyrolyse.

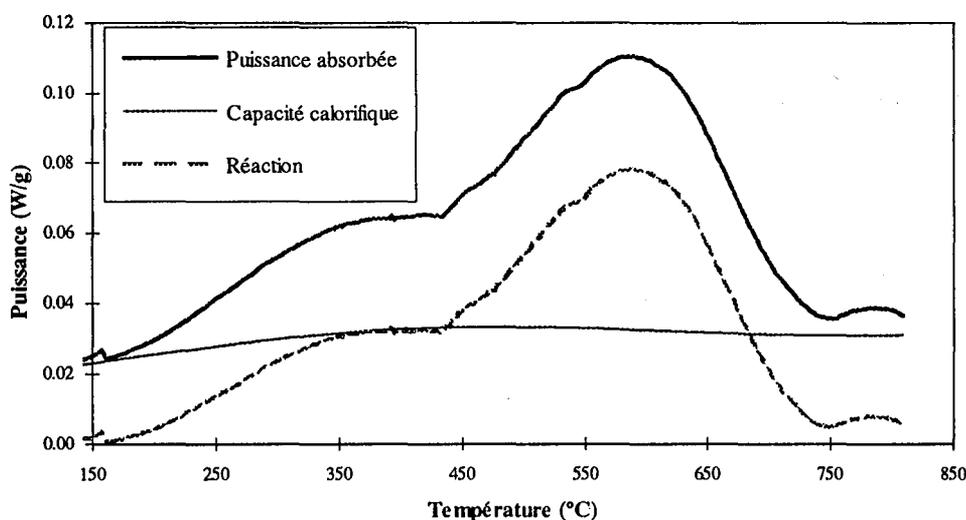


Figure II.12 : Calcul de la puissance effectivement absorbée par les réactions de pyrolyse (en W/g de charbon initialement présent)

L'enthalpie de réaction ainsi calculée est considérablement plus élevée que la moyenne des valeurs rencontrées dans la littérature. Elle peut être comparée aux 350 J/g donnés par Tromp [20] pour un charbon de même rang, la mesure ayant été faite dans des

conditions comparables. La seule différence notable dans le processus expérimental concerne la vitesse de chauffe employée, puisque Tromp utilise une vitesse de 5 K/min. De nouvelles mesures ont donc été effectuées avec une vitesse de montée en température plus rapide (5 K/min puis 10 K/min). Ces expériences se sont avérées très peu reproductibles (la précision diminuant avec la vitesse de chauffe), l'effet constaté est toutefois une nette diminution de l'enthalpie de réaction qui chuterait à environ 100 J/g. Les réactions de craquage des goudrons peuvent en partie expliquer ce phénomène. Lorsque la vitesse de chauffe augmente, les goudrons séjournent moins longtemps dans le solide et leur craquage est moins poussé. La limitation par diffusion dans le solide n'intervient pas ici puisqu'il s'agit de charbon finement broyé. L'effet fortement endothermique constaté à faible vitesse de chauffe serait donc dû à un craquage important des goudrons à l'intérieur du solide.

Les réactions de craquage des goudrons intervenant dans un grain de 20 mm de diamètre sont a priori plus poussées que dans ce type d'expérience. Les valeurs obtenues par calorimétrie pourraient donc n'être qu'indicatives. Quoi qu'il en soit la modélisation de la pyrolyse du charbon en four tournant devra prendre en compte le caractère incertain de la valeur de l'enthalpie de réaction, et l'influence de ce paramètre sur les résultats du modèle devra être étudiée.

II.6 Modèle de grain

Le modèle de grain qui a été développé permet de décrire la pyrolyse d'une particule de charbon isolée en fonction des conditions environnantes. Il est basé sur le transfert de chaleur vers et dans le grain et sur la cinétique et la thermicité des réactions de séchage et de pyrolyse du charbon.

II.6.1 Principe du calcul

Les équations du transfert de chaleur et des cinétiques chimiques sont résolues simultanément, en régime transitoire, en utilisant la méthode des volumes de contrôle. Le grain est divisé en couronnes sphériques concentriques d'égales épaisseurs et le temps en intervalles égaux. A chaque pas de temps, un bilan thermique est effectué sur chaque volume élémentaire du grain. Ce bilan fait intervenir les termes sources liés aux différents effets thermiques à prendre en compte : le séchage, les réactions de pyrolyse et l'échange de chaleur entre le grain et les gaz qui s'en échappent. Le détail des calculs est présenté en annexe IV.

Les conditions limites en surface du grain sont de type Fourier : le coefficient de transfert de chaleur h est calculé en fonction des conditions environnantes. Dans le four

tournant, ces conditions vont donc être différentes selon que le grain se trouve sur le talus, contre la paroi ou à l'intérieur de la charge (cf. chapitre IV).

En ce qui concerne les expériences de pyrolyse effectuées en laboratoire, le coefficient de transfert de chaleur en surface du grain doit être déterminé en fonction de la configuration du dispositif expérimental.

II.6.1 Hypothèses

Le faible gonflement du charbon La Houve autorise l'utilisation d'un maillage constant pour la discrétisation du grain en volumes de contrôle (un charbon gonflant nécessiterait l'emploi d'un maillage évolutif).

La fissuration du grain n'est pas prise en compte dans le modèle. Par contre, l'évolution de la porosité est simulée par l'intermédiaire du changement de masse volumique (variable en fonction de la température).

La diffusion des matières volatiles dans le grain ne constituant pas un phénomène limitant (cf. § II.1.2), elle n'est pas modélisée.

Les réactions de craquage secondaires ne sont pas modélisées en tant que telles, mais elles sont prises en compte par l'intermédiaire des cinétiques de dévolatilisation des différents constituants des matières volatiles.

II.6.3 Résultats

II.6.3.1 PROFIL THERMIQUE ET TAUX DE CONVERSION

Le calcul donne la température, le taux d'humidité et le taux de dévolatilisation de chaque constituant dans chacun des volumes de contrôle au cours du temps.

Le taux de dévolatilisation $X_j(t)$ du constituant j est défini par :

$$X_j(t) = 1 - \frac{m_{vol_j}(t)}{m_{vol_j}(t=0)} \quad \{\text{II.1}\}$$

où $m_{vol_j}(t)$ est la masse du constituant j susceptible de se volatiliser à l'instant t .

Le taux de conversion global du grain est défini par :

$$X(t) = 1 - \frac{m_{vol}(t)}{m_{vol}(t=0)} \quad \text{avec} \quad m_{vol}(t) = \sum_j m_{vol_j}(t) \quad \{\text{II.2}\}$$

A titre d'exemple, les figures II.13 et II.14 présentent les résultats obtenus pour la pyrolyse d'un grain de 20 mm de diamètre, subissant une loi de chauffe de 9 K/min jusqu'à un palier de 850°C. Le coefficient de transfert de chaleur h en surface du grain est défini par :

$$h = h_c + \sigma \varepsilon_s \frac{T_f^4 - T_s^4}{T_f - T_s} \quad \{II.3\}$$

avec h_c : coefficient de transfert par convection (12 W/m²/K)

ε_s : émissivité de la surface du grain (0,8)

T_f : température du four

T_s : température en surface du grain

La valeur utilisée pour l'enthalpie de réaction de la pyrolyse (ΔH_p) est de 300 J/g et la conductivité thermique du grain est issue des mesures de Badzioch.

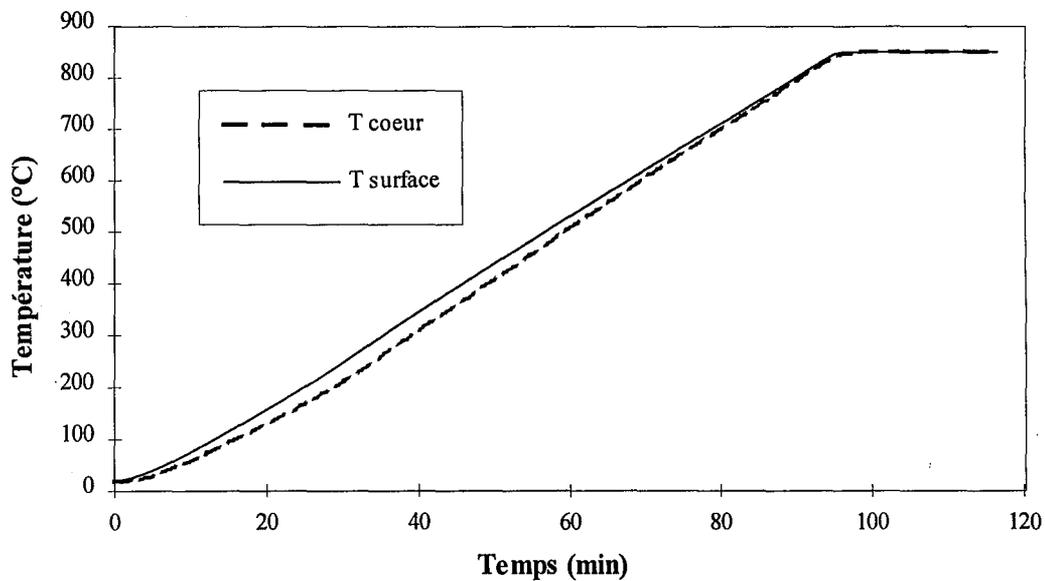


Figure II.13 : Température en surface et à coeur de grain au cours du temps

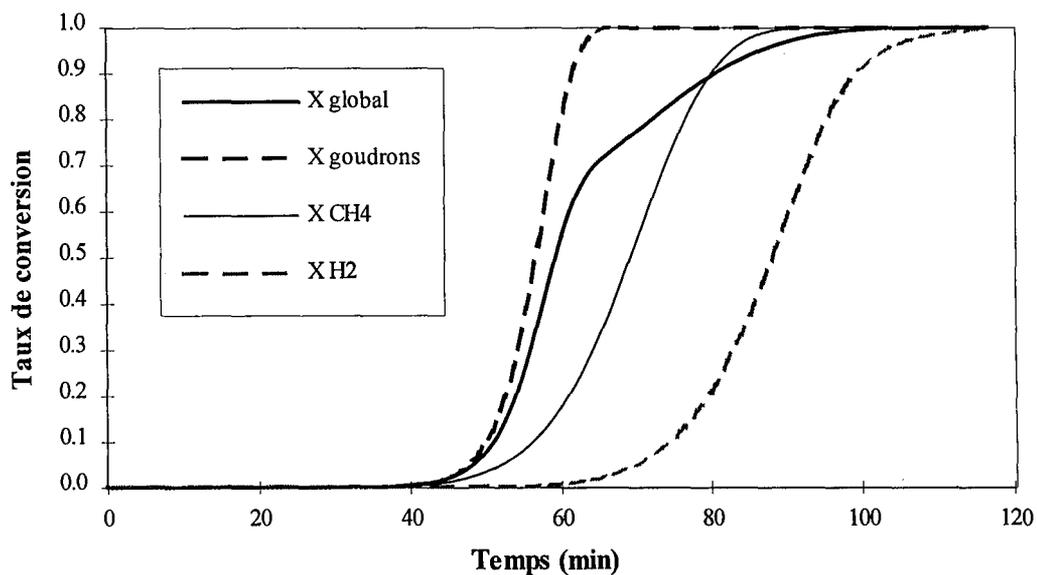


Figure II.14 : Taux de conversion au cours du temps

Ces résultats permettent d'évaluer le gradient thermique dans le grain. L'écart maximum de température entre la surface et le coeur du grain (ΔT_{\max}) est de 38,8°C. Le temps de pyrolyse (tel que $X=0,99$) est dans cet exemple de 96,6 minutes.

II.6.3.2 ETUDE DE SENSIBILITE

Il est nécessaire de tester la sensibilité du modèle à certains paramètres qui restent mal connus : enthalpie de réaction de la pyrolyse (ΔH_p), émissivité du grain (ϵ_s) et conductivité thermique (λ). Le tableau II.5 présente l'écart de température maximum au sein du grain (ΔT_{\max}) et le temps de pyrolyse pour différentes valeurs de ces paramètres.

	ΔT_{\max} (°C)		Temps de pyrolyse (s)	
	9 K/min	28 K/min	9 K/min	28 K/min
$\Delta H_p = 100$ J/g	38,7	123,7	5780	2397
$\Delta H_p = 300$ J/g	38,8	123,8	5796	2423
$\Delta H_p = 1000$ J/g	39,0	124,2	5858	2512
$\epsilon_s = 0,8$	38,8	123,8	5796	2423
$\epsilon_s = 0,9$	38,8	123,8	5790	2414
$\epsilon_s = 1$	38,8	123,7	5786	2408
$\lambda / 2$	74,5	221,9	5826	2470
λ initial	38,8	123,8	5796	2423
$\lambda \times 2$	19,8	65,8	5782	2402

Tableau II.5 : Etude de sensibilité du modèle de grain

Ces calculs concernent la pyrolyse d'un grain de 20 mm de diamètre, subissant une loi de chauffe de 9 ou 28 K/min jusqu'à un palier de 850°C. Sur cette gamme de vitesses de chauffe, les paramètres testés n'ont qu'une faible influence sur le taux de conversion du grain, le temps de pyrolyse restant stable à moins de 5% près.

La variation de l'enthalpie de réaction de la pyrolyse ou de l'émissivité du solide n'affecte pas le profil thermique à l'intérieur du grain. Par contre, la conductivité thermique a bien entendu une forte influence sur le gradient thermique au sein de la particule. Ce paramètre devrait être mesuré sur le charbon La Houve pour avoir une meilleure précision sur la température en surface du grain au cours de la pyrolyse.

II.6.3.3 VALIDATION DU MODELE

La perte de masse mesurée en thermobalance au cours de la pyrolyse d'un grain de charbon de 10 mm de diamètre (cf. annexe I) permet de calculer la valeur expérimentale du taux de conversion en fonction du temps. La figure II.15 montre que les résultats du modèle de grain sont en bon accord avec les valeurs expérimentales du taux de conversion. Pour le calcul, le coefficient de transfert h est déterminé de la même façon qu'au paragraphe II.6.3.1. Le coefficient de transfert convectif h_c correspondant au dispositif expérimental est ici de $5 \text{ W/m}^2/\text{K}$. Il a été évalué par la formule de Ranz Marshall concernant l'écoulement d'un gaz autour d'une sphère de diamètre d :

$$\text{Nu}_d = \frac{h_c d}{\lambda_g} = 2 + 0,6 \text{ Re}_d^{1/2} \text{ Pr}^{1/3} \quad \{\text{II.4}\}$$

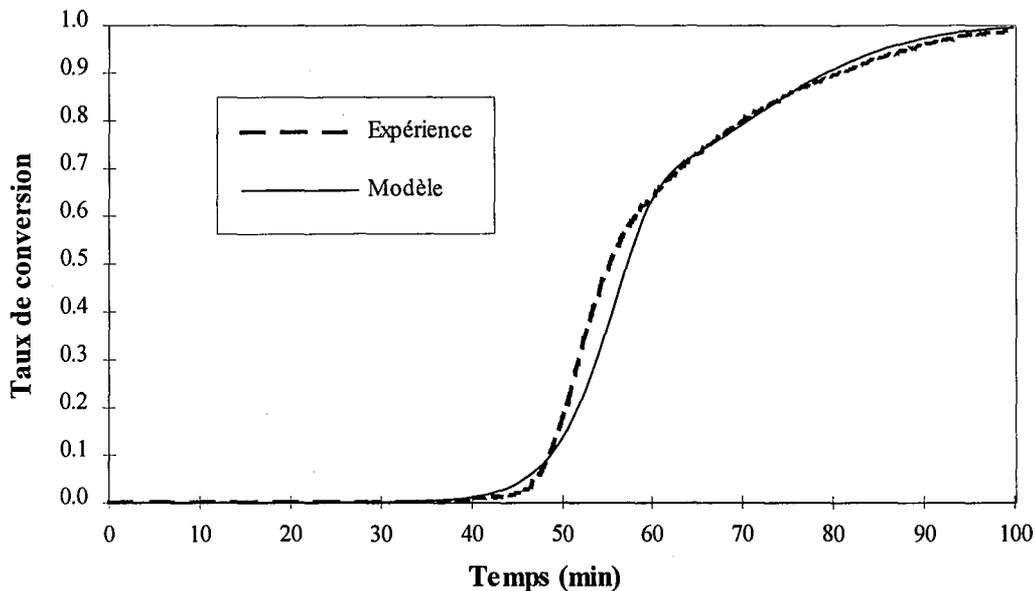


Figure II.15 : Taux de conversion en fonction du temps - $D_p = 10 \text{ mm}$

Loi de chauffe : 20 à 850°C en 95 min

Au cours des expériences effectuées en thermobalance, la particule de charbon est pratiquement isotherme : le calcul donne en effet un écart maximum de 8°C dans le grain. La comparaison faite ci-dessus constitue donc essentiellement une validation des lois cinétiques utilisées dans le modèle de grain.

Un autre moyen de validation provient de la mesure de la température à coeur de grain en cours de pyrolyse. Cette expérience a été effectuée à l'aide d'un thermocouple très sensible (de diamètre 0,5 mm) sur une particule de 20 mm de diamètre subissant une loi de chauffe de 14 K/min . Les conditions expérimentales imposent un coefficient de transfert convectif en surface du grain de $12 \text{ W/m}^2/\text{K}$ d'après l'équation {II.4}.

D'après le modèle, l'écart maximum de température à l'intérieur de la particule est alors de 63°C. La température à coeur de grain calculée correspond bien à la mesure expérimentale (figure II.16).

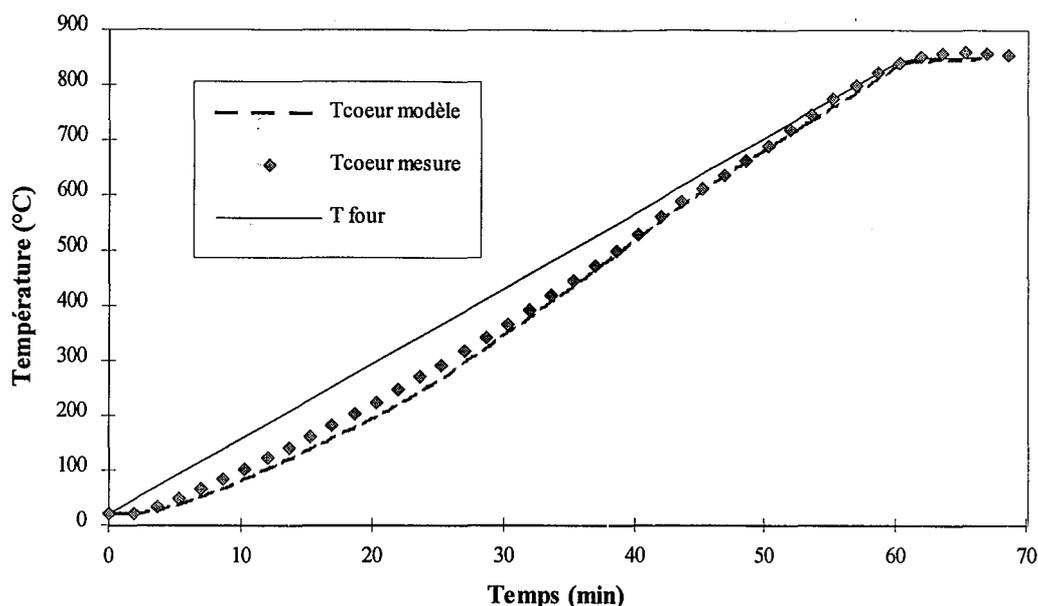


Figure II.16 : Température à coeur de grain en fonction du temps - $D_p = 20$ mm
Loi de chauffe : 20 à 850°C en 60 min

II.7 Conclusion

La plupart des données thermophysiques et cinétiques nécessaires à la modélisation de la pyrolyse du charbon La Houve ont pu être obtenues expérimentalement. Les expériences effectuées ont en particulier permis de mettre en évidence l'importance des réactions secondaires de craquage. Leur influence concerne à la fois la nature des matières volatiles dégagées et la thermicité de la réaction globale. Seules la conductivité thermique, l'émissivité du charbon et l'enthalpie de réaction de la pyrolyse restent incertaines. Cependant, pour les vitesses de chauffe qui nous concernent (9 à 28 K/min), ces paramètres n'ont qu'une faible influence sur le taux de conversion des particules.

Le modèle de grain qui a été développé permet de décrire la pyrolyse d'une particule de charbon isolée en fonction des conditions limites en surface du grain. A l'intérieur du four tournant, ces conditions vont varier en fonction de la position du grain au sein de la charge, puisqu'il se situe successivement sur le talus puis contre la paroi ou au coeur de la charge. L'étude des phénomènes de transfert de chaleur en four tournant présentée au chapitre IV permettra de déterminer les coefficients d'échange de chaleur en surface du grain dans chacune de ces situations.

Chapitre III

Mouvement de la charge en four tournant

Les fours tournants sont très largement utilisés dans les industries de la chimie et de la métallurgie pour le traitement thermique des solides granulaires. C'est pourquoi l'étude du mouvement des grains en four tournant est un problème important qui concerne un grand nombre d'applications industrielles.

Quelle que soit l'application considérée, le four comprend généralement plusieurs zones correspondant aux différentes phases de traitement du solide (séchage, dévolatilisation et extinction dans le cas de la pyrolyse du charbon). Pour modéliser ce procédé, il est indispensable de connaître le temps de séjour moyen des particules dans chaque zone du four. En effet, la vitesse axiale de la charge varie le long du tube en fonction de la hauteur du lit de solide, celle-ci n'étant généralement pas uniforme en raison des hauteurs différentes des diaphragmes d'entrée et de sortie. C'est pourquoi il faut étudier à la fois le temps de séjour global et le profil de chargement du four. Un paramètre essentiel pour la modélisation des échanges thermiques dans le procédé est également le temps de contact des grains avec la phase gazeuse, où se trouve la source d'énergie. Le temps de séjour d'un grain en surface du talus doit donc aussi être étudié.

Une étude expérimentale a été menée en four pilote afin de mesurer le temps de séjour et le temps passé par une particule en surface du talus en fonction du taux de remplissage et de la vitesse de rotation. Le profil de chargement a pu être mesuré à l'aide d'un dispositif spécialement conçu à cet effet.

III.1 Etude bibliographique

III.1.1 Mouvement d'un grain au sein de la charge

Le mouvement des particules dans une section transversale du four peut varier en fonction de la vitesse de rotation et des propriétés du matériau [22]. Mais la plupart des procédés fonctionnent dans le mode dit de "roulement" qui assure une bonne efficacité de l'échange thermique et limite les phénomènes d'attrition. Dans ce mode, le lit de particule peut être divisé en deux zones : la surface du lit où les grains roulent sous l'effet de la gravité, souvent appelée la "zone active", et la partie inférieure où le solide a un mouvement circulaire

solidaire de la paroi du four. La zone active peut être composée d'une ou plusieurs couches de grains.

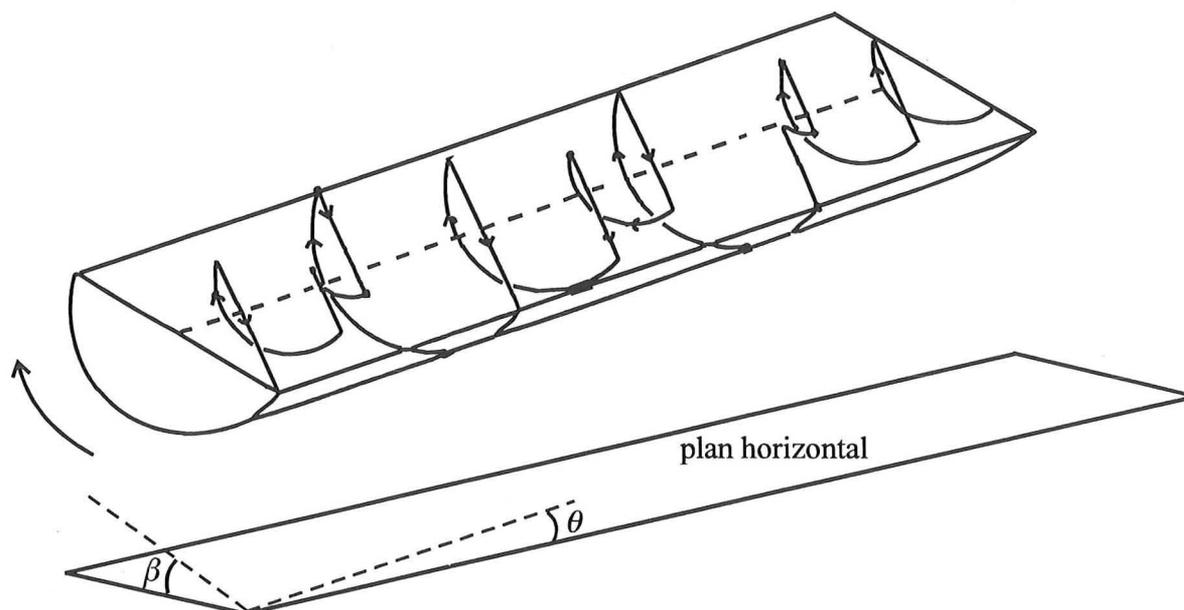


Figure III.1 : Mouvement d'un grain au sein de la charge

La figure III.1 représente schématiquement le parcours d'une particule dans un four tournant. Lorsque le grain est dans la partie inférieure du lit, il ne progresse pas le long de l'axe du four. Une fois sur le talus, il suit la ligne de plus grande pente qui dépend de l'angle de repos dynamique de la charge (β) et de l'inclinaison du lit par rapport à l'horizontal (θ). Ce grain est ensuite réincorporé de façon aléatoire dans la charge.

III.1.2 Temps de séjour moyen

Un grand nombre de travaux sur le temps de séjour en four tournant ont été publiés depuis Sullivan en 1927 [23]. Les premières études donnent une relation assez simple pour le calcul du temps de séjour moyen τ [2,3] :

$$\tau = \frac{K L}{D \theta_1 n} \quad \{\text{III.1}\}$$

où L est la longueur du four, D son diamètre intérieur, θ_1 son angle d'inclinaison par rapport à l'horizontale et n la vitesse de rotation. Selon les auteurs, K est constant ou dépend de l'angle de repos dynamique du solide β . Ces relations ne prennent pas en compte le taux de remplissage le long du four qui a pourtant une forte influence sur la vitesse axiale des particules.

Des relations basées sur l'observation de la trajectoire des grains dans le four ont ensuite été démontrées par Saeman [25], Kramers [26], Vahl [27] ou Ronco [28]. La hauteur du lit de particules ou le taux de remplissage interviennent alors dans le calcul de la vitesse axiale des grains. Ces équations sont basées sur des considérations géométriques permettant d'évaluer la distance axiale parcourue par une particule alors qu'elle roule sur le talus selon la ligne de plus grande pente. La vitesse axiale est obtenue en divisant cette distance par le temps qui s'écoule entre deux apparitions sur le talus, le temps passé en surface étant toujours jugé négligeable. Plus récemment, Perron et Bui [29] ont proposé une relation basée sur un calcul de la viscosité apparente du lit de grains qui fait également intervenir la hauteur de la charge. Ces formules permettent le calcul du temps de séjour moyen τ par intégration de la vitesse axiale $u(x)$ le long du four en fonction de la hauteur du lit $H(x)$ (cf. figure III.2 pour la nomenclature) :

$$\tau = \int_0^{L_s} dx / u(x) \quad \text{\{III.2\}}$$

avec :

$$\text{Sullivan [23] : } u = 0,678 \frac{D n \theta_1}{\sqrt{\beta}} \quad \text{\{III.3\}}$$

$$\text{Kramers [26] : } u = 5,328 D n \tan \theta_1 \left(\frac{1}{\sin \beta} - \tan \theta_2 \frac{\cot \beta}{\text{tg} \theta_1} \right) \left(\frac{H}{D} - \frac{H^2}{D^2} \right)^{1,5} \left(\frac{1}{\omega - \sin \omega} \right) \quad \text{\{III.4\}}$$

$$\text{Ronco [28] : } u = 0,251 D n (\theta_1 + \theta_2) \frac{1}{Z^{0,25}} \left(\frac{1}{\sin \beta} \right) \quad \text{\{III.5\}}$$

où Z est le taux de remplissage dans une section du four perpendiculaire à son axe (rapport de la surface occupée par la charge sur la surface totale de la section)

$$\text{Perron [29] : } u = K D n \theta_1 \left(\frac{D^2/4}{H^2 \cos \beta + 2H (DH - H^2)^{0,5} \sin \beta} \frac{\omega + 2 \tan \omega/2}{1 - \cos \omega/2} \right)^e \quad \text{\{III.6\}}$$

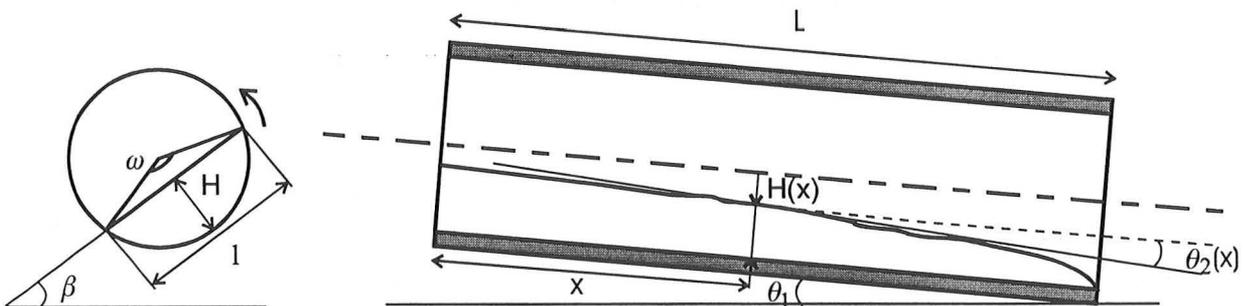


Figure III.2 : Sections du four pilote et nomenclature

III.1.3 Profil de chargement

Les équations précédentes supposent connu le profil de chargement, sans que leurs auteurs ne précisent le moyen de l'obtenir. La mesure de la hauteur de chargement le long du four est pourtant le seul moyen de disposer d'une mesure expérimentale du profil de vitesse axiale (en divisant le débit volumique de solide par l'aire d'une section transversale du lit). Henein [30], Chatterjee [31] et Sai [32] ont obtenu des profils de chargement expérimentaux mais ils n'ont pas essayé de corrélérer leurs résultats avec une relation mathématique existante. En effet, il est possible de calculer le profil de chargement à partir des expressions de la vitesse axiale données par Kramers et Ronco. L'inclinaison du lit de particules selon l'axe du four θ_2 est un paramètre de leur relation, or :

$$\frac{dH}{dx} = \tan \theta_2 \quad \{\text{III.7}\}$$

ce qui donne à partir des équations {III.4} et {III.5} :

$$\text{Kramers : } \frac{dH}{dx} = \frac{\tan \theta_1}{\cos \beta} - \frac{360 Q_v \tan \beta}{\pi n D^3} \left[\frac{4H}{D} - \left(\frac{2H}{D} \right)^2 \right]^{-1,5} \quad \{\text{III.8}\}$$

$$\text{Ronco : } \frac{dH}{dx} = \tan \left[\frac{4 Q_v \sin \beta}{2,623 \cdot 10^{-2} \pi n D^3 Z^{0,75}} - \theta_1 \right] \quad \{\text{III.9}\}$$

III.1.4 Temps de séjour moyen en surface du talus

Compte tenu des difficultés que présente la mesure du temps de séjour en surface du talus, ce paramètre est souvent négligé dans le calcul du temps de séjour moyen dans le four. Pourtant, c'est une donnée indispensable au calcul du flux de chaleur échangé entre le solide et le gaz. La fraction du temps de séjour passée en surface du lit a été évaluée de manière théorique par Hanrot [2]. Comme il n'y a pas d'accumulation de solide dans une section transversale de la charge, la fraction du temps de séjour passée dans la couche de grain supérieure (τ_f / τ) est égale au nombre de grains présents dans cette couche divisé par le nombre total de grains présents dans une section transversale de la charge :

$$\frac{\tau_f}{\tau} = \frac{l/D_{app}}{S/S_{app}} \quad \{\text{III.10}\}$$

où :

- l est la largeur du talus :
 $l = D \sin (\omega/2)$
- D_{app} est le diamètre apparent des particules :

$$D_{app} = D_p \left(\frac{\pi \rho}{6 \rho_v} \right)^{1/3} \quad \{\text{III.11}\}$$

- S est la surface d'une section transversale de la charge :

$$S = (\omega - \sin\omega) D^2 / 8 \quad \text{\{III.12\}}$$

- s_{app} est la surface couverte par une particule dans une section transversale de la charge, qui est plus grande que la section d'une particule $\pi D_p^2/4$ en raison de l'arrangement complexe des grains :

$$s_{app} = D_{app}^2 \quad \text{\{III.13\}}$$

Ainsi nous obtenons :

$$\frac{\tau_f}{\tau} = \frac{8 D_{app} \sin \frac{\omega}{2}}{(\omega - \sin\omega) D} \quad \text{\{III.14\}}$$

III.2 Etude expérimentale en four pilote

Cette étude doit permettre de déterminer les corrélations les mieux adaptées à la modélisation du mouvement de grains de charbon ou de coke en four tournant. L'influence du taux de remplissage sur le temps de séjour des grains est étudiée grâce à des mesures de temps de séjour à hauteur de chargement uniforme le long du four. D'autres expériences, effectuées avec un taux de remplissage non uniforme le long du four, ont permis la mesure du temps de séjour, du profil de chargement et du temps passé par un grain en surface du talus pour différentes vitesses de rotation du four.

III.2.1 Dispositif expérimental et méthodes de mesure

III.2.1.1 LE FOUR TOURNANT

Tous les essais ont été effectués à l'aide du four tournant pilote du Centre de Pyrolyse de Marienau. Il est construit en acier garni de béton réfractaire, mesure 6 mètres de long et a un diamètre interne de 0,6 mètre. Il est doté d'un dispositif permettant une alimentation à débit constant.

Le débit de solide dans le four, la vitesse de rotation et la hauteur de la charge aux extrémités du four sont quatre paramètres liés. Lorsque trois de ces paramètres sont fixés, le quatrième est également déterminé. Ceci se démontre avec l'équation différentielle du premier ordre {III.8} : la donnée d'une des deux hauteurs de chargement (à l'entrée ou à la sortie) permet de calculer le profil complet. Si l'on désire fixer la hauteur de chargement à l'entrée du

four, il faut utiliser un diaphragme de la hauteur voulue et alimenter par débordement. Le débit de solide à l'intérieur du four est alors déterminé par la vitesse de rotation et la hauteur du diaphragme de sortie. Le débit d'alimentation peut alors être ajusté de façon à minimiser le débordement. Lors de ces essais le débordement a atteint au maximum 10% du débit d'alimentation.

L'inclinaison du four par rapport à l'horizontale a été fixée à 1 degré pour tous les essais. La vitesse de rotation pouvait varier de 2 à 4 tr/min. Les différents diaphragmes utilisés permettaient l'obtention d'un taux de remplissage de 8 à 23% pour les essais à hauteur de lit uniforme. Tous les essais ont été effectués à température ambiante, à l'aide de grains de charbon puis de grains de coke. La distribution de taille de particule et les propriétés de ces matériaux sont présentées figure III.3 et tableau III.1.

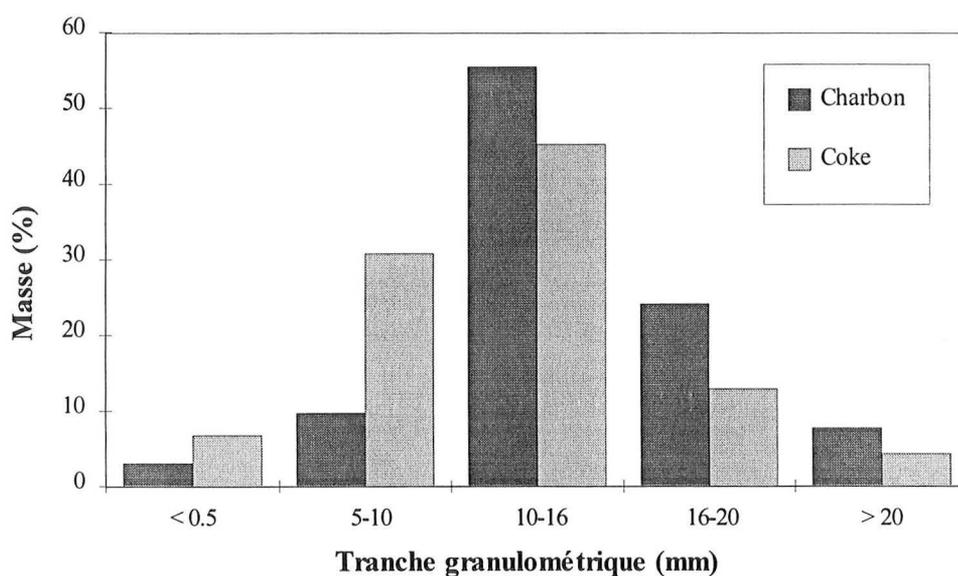


Figure III.3 : Distribution de taille de particule des matériaux utilisés

	Charbon	Coke
Masse volumique apparente (kg/m^3)	1250	810
Masse volumique en vrac (kg/m^3)	750	480
Angle de repos statique (degrés)	47	47
Angle de repos dynamique (degrés)	37	37

Tableau III.1 : Propriétés physiques des matériaux utilisés

Les paramètres de fonctionnement du four (vitesse de rotation et taux de remplissage) ont été maintenus dans des limites assurant un mouvement transversal de la charge dans le

mode de roulement. Toutes les mesures ont été effectuées lorsque le four était en régime permanent, celui-ci étant supposé atteint lorsque le débit de solide en sortie de four était constant.

III.2.1.2 MESURE DU TEMPS DE SEJOUR

Le temps de séjour dans le four a été mesuré à l'aide de traceurs colorés. Cent particules de charbon ou de coke peintes en jaune étaient introduites simultanément à l'entrée du four et récupérées une à une à la sortie, donnant ainsi la courbe de distribution des temps de séjour. Le choix de la taille de ces particules doit tenir compte du phénomène de ségrégation axiale dans la charge. La figure III.4 donne le temps de séjour moyen en fonction de la granulométrie des particules. Ce résultat correspond à un essai particulier effectué à l'aide de particules de charbon de différentes tailles dans un four à taux de remplissage uniforme. Les particules les plus petites forment un noyau au centre de la charge dû à la ségrégation radiale, ce qui se traduit par une vitesse de progression plus faible dans le four et produit la ségrégation axiale.

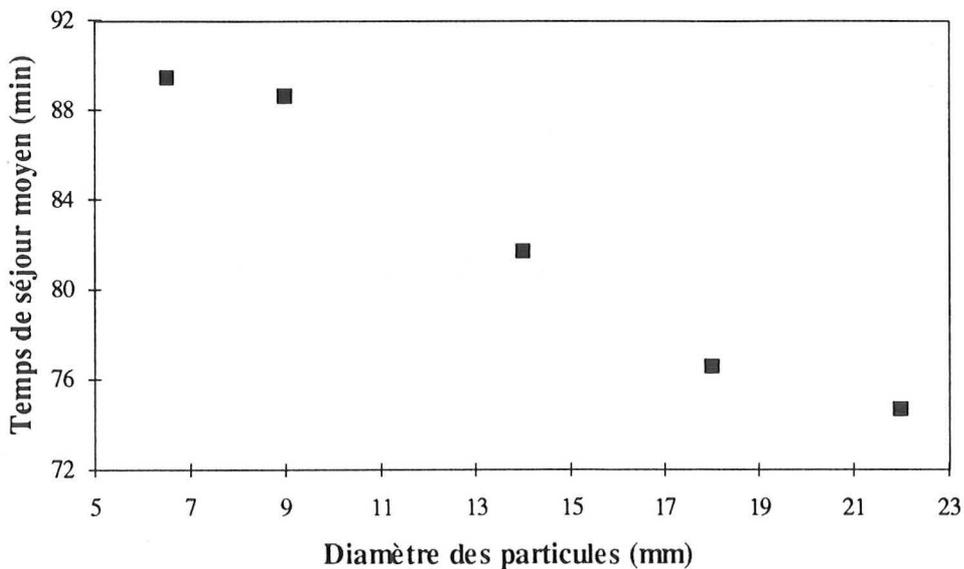


Figure III.4 : Temps de séjour moyen en fonction de la taille des particules
(taux de remplissage uniforme : 23%, vitesse de rotation : 2 tr/min)

Pour toutes les mesures de temps de séjour dont les résultats sont présentés par la suite, les particules servant de traceur ont été choisies dans la tranche granulométrique moyenne de la charge (14-16 mm), ceci afin de minimiser les erreurs dues à la ségrégation axiale. Chaque mesure était effectuée deux fois, puis l'alimentation était coupée et le contenu du four vidé et pesé. Le temps de séjour moyen, obtenu en divisant la masse contenue dans le four par le

débit massique en régime permanent, a été comparé au résultat obtenu par le traceur coloré. Les deux résultats ne différaient jamais de plus de 5%.

III.2.1.3 MESURE DU PROFIL DE CHARGEMENT

La hauteur de chargement le long du four a été mesurée à l'aide d'un dispositif mobile suspendu à un rail (figure III.5). Ce dispositif consiste en un bras métallique articulé suspendu à un chariot se déplaçant sur le rail. L'inclinaison de ce bras est transformée en signal électrique à l'aide d'un potentiomètre. Un étalonnage de l'appareil permet de retrouver la hauteur de la charge en fonction de ce signal.

Le four était alimenté à débit constant jusqu'à l'obtention du régime permanent. Puis la rotation du four et l'alimentation étaient arrêtées simultanément. La surface du talus était alors placée en position horizontale par une rotation du four de 37° (angle de repos dynamique de la charge). Le dispositif mobile était alors tiré le long du four, le signal de mesure étant enregistré tous les 20 cm.

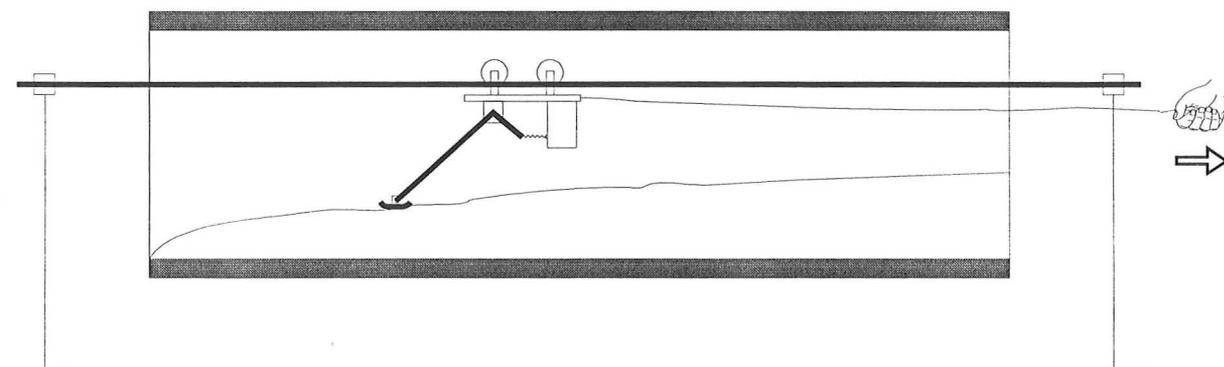


Figure III.5 : Dispositif expérimental de mesure du profil de chargement

III.2.1.4 ETUDE DU MOUVEMENT D'UNE PARTICULE AU SEIN DE LA CHARGE

Le mouvement d'une particule colorée au sein de la charge a été filmé à l'aide d'un endoscope de 5 mètres de long. Cette caméra a permis de suivre la particule sur les 4 derniers mètres du four, en filmant la surface du talus. La particule était visible à chaque passage dans la zone active. Cette expérience a été effectuée pour différents taux de remplissage à hauteur de chargement uniforme, puis sans diaphragme de sortie pour différentes vitesses de rotation.

III.2.2 Résultats

L'ensemble des résultats de cette étude (courbes de distribution des temps de séjour, profils de chargement et résultats relatifs au mouvement d'un grain au sein de la charge) sont présentés en annexe III.

III.2.2.1 INFLUENCE DU TAUX DE REMPLISSAGE (UNIFORME LE LONG DU FOUR) SUR LE TEMPS DE SEJOUR MOYEN

Le temps de séjour moyen mesuré avec une hauteur de chargement uniforme dans le four et une vitesse de rotation de 2 tr/min augmente fortement avec le taux de remplissage (figure III.6).

Les relations données par Sullivan [23] et Bayard [24] ne peuvent prévoir une telle évolution car la hauteur de chargement n'est pas un paramètre de leurs études. En revanche, les équations de Kramers [26] et Ronco [28] représentent bien l'évolution du temps de séjour moyen en fonction du taux de remplissage. La formule donnée par Perron [29] comporte deux paramètres ajustables qui ont été déterminés selon la méthode qu'il préconise, mais elle semble inadaptée pour les fours à taux de remplissage uniforme.

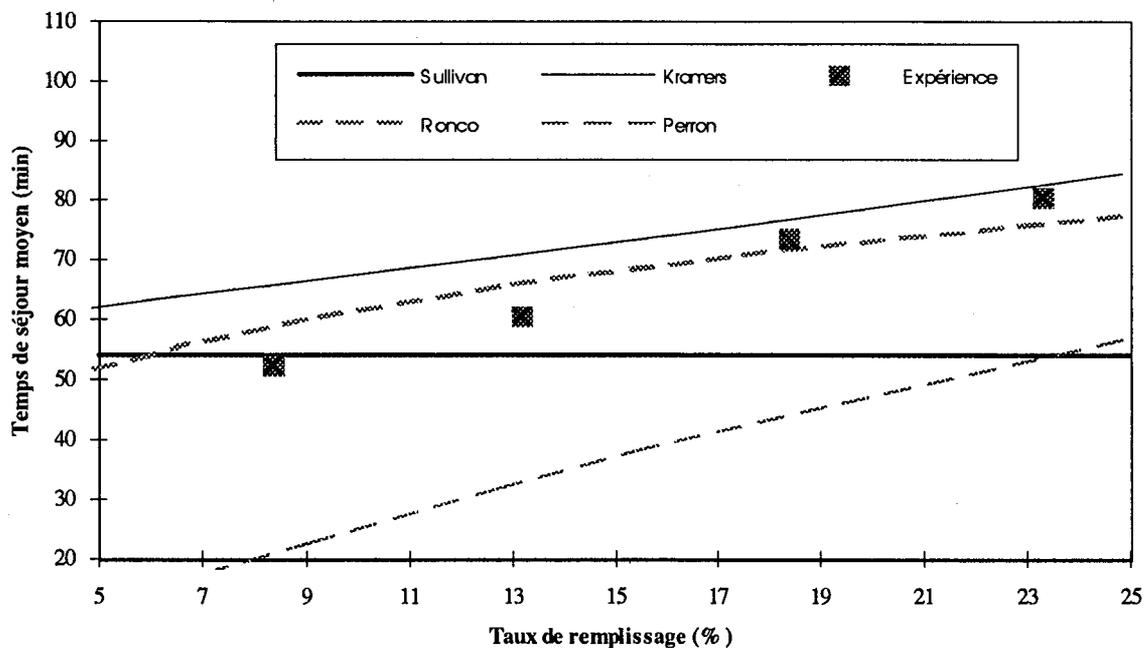


Figure III.6 : Temps de séjour moyen en fonction du taux de remplissage (taux de remplissage uniforme dans le four, vitesse de rotation : 2 tr/min)

Ces expériences montrent l'importance de la hauteur de la charge dans le calcul de la vitesse de progression axiale, d'où la nécessité de prendre en compte le profil de chargement

pour le calcul du temps de séjour moyen. Cependant, l'influence du taux de remplissage sera différente dans un four à hauteur de chargement non uniforme car l'inclinaison du lit par rapport à l'axe du four aura également un effet sur la vitesse des particules. C'est pourquoi des mesures de temps de séjour dans un four à remplissage non uniforme ont également été effectuées.

III.2.2.2 TEMPS DE SEJOUR MOYEN ET PROFIL DE CHARGEMENT POUR UN TAUX DE REMPLISSAGE NON UNIFORME LE LONG DU FOUR

Ces essais ont été effectués avec un taux de remplissage de 23% à l'entrée du four et sans diaphragme de sortie. Le temps de séjour moyen et le profil de chargement ont été mesurés pour des vitesses de rotation de 2, 3 et 4 tr/min.

Le profil de chargement n'est pas affecté par une telle modification de la vitesse de rotation (figure III.7), alors que le temps de séjour moyen décroît lorsque la vitesse de rotation augmente (figure III.8). Les temps de séjour moyens ont ici été calculés à l'aide des équations {III.2} à {III.6} en utilisant le profil de chargement expérimental. Le profil de vitesse de progression axiale donné par l'expérience peut également être comparé aux résultats obtenus à l'aide des relations précédentes (figure III.9) : les profils de Perron et Kramers sont les plus proches de l'expérience.

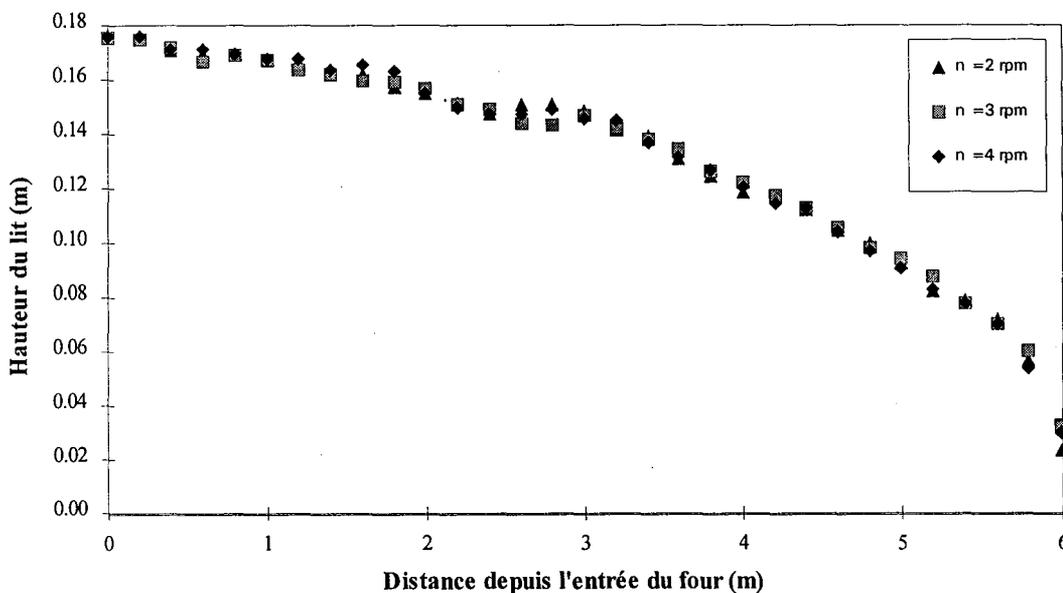


Figure III.7 : Profils de chargement expérimentaux pour différentes vitesses de rotation (alimentation par débordement, pas de diaphragme de sortie)

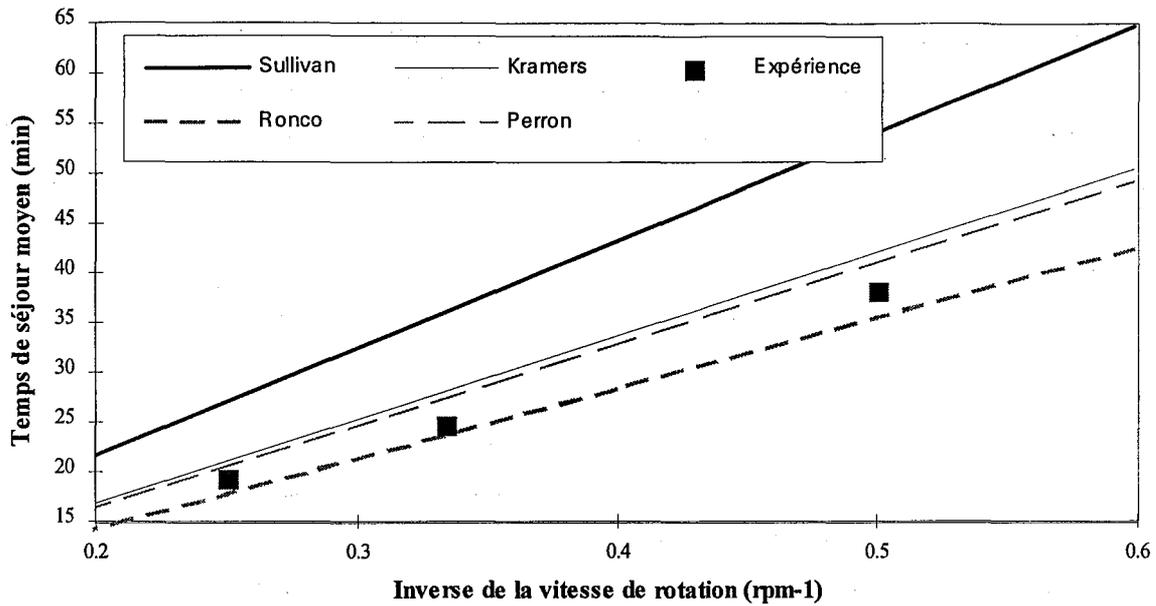


Figure III.8 : Temps de séjour moyen en fonction de $1/n$
(alimentation par débordement, pas de diaphragme de sortie)

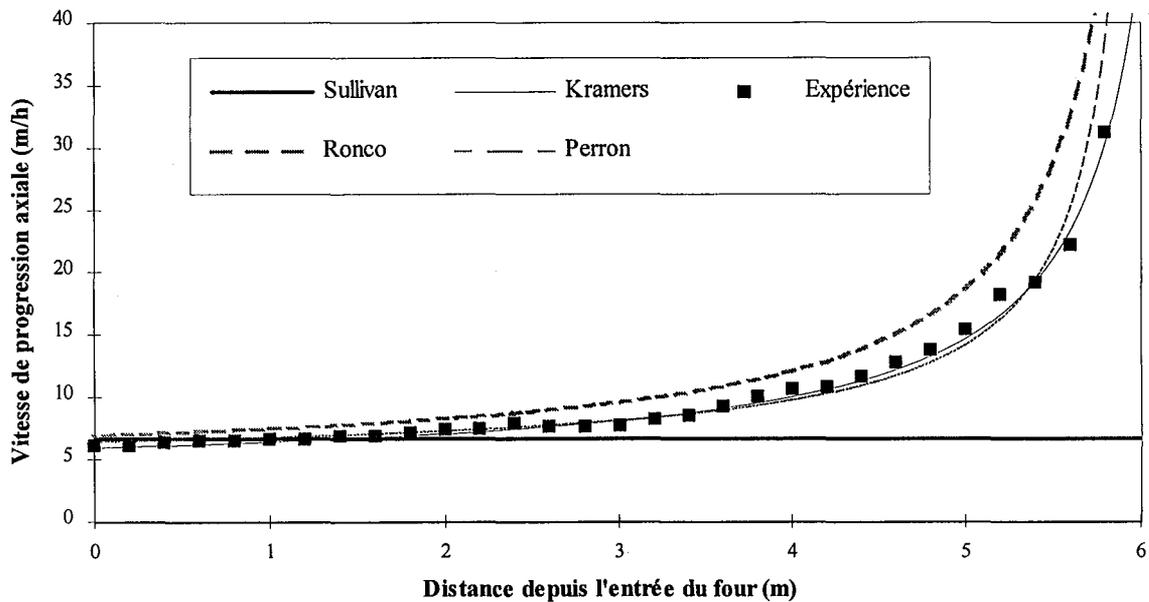


Figure III.9 : Profils de la vitesse de progression axiale calculés à partir du profil de chargement expérimental (vitesse de rotation : 2 tr/min)

Puisque les diaphragmes d'entrée et de sortie de four sont en général de tailles différentes dans les applications industrielles, le profil de chargement n'est pas connu et doit donc être calculé en premier lieu. Ce profil est nécessaire pour le calcul du temps de séjour moyen et du temps passé en surface du lit. Les équations de Kramers {III.7} et Ronco {III.8}

permettent ce type de calcul. La figure III.10 compare les profils de chargement calculés au profil expérimental. La vitesse de progression axiale obtenue à l'aide de ces profils de chargement calculés est donnée figure III.11. On peut noter que le profil de chargement calculé ne varie pas non plus en fonction de la vitesse de rotation du four car le rapport Q_v/n reste constant quand n varie tant que l'alimentation se fait par débordement (tableau III.2).

n (tr/min)	Q_v (m ³ /h)	Q_v/n
2	0.424	0.212
3	0.640	0.213
4	0.835	0.209

Tableau III.2 : Débit volumique en fonction de la vitesse de rotation dans un four à remplissage non uniforme alimenté par débordement

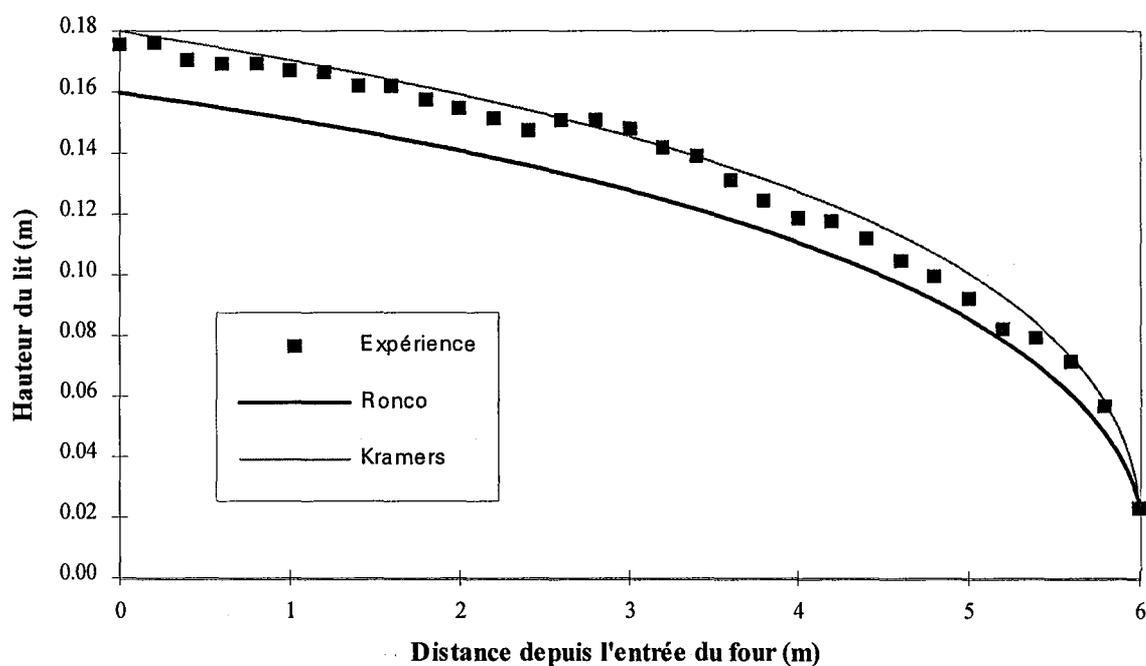


Figure III.10 : Comparaison du profil de chargement expérimental et des profils calculés

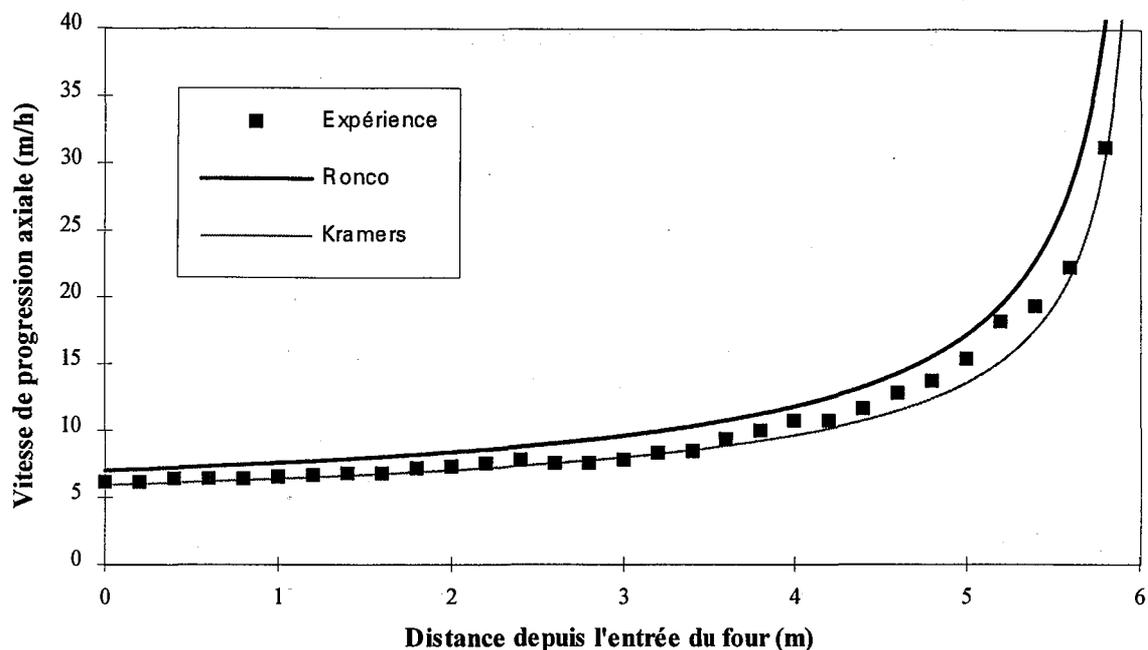


Figure III.11 : Profils de la vitesse de progression axiale obtenus à partir des profils de chargement calculés (vitesse de rotation : 2 tr/min)

De ces comparaisons, il apparaît que la façon la plus directe de calculer un temps de séjour moyen dans un four tournant à chargement non uniforme est l'utilisation des équations de Kramers {III.8} et {III.4}. Elles donnent une bonne approximation du profil de chargement et permettent le calcul de la vitesse de progression axiale de la charge. La relation de Ronco {III.5} est également satisfaisante pour le calcul du temps de séjour, lorsque le profil de chargement est connu. Mais bien que les résultats obtenus par ces relations soient satisfaisants, celles-ci ne sont pas basées sur des hypothèses réalistes. En effet, le temps passé en surface du lit est toujours négligé dans ce type de calcul basé sur la description du mouvement d'un grain. Or, dans notre cas, le temps passé dans la couche supérieure du talus est loin d'être négligeable puisqu'il représente environ 30% du temps de séjour total comme nous le verrons plus loin. Cela signifie qu'un calcul géométrique n'est pas à même de décrire correctement le mouvement d'une particule au sein de la charge dans un four tournant.

Des essais complémentaires ont été effectués pour tester la relation de Kramers pour le profil de chargement. La vitesse de rotation a été modifiée en conservant le même débit de solide dans le four (figure III.12), puis le débit a été modifié à vitesse de rotation constante (figure III.13). Ces essais ont été effectués sans débordement afin de contrôler le débit de solide dans le four. Comme cela a été mentionné plus haut, le taux de remplissage à l'entrée du four est donc une conséquence de la vitesse de rotation et du débit de solide, la sortie s'effectuant sans diaphragme. La hauteur de chargement côté enfournement est bien évaluée par le modèle mais le profil complet est moins bien représenté qu'au cours des essais

précédents. Ceci est sans doute dû au fait que le régime permanent n'était pas tout à fait atteint lors de l'arrêt du four pour la mesure du profil de chargement.

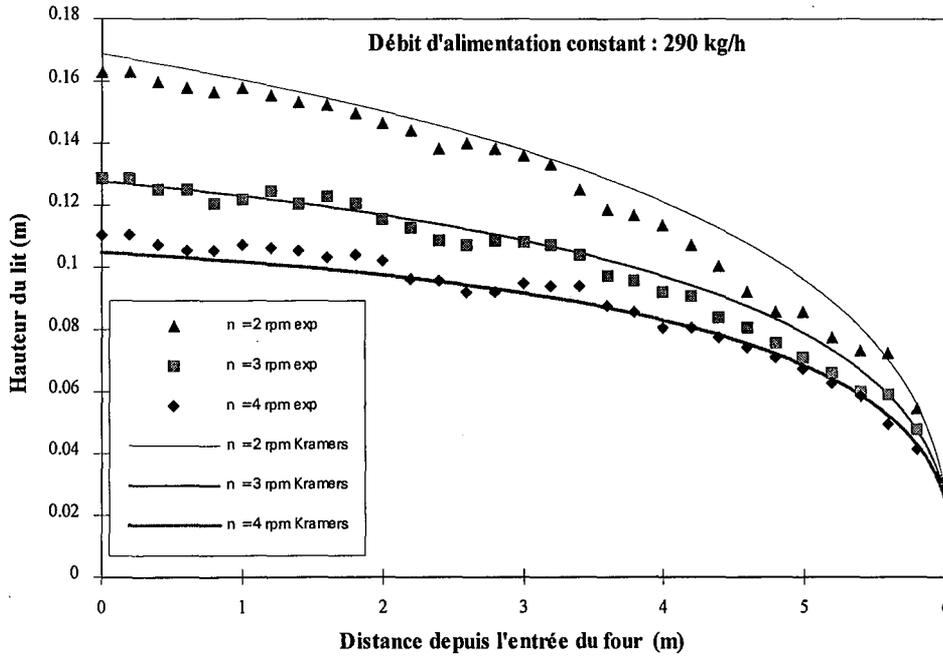


Figure III.12 : Profils de chargement pour différentes vitesses de rotation à débit d'alimentation constant

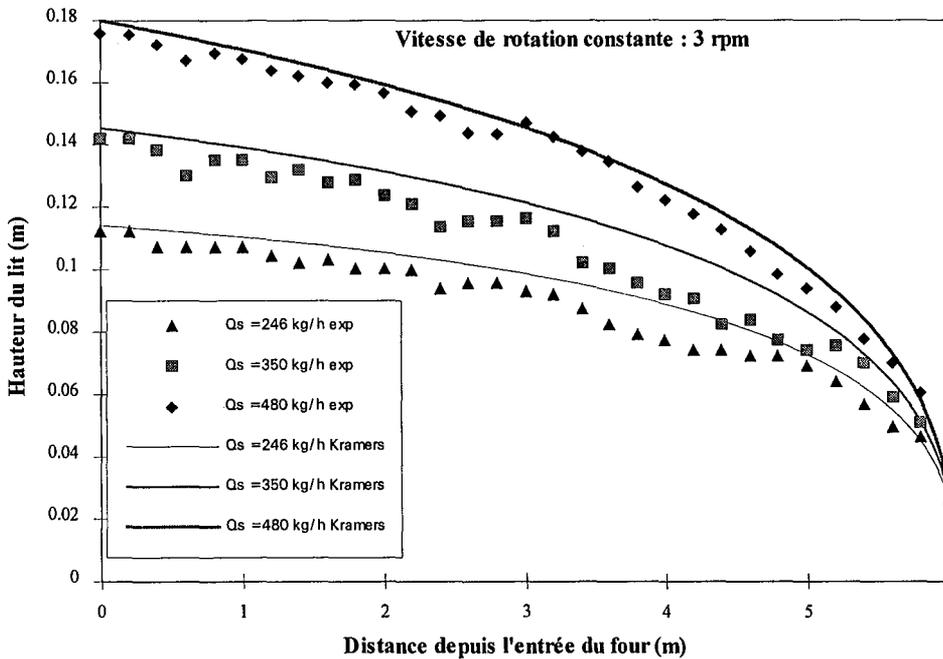


Figure III.13 : Profils de chargement pour différents débits d'alimentation à vitesse de rotation constante

III.2.2.3 DISTRIBUTION DES TEMPS DE SEJOUR

La technique de traçage utilisée donne directement accès à la courbe de distribution des temps de séjour. Celle-ci a été interprétée par le modèle d'écoulement piston à dispersion axiale (cf. Villermaux [33]) où le nombre de Peclet est donné par :

$$Pe = 2 \tau^2 / \sigma^2 \quad \{\text{III.15}\}$$

Tous les essais à remplissage uniforme dans le four et à la vitesse de rotation de 2 tr/min ont donné un nombre de Peclet voisin de 310 (figure III.14). Or lorsque le Peclet est supérieur à 100, le système est proche de l'écoulement piston et la courbe de distribution des temps de séjour est pratiquement une gaussienne. Ainsi l'écoulement des grains dans le four tournant est très proche de l'écoulement piston et ne semble pas être affecté par le taux de remplissage.

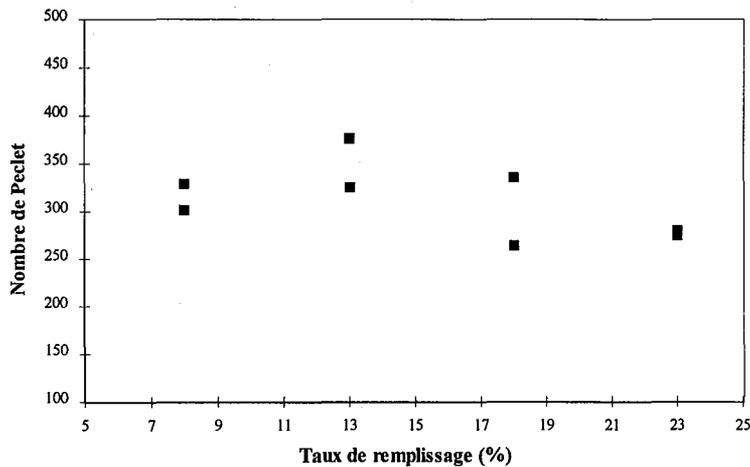


Figure III.14 : Nombre de Peclet en fonction du taux de remplissage (2 essais par valeur)
(remplissage uniforme, vitesse de rotation : 2 tr/min)

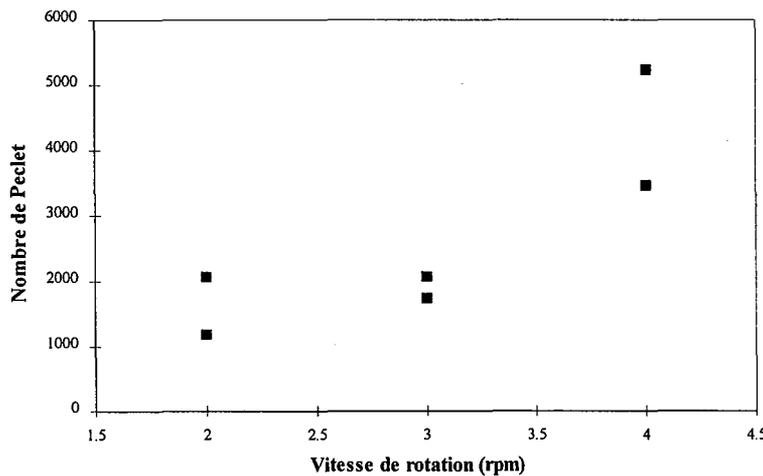


Figure III.15 : Nombre de Peclet en fonction de la vitesse de rotation (2 essais par valeur)
(taux de remplissage à l'entrée : 23%, pas de diaphragme de sortie)

Le nombre de Peclet était supérieur (proche de 1500) dans le cas d'un chargement non uniforme à la même vitesse de rotation de 2 tr/min (figure III.15). Ce nombre augmente avec la vitesse de rotation, l'écoulement se rapprochant toujours du régime d'écoulement piston.

III.2.2.4 FRACTION DU TEMPS DE SEJOUR PASSEE EN SURFACE DU LIT

La fraction du temps de séjour passée par une particule en surface du lit a été évaluée à l'aide des enregistrements vidéo du mouvement d'un grain. Elle est très influencée par le taux de remplissage mais semble indépendante de la vitesse de rotation (figure III.16). L'équation {III.14} représente bien les variations expérimentales observées. Dans un four à chargement non uniforme, la fraction du temps de séjour passée en surface augmente lorsque la hauteur de la charge diminue. Ce résultat doit être pris en compte pour le calcul des échanges de chaleur entre le gaz et le solide car il peut avoir une influence sur le taux de conversion du produit.

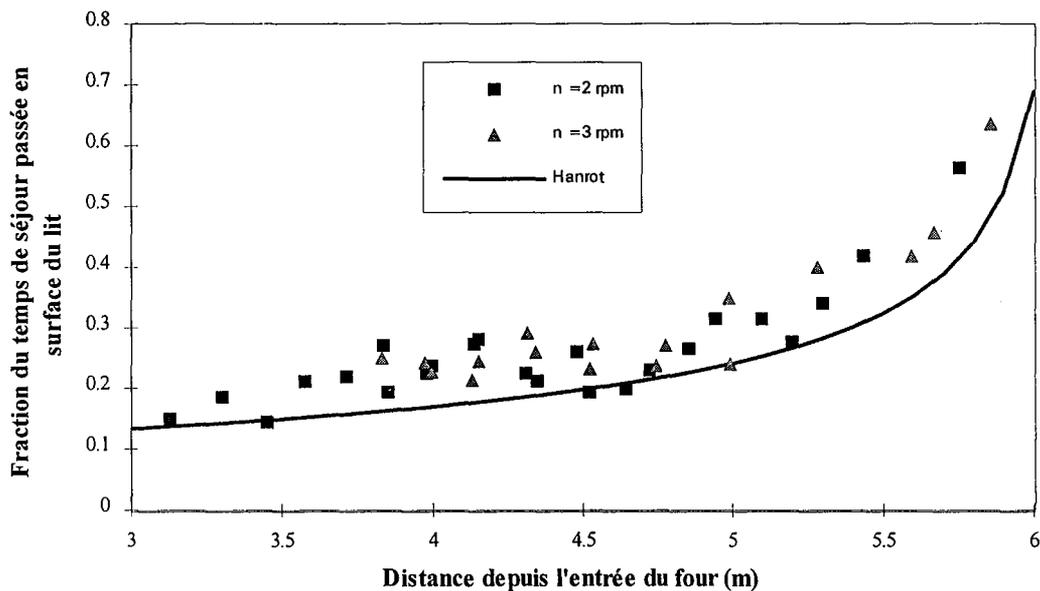


Figure III.16 : Fraction du temps de séjour passée en surface du lit le long du four (taux de remplissage à l'entrée : 23 %, pas de diaphragme de sortie)

Les mesures de vitesse de particule effectuées à partir des enregistrements à taux de remplissage constant montrent que la vitesse de progression axiale et la vitesse vraie des particules en surface du talus sont directement proportionnelles à la vitesse de rotation (figures III.17 et III.18). C'est pourquoi la fraction du temps de séjour passée en surface du lit ne dépend pas de la vitesse de rotation.

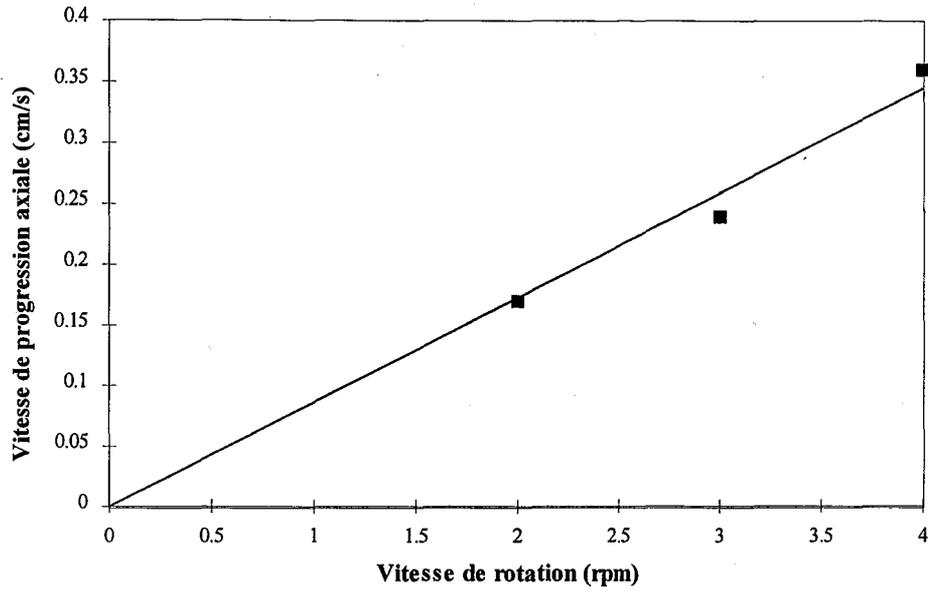


Figure III.17 : Vitesse de progression axiale en fonction de la vitesse de rotation
(taux de remplissage uniforme : 18%)

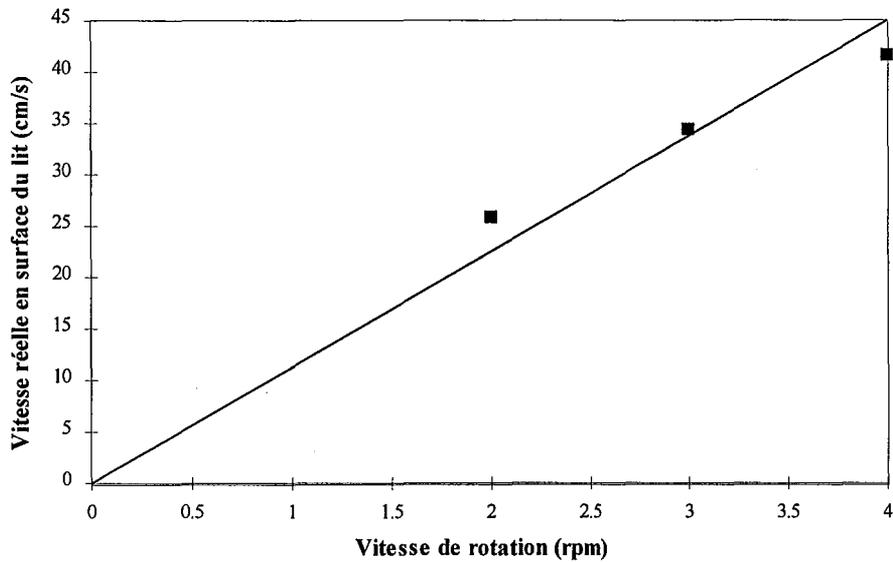


Figure III.18 : Vitesse réelle sur le talus en fonction de la vitesse de rotation
(taux de remplissage uniforme : 18%)

III.2.2.5 COMPARAISON DES RESULTATS OBTENUS AVEC LE CHARBON ET LE COKE

Les temps de séjour moyens obtenus pour différents taux de remplissage pour le charbon et le coke sont semblables, l'écart maximum étant de 5% (figure III.19). Les profils de chargement mesurés avec les mêmes diaphragmes et la même vitesse de rotation sont également très proches (écart maximum 4%, figure III.20). Ainsi, malgré des densités très différentes, du charbon et du coke de granulométries voisines se comportent de façon semblable dans le four tournant. Ce résultat est important pour la modélisation de la pyrolyse du charbon en four tournant puisque les mêmes équations pourront être employées sur toute la longueur du four (si l'on considère que la température n'a pas d'influence sur le mouvement des grains).

Nous pouvons remarquer que les équations de Kramers donnent également des résultats identiques pour le charbon et le coke. En effet, les seuls paramètres liés aux propriétés du matériau sont l'angle de repos dynamique β , identique pour les deux matériaux, et le débit volumique Q_v qui s'est avéré constant.

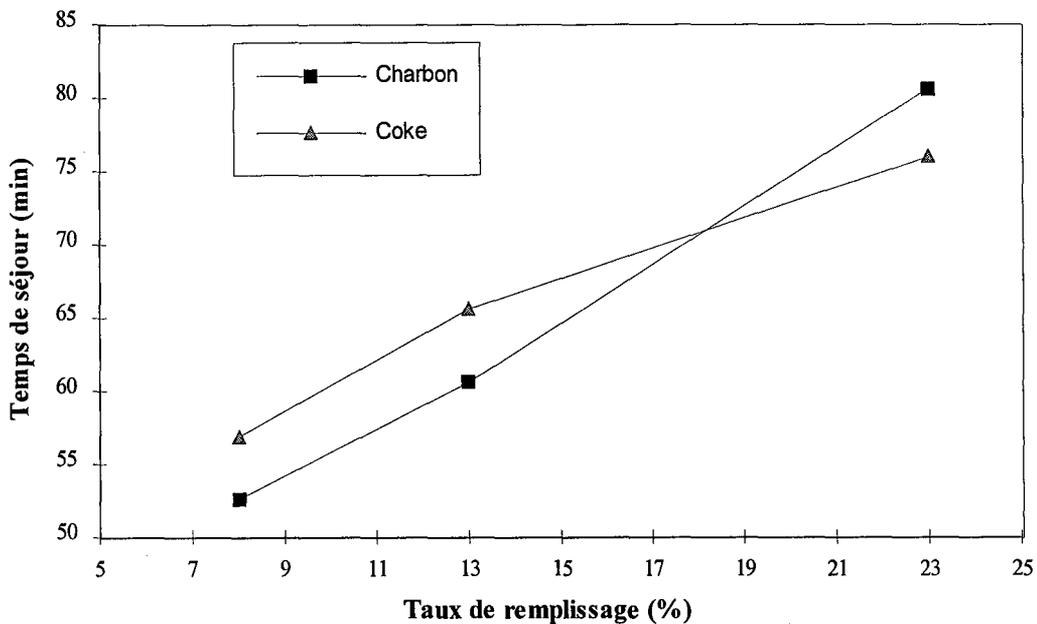


Figure III.19 : Comparaison entre les temps de séjour moyens obtenus avec le charbon et le coke (taux de remplissage uniforme, vitesse de rotation : 2 tr/min)

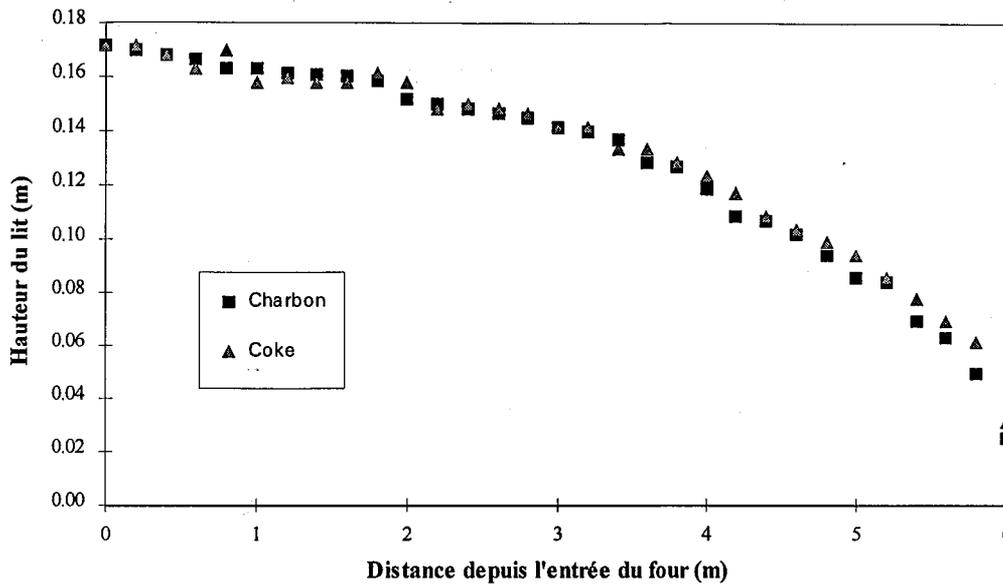


Figure III.20 : Profils de chargement obtenus avec le charbon et le coke (taux de remplissage à l'entrée : 23%, pas de diaphragme de sortie)

III.3 Application au four tournant industriel

III.3.1 Modélisation

Les équations de Kramers [26] permettent le calcul du profil de chargement et de la vitesse de progression axiale de la charge. Cette dernière est également évaluée par la formule de Ronco [28]. Les résultats sont présentés figures III.21 et III.22 pour les conditions de marches normales du four tournant industriel (vitesse de rotation : 1 tr/min, débit de charbon : 22,4 t/h). Il apparaît ainsi que la hauteur de la charge ne diminue que de 10% sur les 40 premiers mètres du four.

Le temps de séjour calculé est de **118 minutes** d'après Kramers et de **108 minutes** d'après Ronco. La fraction du temps de séjour passée en surface du talus, évaluée d'après Hanrot [2], est représentée figure III.23. Sur les 40 premiers mètres du four, une particule ne passe environ que 4% du temps sur le talus. Au-delà des 40 mètres, le temps passé en surface s'accroît rapidement pour atteindre un maximum de 13 % du temps de séjour.

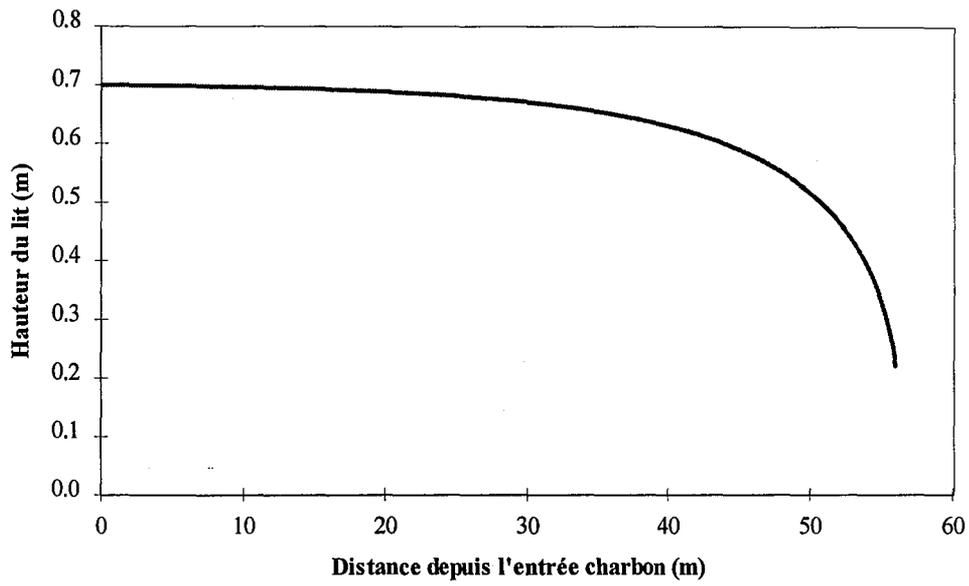


Figure III.21 : Profil de chargement du four industriel d'après Kramers [26]

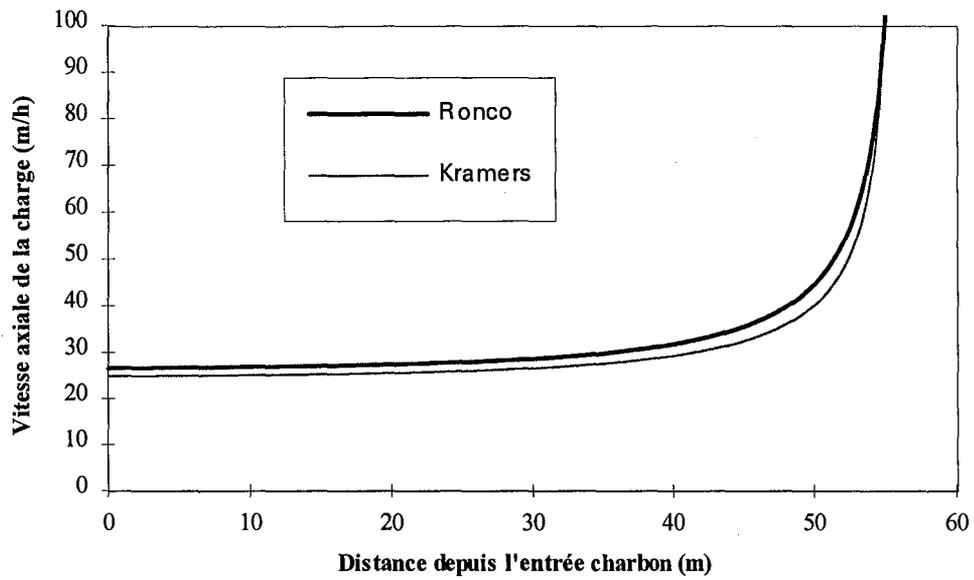


Figure III.22 : Vitesse axiale de la charge dans le four industriel d'après Kramers [26] et Ronco [28]

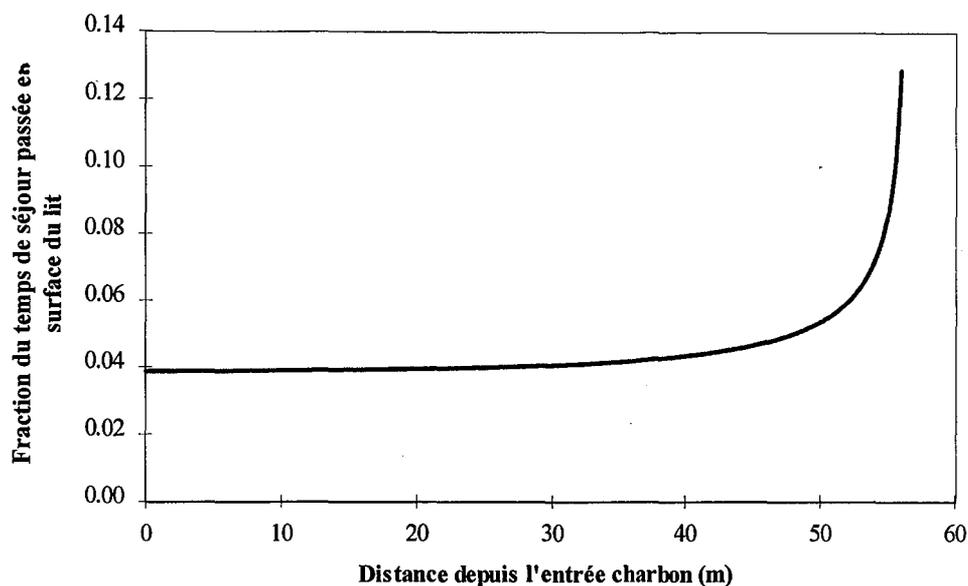


Figure III.23 : Fraction du temps de séjour passée en surface du lit dans le four industriel d'après Hanrot [2]

III.3.2 Validation du modèle

Afin de valider la modélisation de l'écoulement au niveau du four industriel, une mesure du temps de séjour a été effectuée. La difficulté résidait dans le choix du traceur à utiliser. Il devait être de forme et de densité comparables à celles du charbon, et résistant à une température de 1000°C. Le matériau choisi a été la pouzzolane, pierre volcanique très poreuse et de couleur brune. Sa densité est d'environ 1,4 donc légèrement supérieure à celle du charbon (de densité 1,25). Les grains choisis avaient environ 20 mm de diamètre.

Deux cents grains ont été placés dans la goulotte d'introduction et comptabilisés à la sortie du couloir vibrant. Seulement 30 grains ont pu être récupérés avec un temps de séjour moyen de 107,6 minutes (écart type : 1,9 minutes). Deux essais ont été effectués pour connaître le temps de passage de la sortie du four à la sortie du couloir vibrant. Le temps moyen mesuré était de 1,7 minutes. Le temps de séjour mesuré dans le four industriel est donc de **106 minutes**, ce qui est très proche de la valeur calculée avec la formule de Ronco (108 minutes).

III.4 Conclusion

Cette étude a permis d'approfondir nos connaissances sur le mouvement de la charge en four tournant et de déterminer les corrélations adaptées à la modélisation du transport des grains.

Les essais en four pilote ont permis d'établir que le régime d'écoulement dans le four tournant est très proche de l'écoulement piston. Le temps de séjour moyen augmente avec le taux de remplissage et le profil de chargement ne dépend pas de la vitesse de rotation dans un four tournant alimenté par débordement. Les équations de Kramers [26] permettent d'estimer avec une bonne précision le profil de chargement et le temps de séjour dans le four. La relation de Ronco [28] pour le temps de séjour peut également être utilisée lorsque le profil de chargement est connu.

La fraction du temps de séjour passée en surface du lit diminue lorsque le taux de remplissage augmente, mais elle ne semble pas être affectée par la vitesse de rotation. Elle est bien évaluée par la corrélation proposée par Hanrot [2].

Le charbon et le coke se comportent de façon semblable dans le four : les profils de chargement et les temps de séjour sont très proches pour les deux matériaux. En faisant l'hypothèse que la température et la dévolatilisation des grains n'ont pas d'influence sur la vitesse de progression de la charge, il sera donc possible d'utiliser la même équation de vitesse des particules sur l'ensemble du four.

Chapitre IV

Transferts de chaleur

Les échanges thermiques jouent un rôle primordial dans le procédé de pyrolyse du charbon en four tournant. Du point de vue des transferts de chaleur, ce réacteur peut être considéré comme un échangeur gaz-solide à contre-courant. Sur la plus grande partie du four (les 45 premiers mètres), le gaz constitue la source de chaleur, chauffant à la fois le solide et la paroi interne. La paroi joue alors le rôle de régénérateur : au cours de la rotation, elle se réchauffe au contact du gaz et restitue une partie de cette énergie en passant sous le solide. Sur la deuxième partie du four, la charge constitue la source d'énergie et chauffe à la fois le gaz et la paroi interne. Tout le long du tube, une partie de la chaleur reçue par la paroi est dissipée dans l'air ambiant.

Les transferts de chaleur entre le gaz, le solide et la paroi s'effectuent par rayonnement, convection et conduction (figure IV.1). Compte tenu de la température élevée du gaz (supérieure à 1000°C sur une grande partie du four), le rayonnement du gaz vers le solide (Q_{rgs}) constitue une source importante d'énergie. Il faut également tenir compte du rayonnement gaz/paroi (Q_{rgp}) et paroi/solide (Q_{rps}). Les transferts par convection comprennent les échanges gaz/paroi (Q_{cgp}) et gaz/solide (Q_{cgs}). Enfin, le phénomène de régénération s'effectue par conduction et rayonnement de la paroi vers le solide qui est à son contact (Q_{cps}).

Les pertes thermiques sont dues à la conduction à travers le béton réfractaire. Elles sont dissipées dans l'atmosphère par convection et rayonnement dans l'air ambiant (Q_{cpa} et Q_{rpa}).

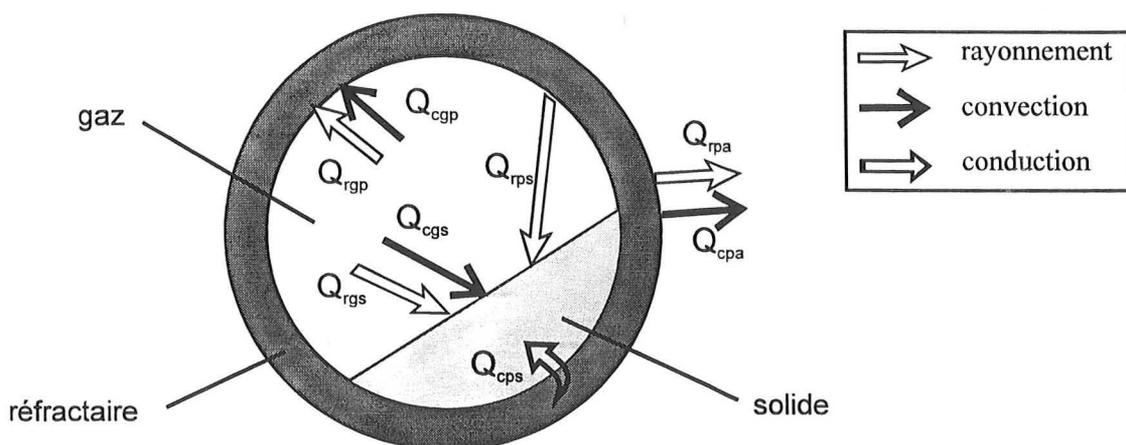


Figure IV.1 : Transferts de chaleur dans une section du four tournant

Cette description des échanges de chaleur en four tournant comporte deux hypothèses importantes. D'une part, il n'est fait état que des transferts se produisant dans une section perpendiculaire à l'axe du tube. Les échanges longitudinaux, en dehors des quantités de chaleur transportées par le gaz et le solide, sont donc négligés. D'autre part, le rayonnement de la paroi interne du four vers elle-même n'est pas pris en compte. Ces hypothèses seront discutées par la suite.

Ce chapitre a pour objet l'élaboration d'un modèle de transfert de chaleur suffisamment complet pour prendre en compte tous les phénomènes qui viennent d'être cités, tout en restant relativement simple pour permettre son exploitation dans le cadre du modèle global de four tournant.

IV.1 Phénomènes de rayonnement à l'intérieur du four

On ne s'intéresse ici qu'aux transferts gaz/paroi, gaz/solide et paroi découverte/solide. Les phénomènes de rayonnement se produisant entre la paroi couverte et le solide qui est à son contact sont pris en compte à travers un coefficient de transfert global comprenant également la conduction (cf. § IV.3).

IV.1.1 Propriétés radiatives du gaz, du solide et de la paroi

IV.1.1.1 EMISSIVITE ET ABSORPTIVITE DU GAZ

L'émissivité du gaz présent dans le four tournant dépend de sa teneur en composés absorbants tels que H_2O , CO_2 , CO et CH_4 ainsi que de la présence de poussières.

Hottel et Sarofim [34] ont publié une série d'abaques permettant le calcul de l'émissivité hémisphérique totale d'un gaz pur en fonction de sa pression et de la longueur de libre parcours moyen L_m . Ils font également part d'une formule pour le cas très fréquent en combustion du mélange $H_2O + CO_2$:

$$\varepsilon_g = C_{CO_2} \varepsilon_{CO_2} + C_{H_2O} \varepsilon_{H_2O} - \Delta\varepsilon \quad \{IV.1\}$$

L'émissivité du gaz ε_g dépend de l'émissivité de chaque constituant (ε_{CO_2} et ε_{H_2O}) calculée à l'aide de sa pression partielle corrigée par un coefficient (C_{CO_2} et C_{H_2O}) qui tient compte de la pression totale. Le recouvrement des bandes spectrales d'émission des deux gaz est pris en compte par le terme correctif $\Delta\varepsilon$.

La longueur de libre parcours moyen en four rotatif peut être évaluée par l'équation de Gorog [35] :

$$L_m = 0,95 (D - H) \quad \{IV.2\}$$

où D est le diamètre interne du four et H la hauteur de la charge.

On ne dispose pas pour l'instant de moyen simple de calculer l'émissivité d'un mélange de gaz plus complexe. Cependant, dans le cas qui nous intéresse, la contribution des espèces autres que CO_2 et H_2O reste limitée. D'après les mesures effectuées sur le four tournant de Carling, le titre molaire du gaz en CO ne dépasse pas 9,1 %, ce qui représente une contribution maximale sur l'émissivité de 0,084. Quant au méthane, il atteint 2,7 % côté charbon, soit une contribution maximale de 0,089 sur l'émissivité. Les contributions réelles de ces gaz sont inférieures à ces valeurs qui ne tiennent pas compte du recouvrement des spectres d'émission. De plus, ces concentrations maximales ne concernent qu'une faible longueur de four (les 10 premiers mètres).

Un problème plus important concerne la contribution des poussières (suies et envols de charbon) aux phénomènes de rayonnement. Cette contribution est généralement constituée d'un terme additif sur l'émissivité, qui reste difficile à évaluer dans notre cas puisqu'on ne dispose pas d'étude expérimentale sur la génération des poussières dans le four tournant de Carling.

Lorsque l'on fait l'hypothèse du gaz gris, l'absorptivité est égale à l'émissivité. Dans le cas d'un gaz réel, le coefficient d'absorption peut également être calculé au moyen d'abaques. Gorog [36], après avoir développé un modèle complet de rayonnement en four tournant avec un gaz réel contenant CO_2 et H_2O , évalue les effets de l'hypothèse du gaz gris. Lorsque les émissivités du solide et de la paroi sont supérieures à 0,8, l'erreur commise sur l'échange gaz-solide résultant de cette approximation est inférieure à 20 %.

IV.1.1.2 EMISSIVITE DU SOLIDE ET DE LA PAROI

Une mesure expérimentale de l'émissivité du charbon en cours de pyrolyse n'est pas facile à réaliser. Des essais effectués par E. Lecerf au cours d'un stage au LSGC ont donné des valeurs comprises entre 0,9 et 1. La méthode utilisée consistait à viser un grain de charbon en cours de pyrolyse à l'aide d'un pyromètre optique. La difficulté est alors de déterminer précisément la température du grain et d'éviter les perturbations dues au rayonnement des parois du four.

L'inhomogénéité de la surface du charbon est également un facteur d'erreur important, qui explique la disparité des résultats de la littérature à ce sujet. Les valeurs de l'émissivité sont généralement comprises entre 0,8 et 1. De plus, le charbon est le plus souvent considéré comme un corps gris. De récentes mesures effectuées par Solomon [37] sur du charbon pulvérisé indiquent au contraire que si l'émissivité est de 0,9 dans certaines régions du spectre d'émission, elle peut diminuer fortement dans d'autres zones du spectre. Le solide se rapproche d'un corps gris à forte émissivité lorsque le degré d'avancement de la pyrolyse augmente et lorsque la taille des particules augmente.

L'émissivité de la paroi interne est sans doute très différente de celle du béton réfractaire. Tout le long du four, des particules de charbon ou de coke s'incrudent dans la paroi et le carbone diffuse dans le béton. De plus, un dépôt de graphite est présent dans la zone de craquage des goudrons.

Que ce soit pour le charbon ou pour la paroi, l'émissivité devra donc être choisie de façon arbitraire entre 0,8 et 1. L'influence de cette valeur sur les résultats du modèle de four tournant sera étudiée.

IV.1.2 Modèle de rayonnement en four tournant

Les travaux les plus poussés dans le domaine sont ceux de Gorog [36] et Barr [38-39]. La description qui est faite des échanges thermiques entre le gaz, la charge et la paroi est détaillée à l'aide de la méthode dite "des n-zones" de Hottel [34]. Gorog a ainsi pu montrer que l'essentiel des échanges radiatifs est localisé dans une section du four : le flux entre deux surfaces (ou entre un volume gazeux et une surface) distantes suivant l'axe de plus d'un diamètre est négligeable.

Différentes approches simplifiées des transferts de chaleur par rayonnement sont utilisées dans la littérature. Perron [40] les passe en revue de façon assez détaillée. La plupart des équations proposées ont la forme suivante :

Flux gaz/grain en W/mètre de four :

$$Q_{rgs} = A_{rgs} \sigma \Psi_1 (T_g^4 - T_s^4) \quad \text{(IV.3)}$$

avec $A_{rgs} = D \sin (\omega/2)$

Flux gaz/paroi en W/mètre de four :

$$Q_{rgp} = A_{rgp} \sigma \Psi_2 (T_g^4 - T_{pi}^4) \quad \text{(IV.4)}$$

avec $A_{rgp} = D (\pi - \omega/2)$

Flux paroi/grain en W/mètre de four :

$$Q_{rps} = A_{rps} \sigma \Psi_3 (T_{pi}^4 - T_s^4) \quad \text{(IV.5)}$$

avec $A_{rps} = D \sin (\omega/2)$

où ω est l'angle de remplissage du four et A_i la surface d'échange en m^2/m de four.

Le tableau IV.1 répertorie les expressions des coefficients Ψ_i lorsque l'on fait l'hypothèse du gaz gris.

Afin de comparer les différentes équations disponibles, le tableau IV.2 donne la valeur des coefficients Ψ_i dans un cas particulier ($\epsilon_s = 0,8$, $\epsilon_p = 0,9$ et $\epsilon_g = 0,4$). En dehors de l'expression de Sass [41], l'écart maximum constaté sur ces résultats est de 10 %.

Référence	Ψ_1	Ψ_2	Ψ_3
Sass [41]	ε_g	ε_g	$\frac{1}{2} \varepsilon_s$
Hottel [34]	$\varepsilon_g \frac{\varepsilon_s + 1}{2}$	$\varepsilon_g \frac{\varepsilon_p + 1}{2}$	-
Manitius [42]	$\varepsilon_g \varepsilon_s$	$\varepsilon_g \varepsilon_p$	$\varepsilon_p \varepsilon_s (1 - \varepsilon_g)$
Brimacombe [43]	$\left(\frac{1}{\varepsilon_g} + \frac{1}{\varepsilon_s} - 1 \right)^{-1}$	$\left(\frac{1}{\varepsilon_g} + \frac{1}{\varepsilon_p} - 1 \right)^{-1}$	-
Ketslach [44]	$\varepsilon_g \varepsilon_s [1 + \Theta (1 - \varepsilon_g)(1 - \varepsilon_p)] \Omega$ $\Theta = \frac{\sin(\pi - \omega/2)}{\pi - \omega/2}$ $\Omega = \frac{1}{1 - (1 - \varepsilon_g)(1 - \varepsilon_p)[1 - \Theta(1 - (1 - \varepsilon_g)(1 - \varepsilon_s))]}$	$\varepsilon_g \varepsilon_p [1 + \Theta (1 - \varepsilon_g)(1 - \varepsilon_s)] \Omega$	$\varepsilon_p \varepsilon_s (1 - \varepsilon_g) \Omega$

Tableau IV.1 : Modèles de rayonnement issus de la littérature

Référence	Ψ_1	Ψ_2	Ψ_3
Sass [41]	0.40	0.40	0.40
Hottel [34]	0.36	0.38	-
Manitius [42]	0.32	0.36	0.43
Brimacombe [43]	0.36	0.38	-
Ketslach [44]	0.34	0.39	0.45

Tableau IV.2 : Valeurs de Ψ_i calculées pour $\varepsilon_s = 0,8$, $\varepsilon_p = 0,9$, $\varepsilon_g = 0,4$ et $\omega = 120^\circ$

Les résultats de Gorog [36] obtenus à l'aide d'un modèle plus rigoureux permettent d'évaluer la précision des modèles simplifiés. Les expressions de Manitius [42] conduisent à l'écart le plus faible (inférieur à 5 %) sur la quantité de chaleur rayonnée vers la charge.

Ces modèles permettent donc de prendre en compte d'une manière relativement simple les différents flux de chaleur échangés par rayonnement dans une section du four tournant. Ils représentent en fait un bilan thermique de l'échange radiatif : le rayonnement de la paroi vers elle-même est ainsi pris en compte dans ces expressions, ce qui justifie la description des échanges thermiques faite en tête de ce chapitre.

IV.2 Phénomènes de convection à l'intérieur du four

Les transferts convectifs ont lieu entre le gaz et les surfaces balayées par ce gaz : paroi découverte et surface du lit de grains. Compte tenu de la prédominance des phénomènes radiatifs à haute température, la convection joue dans notre cas un rôle mineur. Les flux de chaleur correspondants sont donnés par :

Flux gaz/paroi en W/mètre de four :

$$Q_{cpg} = h_{cpg} A_{cgp} (T_{pi} - T_g) \quad \{IV.6\}$$

avec $A_{cgp} = D (\pi - \omega/2)$

Flux gaz/solide en W/mètre de four :

$$Q_{cgs} = h_{cgs} A_{cgs} (T_g - T_s) \quad \{IV.7\}$$

avec $A_{cgs} = D \sin (\omega/2)$

Le coefficient de transfert peut être déterminé par l'intermédiaire du nombre de Nusselt. La géométrie du système permet d'utiliser une des corrélations du type $Nu_D = f(Re_D, Pr)$ disponibles pour l'écoulement d'un gaz à l'intérieur d'un tube cylindrique. Il faut cependant tenir compte de la nature très différente des surfaces balayées : béton réfractaire ou lit de grains en mouvement ne conduiront pas nécessairement au même coefficient de transfert.

IV.2.1 Convection gaz/paroi

Pour un écoulement turbulent dans un cylindre tel que : $10 < L/D < 400$, Kreith et Black [45] donnent la relation suivante :

$$Nu_D = \frac{h_{cgp} D}{\lambda_g} = 0,036 Re_D^{0,8} Pr^{0,33} \left(\frac{D}{L}\right)^{0,055} \quad \{IV.8\}$$

Les études expérimentales qui ont été menées aboutissent à des valeurs de h_{cgp} comprises entre 2 et 15 $W.m^{-2}.K^{-1}$ (cf. [2]). Par ailleurs, Tsheng [46-47] ne trouve pas d'effet de la vitesse de rotation sur le transfert gaz/paroi.

L'équation {IV.8} appliquée au cas du four tournant de Carling donne une valeur pour h_{cgp} d'environ 10 $W.m^{-2}.K^{-1}$.

IV.2.2 Convection gaz/solide

La formule {IV.8} n'est pas adaptée dans le cas de la convection gaz/charge. En effet, l'expérience montre que le coefficient de transfert h_{cgs} est supérieur à h_{cgp} . Tsheng obtient un facteur 10 entre les deux coefficients alors que Barr [38-39], à l'aide de mesures plus précises, trouve un rapport de 1 à 2 seulement. Ces résultats ne sont toutefois pas contradictoires car

dans les deux cas la température de paroi considérée pour évaluer h_{cgp} n'est pas la même : alors que Tsheng utilise une valeur moyenne de la température sur l'épaisseur de la paroi, Barr considère la température de la surface interne, ce qui conduit à une valeur du coefficient de transfert très différente.

D'autre part, il résulte de ces expériences que la vitesse de rotation et la taille des grains ne semblent pas avoir d'influence sur le transfert gaz/solide.

Compte tenu de la valeur calculée pour h_{cgp} dans notre cas, la valeur de h_{cgs} se situerait donc entre 10 et 20 $W.m^{-2}.K^{-1}$.

IV.3 Conduction paroi couverte/solide

La rotation du four introduit une variation de température de la paroi interne. Par exemple, sur les 45 premiers mètres du four, la paroi s'échauffe au contact du gaz et se refroidit en passant sous la charge. Dans la partie inférieure du lit de particules, le mouvement des grains est solidaire de la paroi du four. Le transfert thermique s'effectue donc essentiellement par conduction et rayonnement. Les phénomènes de rayonnement (et dans une moindre mesure de convection) qui interviennent dans les interstices entre la paroi et les grains sont généralement pris en compte par un coefficient de transfert global paroi couverte/solide. Le flux de chaleur transféré, en W/mètre de four, s'exprime de la façon suivante :

$$Q_{cps} = h_{cps} A_{cps} (T_{pi} - T_s) \quad \{IV.9\}$$

avec $A_{cps} = \omega D / 2$

De nombreux modèles (cf. [38]) sont basés sur la théorie de la pénétration de la chaleur et aboutissent à une équation du type :

$$h_{cps} = \frac{2 \lambda_{eff}}{\sqrt{\pi \alpha_{eff} \tau_c}} \quad \{IV.10\}$$

où λ_{eff} et α_{eff} sont respectivement la conductivité et la diffusivité effectives du lit de grains et τ_c le temps de contact paroi/charge.

Cette formule donnant des valeurs élevées par rapport aux mesures expérimentales, elle a été modifiée en ajoutant une résistance de contact paroi/particule sous la forme d'un coefficient de transfert h_f [38]. Les corrélations obtenues sont difficilement exploitables, le calcul de h_f nécessitant la connaissance de nombreux paramètres.

En se basant sur l'équation {IV.10} écrite sous forme adimensionnelle, Tsheng [46] a établi une nouvelle corrélation à partir des résultats expérimentaux disponibles :

$$h_{cps} = 11,6 \frac{\lambda_{eff}}{A_{cps}} Go^{0,3} \quad \{IV.11\}$$

$$\text{avec : } Go = \frac{n D^2 \omega}{4 \alpha_{\text{eff}}}$$

Le calcul du coefficient h_{cps} nécessite la connaissance des propriétés conductrices de la charge λ_{eff} et α_{eff} . Celles-ci peuvent être évaluées par une corrélation basée sur un modèle de rayonnement entre sphères dans un lit statique donnée par Zehner et Schlünder [48] :

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda_g \left[(1 - \sqrt{1 - \varepsilon_{\text{lit}}}) (1 + \varepsilon_{\text{lit}} C) + \frac{2 \sqrt{1 - \varepsilon_{\text{lit}}}}{1 + (C - B) \Lambda} A \right] \quad \{\text{IV.12}\}$$

avec ε_{lit} : porosité du lit

$$A = \frac{[1 + (C - 1) \Lambda] B}{[1 + (C - B) \Lambda]^2} \text{Ln} \left(\frac{1 + C \Lambda}{B \Lambda} \right) - \frac{B - 1}{1 + (C - B) \Lambda} + \frac{B + 1}{2B} (C - B)$$

$$B = b \left(\frac{1 - \varepsilon_{\text{lit}}}{\varepsilon_{\text{lit}}} \right)^{\frac{10}{9}}$$

$$C = 0,227 \frac{\varepsilon_s}{2 - \varepsilon_s} \left(\frac{T_s + 273}{100} \right)^3 \frac{D_p}{\lambda_g}$$

$$\Lambda = \frac{\lambda_g}{\lambda_s}$$

Pour la plupart des lits de grains, λ_{eff} est nettement plus faible que la conductivité du solide λ_s . Cependant, étant donnée la faible conductivité thermique du charbon, la conductivité effective du lit s'avère ici être légèrement supérieure à λ_s (figure IV.2).

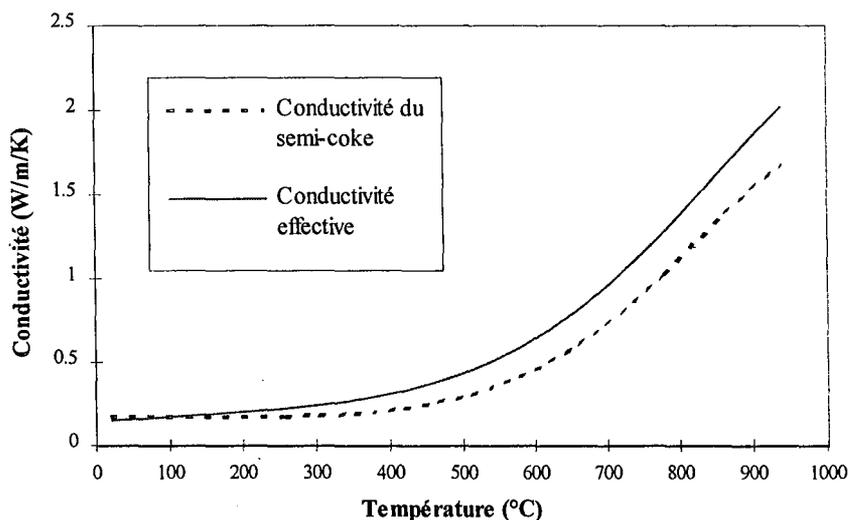


Figure IV.2 : Comparaison de la conductivité du semi-coke et de la conductivité effective du lit de grains en fonction de la température

La figure IV.3 présente le résultat du calcul de h_{cps} en fonction de la température effectué à l'aide de l'équation {IV.11}. En raison de la forte augmentation de la conductivité du semi-coke, le coefficient de transfert passe de 37 à 170 $W.m^{-2}.K^{-1}$ au cours de la pyrolyse.

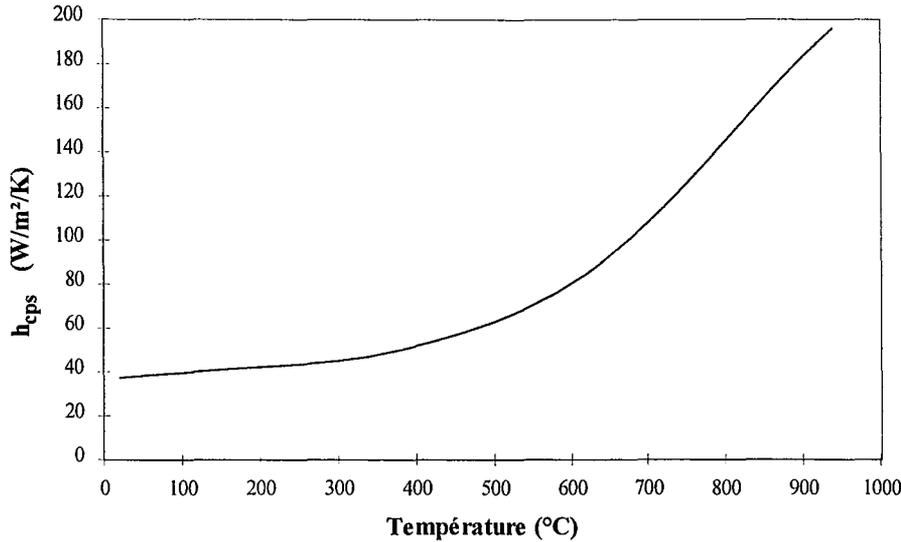


Figure IV.3 : Coefficient de transfert par conduction paroi/solide en fonction de la température d'après Tsheng [46]

IV.4 Pertes thermiques

Les pertes thermiques sont dues aux transferts radiatifs et convectifs de la paroi extérieure vers l'air ambiant.

IV.4.1 Rayonnement paroi/air ambiant

Le flux de chaleur transféré par rayonnement de la paroi extérieure dans l'air ambiant est donné par l'expression suivante (en W/m^2 de four) :

$$Q_{rpa} = \sigma \varepsilon_{pe} A_{rpa} (T_{pe}^4 - T_a^4) \quad \{IV.13\}$$

avec : $A_{rpa} = 2 \pi R_{pe}$

La paroi extérieure du four tournant est constituée d'acier fortement oxydé. Or l'émissivité d'un métal se rapproche de 1 lorsque son oxydation augmente. L'émissivité de la paroi extérieure (ε_{pe}) peut donc être estimée à une valeur comprise entre 0,9 et 1.

IV.4.2 Convection paroi/air ambiant

Les pertes thermiques par convection à la paroi se calculent par :

$$Q_{cpa} = h_{cpa} A_{cpa} (T_{pe} - T_a) \quad \{IV.14\}$$

avec : $A_{cpa} = A_{rpa} = 2 \pi R_{pe}$

IV.4.2.1 CALCUL THEORIQUE DU COEFFICIENT DE TRANSFERT

Le transfert de chaleur par convection entre la paroi extérieure et l'air ambiant s'effectue en fonction des conditions atmosphériques par convection naturelle ou par convection forcée.

Ozisik [49] propose la relation suivante donnant le Nusselt moyen pour la convection naturelle autour du four :

$$Nu = 0,6 + \frac{0,387 Ra^{1/6}}{\left[1 + (0,559 / Pr)^{9/16}\right]^{8/27}} \quad \{IV.15\}$$

avec : $Ra = Gr Pr$ pour $10^{-4} < Ra < 10^{12}$

En ce qui concerne la convection forcée, Ozisik [49] donne la relation suivante pour la convection entre un cylindre et l'écoulement transversal d'un gaz :

$$Nu = 0,3 + \frac{0,62 Re^{1/2} Pr^{1/3}}{\left[1 + (0,4/Pr)^{2/3}\right]^{1/4}} \left[1 + (Re/282000)^a\right]^b \quad \{IV.16\}$$

avec : $a = 5/8, b = 4/5$ pour $100 < Re < 20000$ et $400000 < Re < 10^7$

$a = 1/2, b = 1$ pour $20000 < Re < 400000$ et $Pe = Re Pr > 0,2$

La relation {IV.15} donne une valeur de $0,26 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ pour la convection naturelle avec une paroi extérieure à 175°C dans un air ambiant à 20°C . En cas de convection forcée, la relation {IV.16} indique que h_{cpa} varie de 3 à $40 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ lorsque la vitesse du vent passe de 4 à 100 km/h .

IV.4.2.2 MESURE DU COEFFICIENT DE TRANSFERT

Le calcul du coefficient h_{cpa} par la formule {IV.16} n'est valable que pour un écoulement transversal de l'air par rapport au four. De plus, la vitesse du vent est un paramètre très variable et peu facile à mesurer. Une autre méthode d'évaluation du transfert par convection à la paroi consiste à mesurer la température de la paroi extérieure (T_{pe}) au niveau du maximum de température du solide dans le four. A cet endroit les températures du gaz et

du solide sont voisines et proches de 850°C ; la température de la paroi à l'intérieur du four (T_{pi}) est donc également proche de cette valeur. La température ambiante T_a et la conductivité thermique du béton réfractaire λ_p suffisent alors pour estimer le coefficient h_{cpa} .

Dans l'hypothèse d'un régime permanent, en effet, le flux de chaleur à travers la paroi par unité de longueur est donné par : $-\lambda_p \frac{dT}{dr} 2\pi r$

Ce flux étant indépendant de r , l'intégration donne : $T(r) = A \ln(r) + B$ avec A et B constants

$$\text{ainsi : } A \ln(R_{pe}) + B = T_{pe} \quad \text{et} \quad A \ln(R_{pi}) + B = T_{pi}$$

$$\text{d'où : } A = (T_{pe} - T_{pi}) / \ln(R_{pe}/R_{pi})$$

La continuité du flux thermique à la paroi s'exprime par :

$$-\lambda_p A/R_{pe} = h_{cpa} (T_{pe} - T_{pi}) + \sigma \varepsilon_p (T_{pe}^4 - T_{pi}^4)$$

$$\text{d'où : } h_{cpa} = \frac{\sigma \varepsilon_p (T_{pe}^4 - T_{pi}^4) - \frac{\lambda_p}{R_{pe}} (T_{pe} - T_{pi}) / \ln \frac{R_{pe}}{R_{pi}}}{T_{pe} - T_{pi}} \quad \{\text{IV.17}\}$$

Les mesures effectuées sur le four tournant de Carling le 23/02/93 donnent :

$$T_{pi} = 850^{\circ}\text{C} \quad T_a = -6^{\circ}\text{C} \quad T_{pe} = 176^{\circ}\text{C}$$

soit d'après la formule {IV.17}: $h_{cpa} = 16,7 \text{ W.m}^{-2}\text{.K}^{-1}$.

Cela correspond à une vitesse du vent de 38 km/h d'après l'équation {IV.16}.

Le coefficient de transfert h_{cpa} constituera un paramètre ajustable du modèle de four tournant. Une étude de sensibilité montrera si ce paramètre a une influence notable sur les résultats du modèle.

IV.5 Transfert de chaleur dans la paroi

Le profil de température dans la paroi côté intérieur n'est en général pas permanent. Le calcul de ce profil thermique est indispensable à une évaluation correcte des flux de chaleur échangés à l'intérieur du four et des pertes thermiques.

IV.5.1 Propriétés thermophysiques du béton réfractaire

Les mesures ont été effectuées sur deux échantillons de béton issus de la paroi interne du four tournant de Carling. L'un d'eux présentait une couleur noire due à la diffusion de carbone alors que l'autre était resté de sa couleur d'origine (blanc).

- Mesure de la diffusivité thermique par la méthode "flash"

Cette méthode a été détaillée précédemment par F.Hanrot [2]. Elle consiste à produire une impulsion thermique (flash lumineux) sur une face d'un échantillon et à observer l'évolution de la température sur la face opposée. Son principal intérêt réside dans l'emploi de pastilles de matériau de tailles importantes (diamètre : 35 mm, épaisseur : 8 mm) ce qui permet d'obtenir une mesure représentative sur des matériaux très hétérogènes comme le béton réfractaire où la taille des grains peut atteindre 3 mm. Par contre, les mesures ont été faites à température ambiante car la mise en œuvre de cette technique à haute température n'est pas aisée. La précision obtenue pour ces mesures est très bonne : de l'ordre de 0,5 %.

	Béton blanc	Béton noir
Diffusivité thermique (mm ² /s)	0,863	1,113

Tableau IV.3 : Mesures de diffusivité thermique par la méthode "flash"

- Mesure de la diffusivité thermique par la méthode "laser flash"

Le principe de cette technique est identique à celui de la méthode précédente mais ici l'impulsion thermique est produite par un laser. De plus, l'échantillon est placé dans un four permettant de faire des mesures jusqu'à 1500°C. Cependant, la taille des pastilles utilisées est de 10 mm de diamètre pour 1 à 5 mm d'épaisseur, ce qui rend les mesures sur des matériaux hétérogènes délicates. Les résultats sont représentés sur la figure IV.4. Les valeurs obtenues à température ambiante correspondent bien aux mesures précédentes (à 7 % près). La diffusivité thermique du béton décroît avec la température mais reste relativement constante au-delà de 300°C. Le carbone présent dans l'échantillon noir augmente sa diffusivité thermique de 30 % par rapport à l'échantillon blanc. L'écart entre les valeurs des deux échantillons reste constant quelle que soit la température.

- Mesure de la chaleur spécifique par calorimétrie

La chaleur spécifique est mesurée par un calorimètre à flux différentiel (DSC111 de Setaram). Le mode discontinu a été employé pour une montée en température de 20 à 800°C par paliers de 10°C. Le creuset utilisé ne peut contenir qu'environ 0,5 g de matériau broyé. Les résultats sont reproduits sur la figure IV.5. La chaleur spécifique du béton augmente avec la température. Au-delà de 400°C elle reste relativement constante et atteint une valeur de 1150 J/kg/K pour les deux échantillons. Cette valeur est supérieure à celle qui a été donnée par le constructeur (900 J/kg/K).

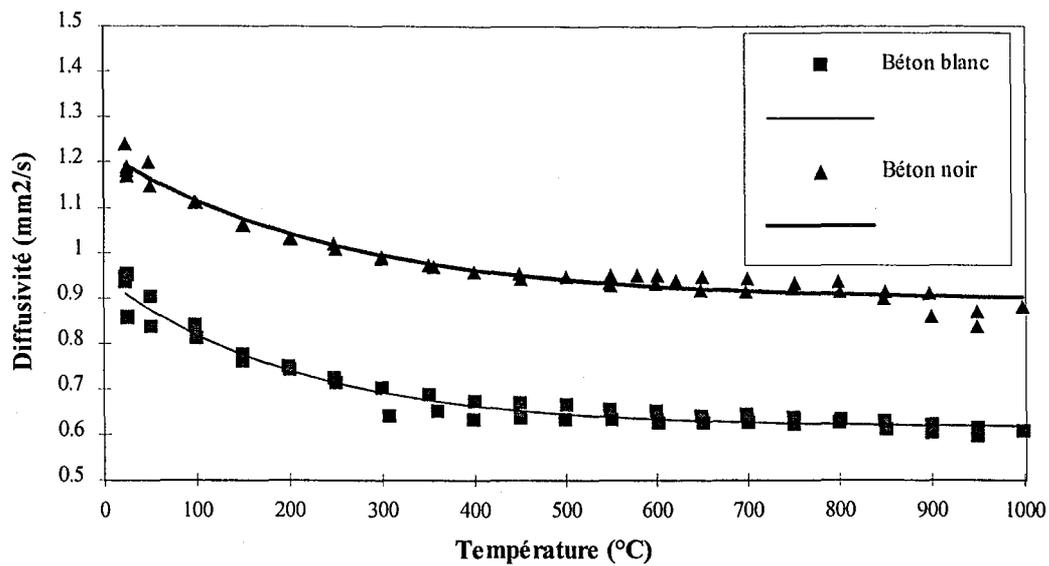


Figure IV.4 : Diffusivité thermique du béton réfractaire
(points expérimentaux et interpolations)

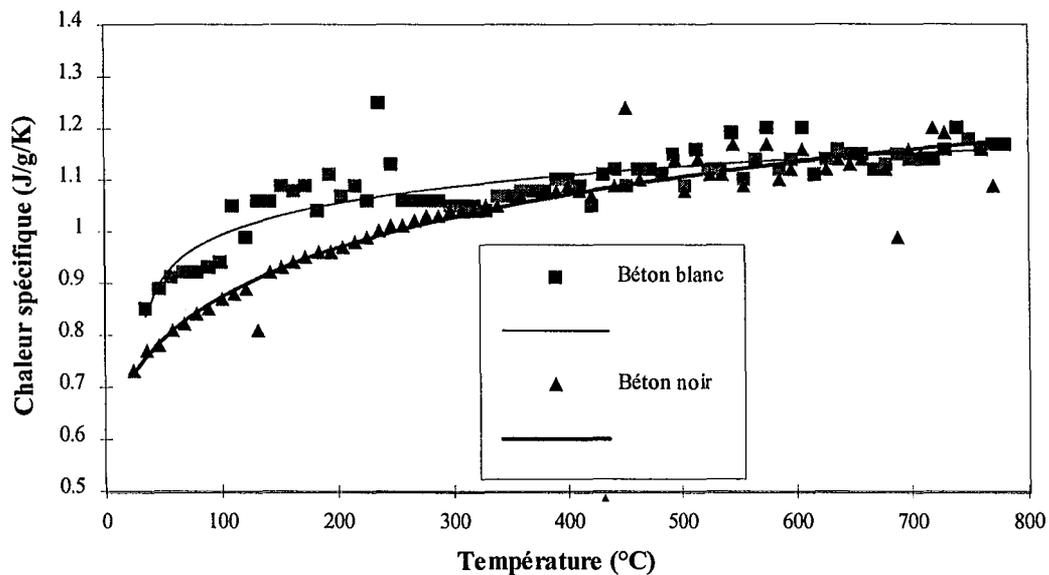


Figure IV.5 : Chaleur spécifique du béton réfractaire
(points expérimentaux et interpolations)

- Mesure de la masse volumique et de la porosité

La masse volumique réelle a été mesurée à l'aide d'un pycnomètre à hélium, la porosité avec un porosimètre à mercure. La masse volumique apparente a ensuite été calculée à partir de ces deux valeurs (Tableau IV.4). La diffusion de carbone dans le béton diminue la porosité et accroît la masse volumique.

	Béton blanc	Béton noir
Masse volumique réelle (kg/m ³)	2690	2580
Porosité (%)	17	8
Masse volumique apparente (kg/m ³)	2230	2370

Tableau IV.4 : Masse volumique et porosité du béton réfractaire

• Calcul de la conductivité thermique :

$$\lambda_p = \alpha_p \rho_p C_{p_p}$$

avec : α_p : diffusivité thermique (m²/s)

ρ_p : masse volumique apparente (kg/m³)

C_{p_p} : chaleur spécifique (J/kg/K)

Les courbes $\alpha_p = f(T)$ et $C_{p_p} = f(T)$ permettent de calculer la conductivité thermique en fonction de la température (Figure IV.6). La conductivité thermique du béton noir est nettement supérieure à celle du béton blanc.

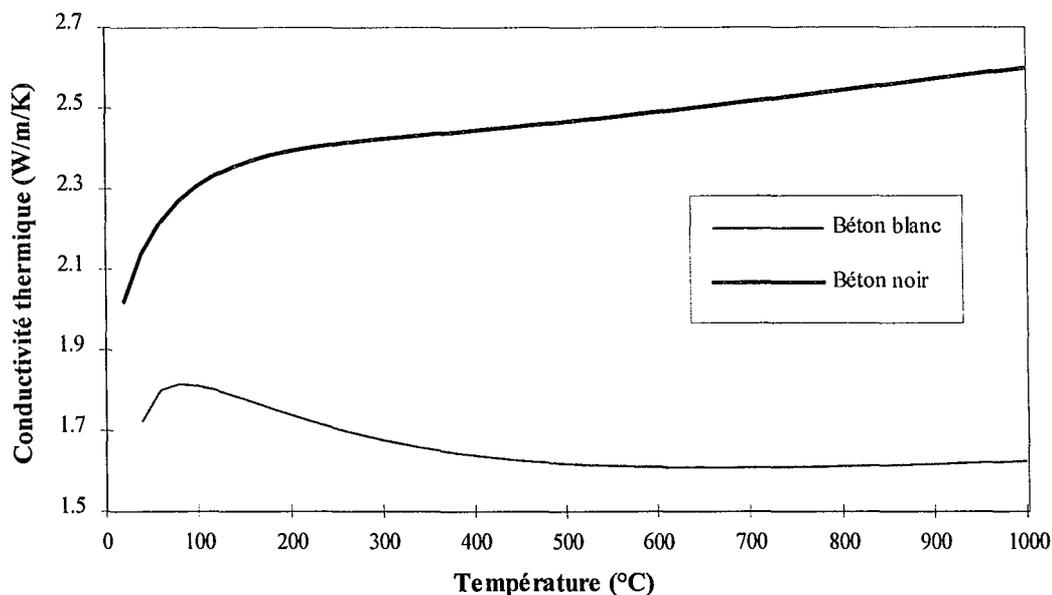


Figure IV.6 : Conductivité thermique du béton réfractaire

Ces valeurs sont en accord avec des valeurs provenant de la littérature [50] et montrant que la conductivité augmente lorsque la porosité diminue (Figure IV.7). Par rapport à la conductivité donnée par le constructeur (0,85 W/m/K), la valeur moyenne mesurée au-delà de

400°C (1,6 W/m/K) est bien supérieure. Par ailleurs, la faible variation de la conductivité pour des températures supérieures à 200°C autorise l'utilisation d'une valeur constante pour le calcul du profil thermique dans la paroi.

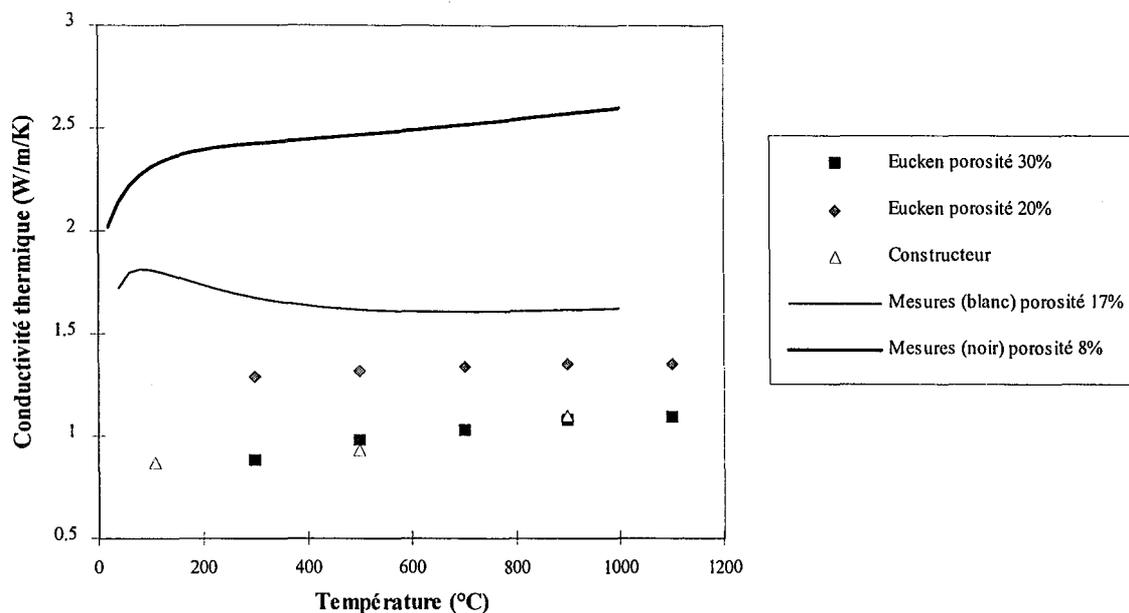


Figure IV.7 : Comparaison des conductivités thermiques mesurées avec les valeurs données par Eucken [50]

IV.5.2 Calcul du profil thermique dans la paroi

La paroi du four tournant de Carling est constituée de 20 cm de béton réfractaire (chamotte) et de 2 cm d'acier sur la face extérieure. Etant donnée la faible conductivité thermique du réfractaire par rapport à celle de l'acier, on peut ne prendre en compte que l'épaisseur de béton pour calculer le transfert thermique dans la paroi (la résistance thermique de l'acier est environ 300 fois plus faible que celle du réfractaire). La méthode numérique utilisée est celle des volumes de contrôle dans son schéma implicite (cf. annexe V).

Les conditions limites sur les surfaces interne et externe sont de type Fourier : on impose le coefficient de transfert de chaleur h . Les expressions des coefficients de transfert par rayonnement sont les suivantes (d'après [42]) :

- rayonnement gaz/paroi : $h_{rgp} = A_{rgp} \sigma \epsilon_g \epsilon_p (T_g^4 - T_{pi}^4) / (T_g - T_{pi})$
- rayonnement paroi/charge : $h_{rps} = A_{rps} \sigma \epsilon_p \epsilon_s (1 - \epsilon_g) (T_{pi}^4 - T_s^4) / (T_{pi} - T_s)$
- rayonnement paroi/air ambiant : $h_{rpa} = A_{rpa} \sigma \epsilon_{pe} (T_{pe}^4 - T_a^4) / (T_{pe} - T_a)$

Pour le calcul dont les résultats sont présentés ci-dessous, les émissivités et les coefficients de transfert par convection ou conduction avaient pour valeurs :

- émissivité du solide et de la paroi intérieure :	$\varepsilon_s = \varepsilon_p = 0,9$
- émissivité de la paroi extérieure :	$\varepsilon_{pe} = 1$
- émissivité du gaz :	$\varepsilon_g = 0,4$
- convection gaz/paroi :	$h_{cgp} = 10 \text{ W.m}^{-2}\text{.K}^{-1}$
- conduction paroi/charge :	$h_{cps} = 37 \text{ W.m}^{-2}\text{.K}^{-1}$
- convection paroi/air ambiant :	$h_{cpa} = 17 \text{ W.m}^{-2}\text{.K}^{-1}$

Les figures IV.8 et IV.9 présentent le profil thermique dans la paroi au cours de la rotation pour une température de la charge de 20°C et une température du gaz de 910°C (situation proche de celle du four tournant industriel côté charbon). On constate que seuls les 15 premiers millimètres de la paroi sont notablement affectés par les oscillations de température. Le reste du profil thermique semble linéaire : le régime y est pratiquement stationnaire (en fait les oscillations de température se propagent dans toute l'épaisseur de la paroi mais elles deviennent rapidement imperceptibles).

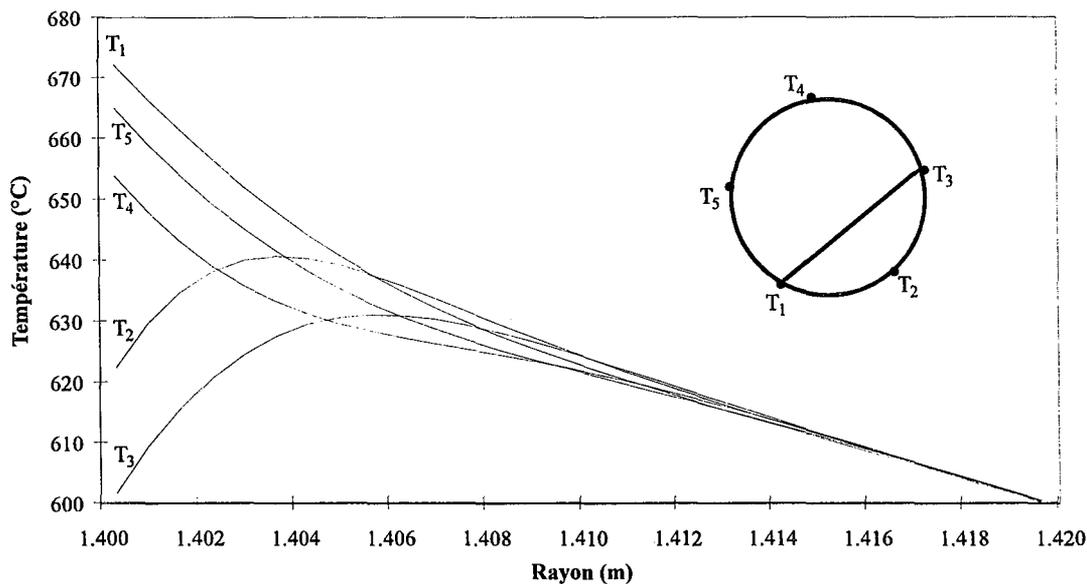


Figure IV.8 : Profil thermique dans la paroi (rayon compté depuis l'axe du four)

La figure IV.9 permet d'évaluer l'influence de la diffusion du carbone dans la paroi sur le profil thermique. Le gradient de température dans le béton réfractaire diminue et les pertes thermiques augmentent : la puissance dissipée dans l'atmosphère passe ainsi de 39 kW/m de four à 54 kW/m. La température de la surface interne de la paroi diminuant, le flux de chaleur transmis à la charge par rayonnement et convection est également plus faible. L'augmentation de la conductivité thermique de la paroi aura donc sans doute des conséquences sur le taux de conversion du charbon. La sensibilité du modèle de four tournant à ce paramètre sera étudiée par la suite.

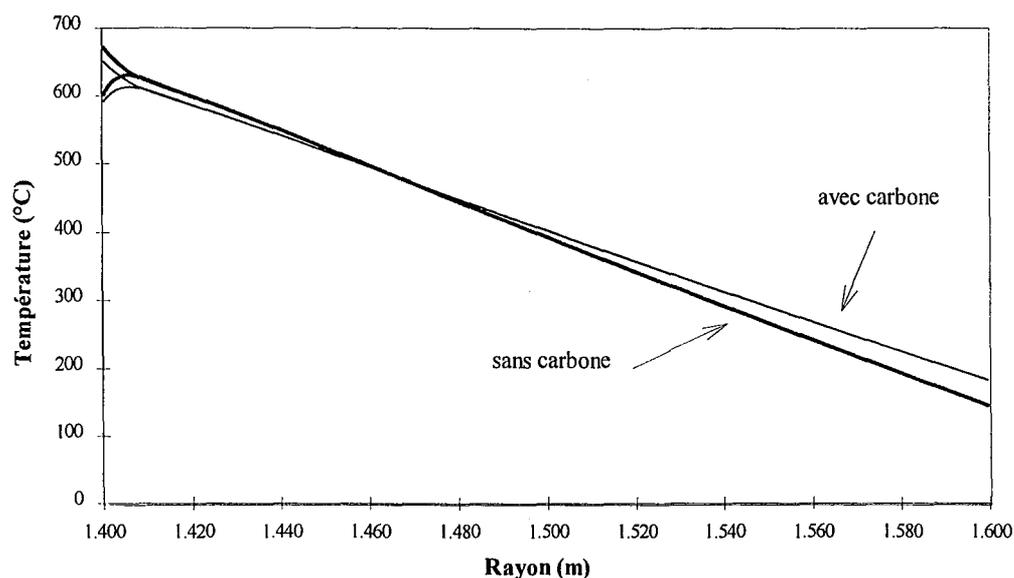


Figure IV.9 : Influence de la diffusion de carbone sur le profil thermique dans la paroi

IV.6 Conclusion

Les phénomènes de rayonnement en four tournant peuvent être simulés avec une bonne précision par un modèle simplifié permettant le calcul des flux échangés entre le gaz, la paroi découverte et le solide. Les émissivités du gaz, du solide et de la paroi doivent être déterminées le plus précisément possible. L'émissivité du gaz peut être estimée à partir des propriétés absorbantes de CO_2 et H_2O , la seule inconnue demeurant la contribution des poussières. Les émissivités du solide et de la paroi sont proches de 1 mais on ne dispose pas de mesures fiables de ces valeurs.

Les coefficients de transfert convectifs ne sont pas connus avec précision. Le transfert gaz/paroi est estimé à 10 W/m/K et le coefficient de transfert gaz/solide serait égal à 1 à 2 fois cette valeur. L'influence de ces coefficients sur les résultats du modèle de four tournant devra être étudiée. Le coefficient de transfert par conduction paroi/solide augmente fortement le long du four (de 37 à 170 W/m/K). La régénération constitue donc une source importante de chaleur pour le solide.

Un calcul détaillé du transfert de chaleur dans la paroi permet de déterminer le profil thermique dans le béton réfractaire. La fluctuation de température de la paroi interne atteint 70 °C côté charbon, mais seule une faible épaisseur de la paroi (environ 15 mm) est affectée par ces variations de température.



Chapitre V

Phénomènes de combustion

Les phénomènes de combustion intervenant dans le procédé de pyrolyse du charbon en four tournant méritent une étude approfondie puisqu'ils constituent ici la seule source d'énergie. Ils comprennent bien entendu la combustion des matières volatiles (MV) issues de la pyrolyse du charbon, mais également la combustion du coke du lit et des poussières générées tout au long du four.

Les matières volatiles comprennent essentiellement deux catégories : les espèces chimiques condensables à température et pression ambiantes dénommées goudrons, et des gaz légers (H_2 , CH_4 , CO , CO_2 et des hydrocarbures légers en faibles quantités). Les goudrons peuvent intervenir dans les phénomènes de combustion soit directement, soit indirectement après craquage en molécules plus légères.

V.1 Combustion des matières volatiles

Très peu d'études expérimentales ont été publiées sur la combustion du mélange de goudrons et de gaz légers que constituent les matières volatiles. Les modèles prédictifs de combustion du charbon font donc tous des hypothèses difficilement justifiables au sujet de la combustion des MV. Deux hypothèses sont fréquemment rencontrées : soit les MV brûlent dès qu'elles se dégagent [51], soit la vitesse de combustion considérée est celle du méthane [52] ou du monoxyde de carbone [53].

Dans un premier temps, un examen des concentrations des différentes espèces chimiques présentes dans la phase gazeuse du four tournant permettra de définir clairement le problème à résoudre. Puis nous verrons comment il est possible de tenir compte de la cinétique des réactions de combustion dans la modélisation du procédé.

V.1.1 Situation du problème

Des prélèvements de gaz ont pu être effectués sur le four tournant de Carling à l'aide d'une canne d'aspiration refroidie à l'eau. Les trappes présentes aux extrémités du four permettent de faire des prélèvements sans arrêt de la rotation. Pour les positions intermédiaires, on utilise les ouvreaux percés dans la paroi en arrêtant la rotation du four sur

une durée la plus courte possible (inférieure à 3 min). La technique de prélèvement sera décrite de façon plus détaillée au paragraphe VI.4.1. Les résultats de l'analyse chromatographique de ces échantillons de gaz sont présentés dans le tableau V.1 en fonction de l'abscisse x dans le four (la première colonne correspond aux conduits d'évacuation de la chambre à fumées). Ces valeurs ne tiennent pas compte de l'eau, ni des goudrons, qui sont impossibles à doser sur des durées de prélèvements aussi courtes. Les résultats doivent être examinés en parallèle avec les dégagements de matières volatiles (figure V.1) calculés d'après la mesure du profil thermique de la charge et la cinétique de dévolatilisation du charbon (cf. § II.4).

x (m)	-	10	30	37	44	51
H ₂	8,6	8,1				2,7
CH ₄	3,6	1,5				0,04
C ₂ H ₄	0,6	0,1				
CO	3,9	2,6	0,04	0,1	0,4	0,6
CO ₂	9,4	8,7	2,0	2,4	1,4	1,9
N ₂	73,6	78,5	80,2	79,8	80,3	77,6
O ₂	1,3	1,7	15,3	14,1	15,6	16,2
Total	101,0	101,2	97,5	96,4	97,7	99,0

Tableau V.1 : Analyse des prélèvements de gaz sur le four tournant de Carling (% molaire)

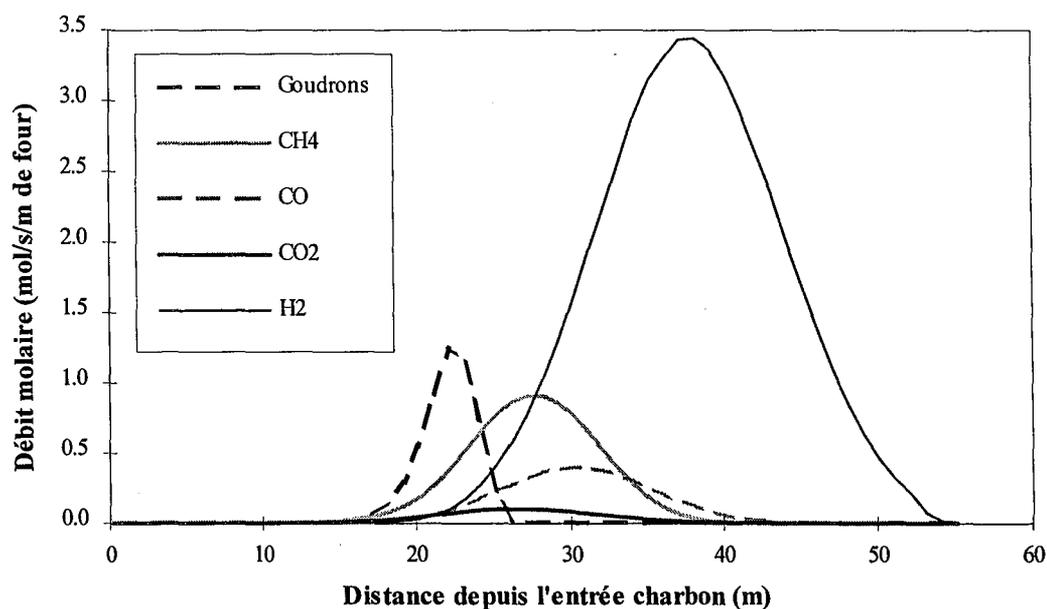


Figure V.1 : Dégagements gazeux le long de l'axe du four

La figure V.1 nous renseigne sur la zone de dégagement des différentes espèces chimiques dans le four : le pic de dégagement du méthane se trouve en $x = 28$ m et celui de l'hydrogène en $x = 39$ m. L'absence d'hydrogène et de méthane dans le gaz prélevé dans le four aux abscisses 30, 37 et 44 m montre que la combustion de ces deux espèces doit être très rapide. L'hypothèse d'une combustion "instantanée" du méthane et de l'hydrogène dans cette zone du four semble donc tout à fait réaliste.

La présence d'une forte quantité d'hydrogène en $x = 10$ m ne peut s'expliquer que par le craquage des goudrons, le dégagement d'hydrogène entre les abscisses 10 et 30 m étant très faible. De même, l'augmentation de la quantité de méthane dans le gaz sur les 10 premiers mètres du four atteste du craquage des goudrons dans cette zone. De plus, l'absence d'oxygène en $x = 10$ m montre que la combustion des goudrons et des produits de craquage s'effectue en défaut d'oxygène. La modélisation de la combustion dans cette zone du four (entre les abscisses 10 et 30 m) nécessite plusieurs investigations : il faut déterminer la cinétique de craquage des goudrons, la nature et la quantité des produits du craquage ainsi que leur cinétique de combustion.

V.1.2 Combustion / craquage des goudrons

La plupart des études expérimentales sur les matières volatiles issues de la pyrolyse du charbon portent sur la cinétique de combustion des gaz légers ou le craquage des goudrons en atmosphère inerte. Peu de résultats sont donc disponibles sur les réactions de craquage des goudrons en atmosphère oxydante non stœchiométrique. Le tableau V.2 donne deux cinétiques de combustion pour $C_{18}H_{12}$. Shaw [54] a obtenu pour la première fois une cinétique de combustion de matières volatiles contenant des goudrons sur 14 charbons différents. Le rang du charbon ne semble pas avoir d'effet important sur la vitesse de combustion. En considérant une réaction d'ordre un par rapport à l'oxygène et par rapport aux MV, il obtient une énergie d'activation moyenne de 48 kJ/mol et un facteur de fréquence moyen de $2,7 \cdot 10^5$ m³/kg/s. Cependant, ces données concernent une réaction avec apport d'oxygène en quantités stœchiométriques, ce qui ne correspond pas à la situation du four tournant.

Référence	Vitesse de réaction (mol/m ³ /s)	k_{og}	E_g (kJ/mol)
Dernedde et al. [55]	$k_g (C_{18}H_{12}) (O_2)^{0,5} (H_2O)^{0,5}$	$1,80 \cdot 10^{13}$	132
Howard et al. [56]	$k_g (C_{18}H_{12}) (O_2)^{0,5} (H_2O)^{0,5}$	$1,30 \cdot 10^{14}$	125

Tableau V.2: Lois cinétiques de combustion des goudrons

Plusieurs études ont porté sur la nature des produits issus du craquage des goudrons en fonction de la température T_c et du temps de séjour τ_c [57-62]. Le taux de craquage X_c des goudrons augmente avec la température et le temps de séjour. Le tableau V.3 donne les résultats obtenus pour des situations proches de celle du four tournant. En effet, le pic de dévolatilisation des goudrons se situe en $x = 22$ m dans le four et la vitesse des gaz est de l'ordre de 10 m/s : le temps de séjour des goudrons est donc d'environ 2 secondes dans une atmosphère allant de 1100°C à 900°C. La quantité de carbone formé au cours du craquage augmente avec la température et peut atteindre 21 % en masse du goudron. La quantité d'hydrocarbures en C_2 ou C_3 produite présente un pic vers 750°C, mais un craquage poussé des goudrons conduit essentiellement à un gaz formé d'hydrogène, de méthane et de monoxyde de carbone.

Référence	T_c (°C)	τ_c (s)	X_c	gaz		H_2	CH_4	CO
				C	% massique / goudron			
Serio [60-61]	900	1	0,63	49	14	44	20	16
Lahouste [57]	950	2	0,75					
Hesp [58]	1000	1	0,85	64	21	60	20	20

Tableau V.3: Bilan matière du craquage des goudrons
(X_c : taux de conversion exprimé en masse)

Lahouste est le seul à étudier l'influence de la présence d'oxygène : pour des concentrations inférieures à 10 % en O_2 , il ne remarque pas de différence sur les produits du craquage. La combustion des goudrons est observée à partir de 15 % d'oxygène dans le gaz.

En ce qui concerne la cinétique de craquage, les auteurs ne remarquent pas d'influence de la concentration en goudrons. Serio donne une loi cinétique du premier ordre de la forme :

$$\frac{d m_g}{dt} = - k m_g \quad \{V.1\}$$

où m_g est la masse de goudrons présente à l'instant t et k est la constante de vitesse ($k = k_0 \exp(-E/RT)$ avec $k_0 = 9,96 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$ et $E = 64,5 \text{ kJ/mol}$).

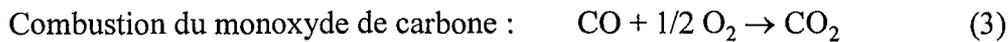
V.1.3 Combustion des gaz légers

Cette étude concerne particulièrement la zone de craquage des goudrons (entre les abscisses 10 et 30 m) où la combustion s'effectue en défaut d'oxygène, la combustion des gaz légers pouvant être considérée comme instantanée sur le reste du four.

Les réactions de combustion en phase gazeuse font intervenir des mécanismes radicalaires. Leur description fait donc appel à un grand nombre de réactions et d'intermédiaires réactionnels (jusqu'à 835 réactions et 42 intermédiaires réactionnels pour la

combustion du méthane [63]). Ces mécanismes ne peuvent donc pas être modélisés de façon rigoureuse dans le modèle global de four tournant pour des raisons évidentes de temps de calcul.

La modélisation de ces réactions doit ainsi passer par l'utilisation de lois cinétiques reliant les vitesses de réaction aux concentrations des réactifs en présence. Les lois cinétiques relevées dans la littérature donnent malheureusement des ordres de grandeur très différents (cf. tableau V.4). De plus, ces constantes cinétiques ne peuvent être utilisées que dans une gamme de concentrations et de températures pour lesquelles elles ont été déterminées.



Référence	Réaction	Vitesse de réaction (mol/m ³ /s)	k _{oi}	E _i (kJ/mol)
Laidler [65]	1	k ₁ (CH ₄) ² (O ₂)	5,00.10 ⁷	200
Bradley et al. [66]	1	k ₁ (CH ₄) ^{0,7} (O ₂) ^{0,8}	2,99.10 ¹³	196
Dryer et Glassman [67]	1	k ₁ (CH ₄) ^{0,7} (O ₂) ^{0,8}	1,60.10 ¹³	202
Dutta et al. [64]	2	k ₂	1,10 .10 ¹³	67
Van Tiggelen [68]	2	k ₂ (H ₂) (O ₂)	-	75
Dutta et al. [64]	3	k ₃ (CO) (O ₂) ^{0,3} (H ₂ O) ^{0,5}	1,10.10 ¹¹	67
Howard et al. [56]	3	k ₃ (CO) (O ₂) ^{0,5} (H ₂ O) ^{0,5}	1,30.10 ¹¹	126

Tableau V.4 : Lois cinétiques de combustion des gaz légers

Notre objectif est de déterminer des lois cinétiques pour les réactions de combustion des gaz légers qui correspondent aux conditions de température et de concentration du four tournant. L'approche retenue consiste à modéliser la combustion des gaz légers à partir du mécanisme radicalaire complet utilisé dans les conditions du four tournant. Cette simulation est effectuée à l'aide du logiciel *Chemkin* [69] au Département de Chimie Physique des Réactions (D.C.P.R.) à Nancy. Le mécanisme de combustion du méthane convient particulièrement bien puisqu'il englobe la combustion de l'hydrogène, du CO et des hydrocarbures en C₂. Les résultats obtenus permettent d'optimiser les paramètres d'un modèle cinétique simple ou schéma réduit constitué par les réactions de combustion (1), (2) et (3).

V.1.3.1 RESULTATS OBTENUS AVEC LE LOGICIEL *CHEMKIN*

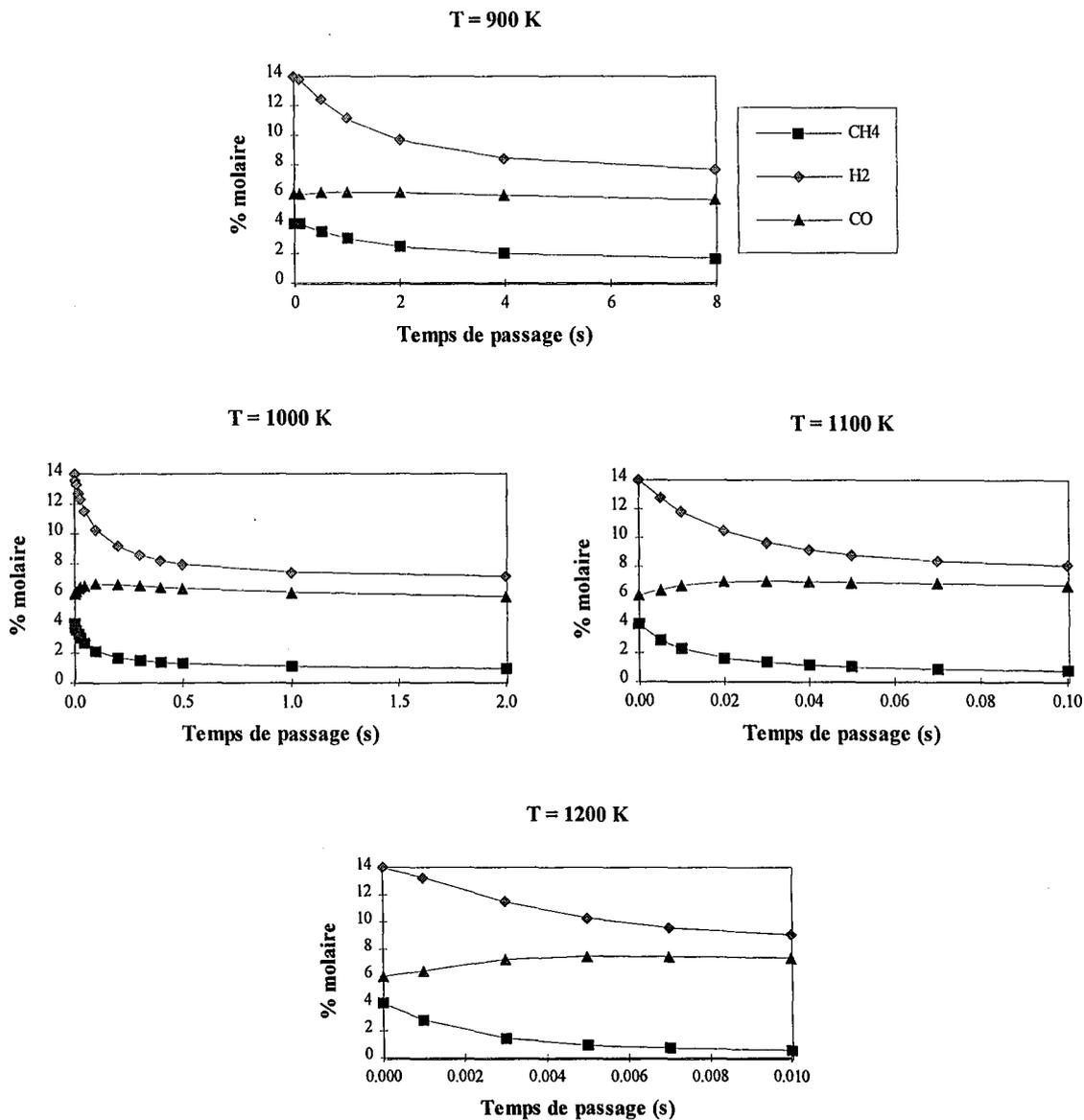
- Combustion d'un gaz de composition donnée à différentes températures

La combustion d'un mélange de composition proche de celle du four tournant en x = 20 m (tableau V.5) a été simulée en réacteur parfaitement agité pour des températures allant de 900 K à 1200 K.

O ₂	CH ₄	CO	CO ₂	H ₂	H ₂ O	N ₂
10	4	6	7	14	12	47

Tableau V.5 : Composition initiale du mélange gazeux utilisé pour les simulations de combustion des gaz légers (% molaire)

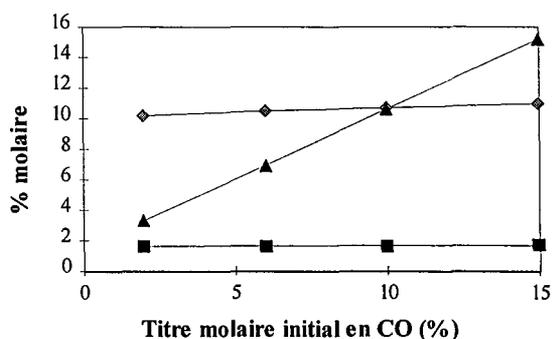
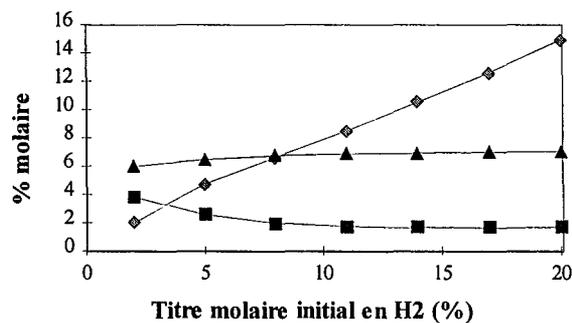
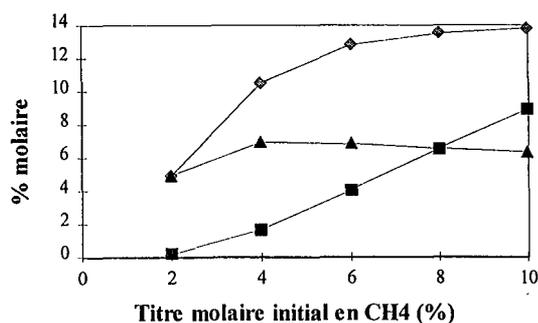
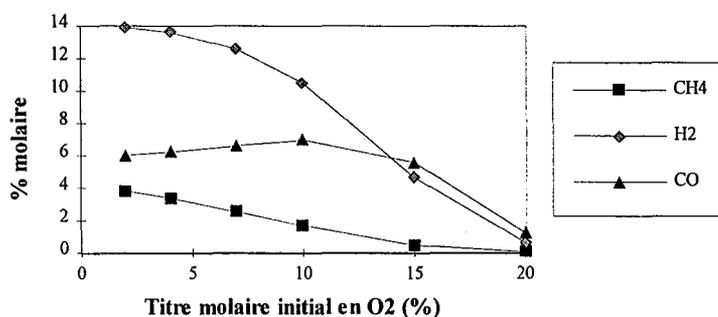
Les résultats de ces simulations donnent l'évolution des titres molaires en fonction du temps de passage dans le réacteur (figures V.2 à V.5). La combustion du CO ne semble pas avoir lieu puisque son titre molaire augmente légèrement quelle que soit la température de combustion.



Figures V.2 à V.5 : Simulation de la combustion des gaz légers en réacteur parfaitement agité
Evolution des titres molaires en fonction du temps de passage et de la température

• Modification des concentrations initiales pour une combustion à 1100 K

A partir de la composition précédente (tableau V.5), la teneur initiale en O_2 , CH_4 , H_2 et CO a été modifiée. La variation de concentration sur une espèce donnée est compensée par une modification de la teneur en azote du mélange gazeux. Les concentrations finales obtenues pour un temps de passage de 0,02 seconde en réacteur parfaitement agité sont tracées en fonction de la concentration initiale en O_2 , CH_4 , H_2 et CO (figures V.6 à V.9).



Figures V.6 à V.9 : Simulation de la combustion des gaz légers en réacteur parfaitement agité
Composition finale du gaz pour un temps de passage de 0,02 s et une température de 1100 K

Ces résultats montrent que la combustion du CO ne devient significative qu'au delà d'une concentration initiale en oxygène supérieure à 15 %. La réaction de combustion du CO ne sera donc pas prise en compte dans l'exploitation de ces données.

V.1.3.2 OPTIMISATION DES PARAMETRES DU MODELE CINETIQUE

Les réactions prises en compte et les lois cinétiques correspondantes sont les suivantes :



Les paramètres k_1 , k_2 , a_1 , a_2 , b_1 , b_2 doivent être optimisés de façon à minimiser la fonction objectif F :

$$F(k_1, k_2, a_1, a_2, b_1, b_2) = \sum \frac{(X_i - X_{i\text{chem}})^2}{X_i} + \frac{(X_2 - X_{2\text{chem}})^2}{X_2} \quad \{\text{V.2}\}$$

où X_i et $X_{i\text{chem}}$ désignent l'avancement généralisé de la réaction i (X_i est calculé avec les lois cinétiques ci-dessus et $X_{i\text{chem}}$ est issu des résultats obtenus avec *Chemkin*). Le calcul permettant d'obtenir X_i en réacteur parfaitement agité est présenté en annexe VI.

Dans un premier temps, seuls k_1 et k_2 ont été optimisés, les coefficients a_1 , a_2 , b_1 , b_2 ayant été fixés en fonction de l'étude bibliographique aux valeurs suivantes :

$$\begin{aligned} r_1 &= k_1 (\text{CH}_4)^{0,7} (\text{O}_2)^{0,8} \\ r_2 &= k_2 (\text{H}_2) (\text{O}_2) \end{aligned} \quad (\text{modèle A})$$

Les valeurs de k_1 et k_2 obtenues pour chaque température permettent de déterminer les facteurs de fréquence k_{oi} et les énergies d'activation E_i pour les réactions (1) et (2). La figure V.10 montre en effet que ces valeurs suivent la loi d'Arrhenius : $k_i = k_{oi} \exp(-E_i/RT)$.

Une optimisation sur tous les paramètres a également été effectuée pour une température de 1100 K, les lois cinétiques suivantes ont été obtenues :

$$\begin{aligned} r_1 &= k_1 (\text{CH}_4)^{0,5} (\text{O}_2)^{0,4} \\ r_2 &= k_2 (\text{H}_2)^{0,5} (\text{O}_2)^{0,5} \end{aligned} \quad (\text{modèle B})$$

Les valeurs de k_1 et k_2 ont ensuite été calculées pour chaque température, donnant ainsi de nouvelles valeurs pour k_{oi} et E_i (tableau V.6).

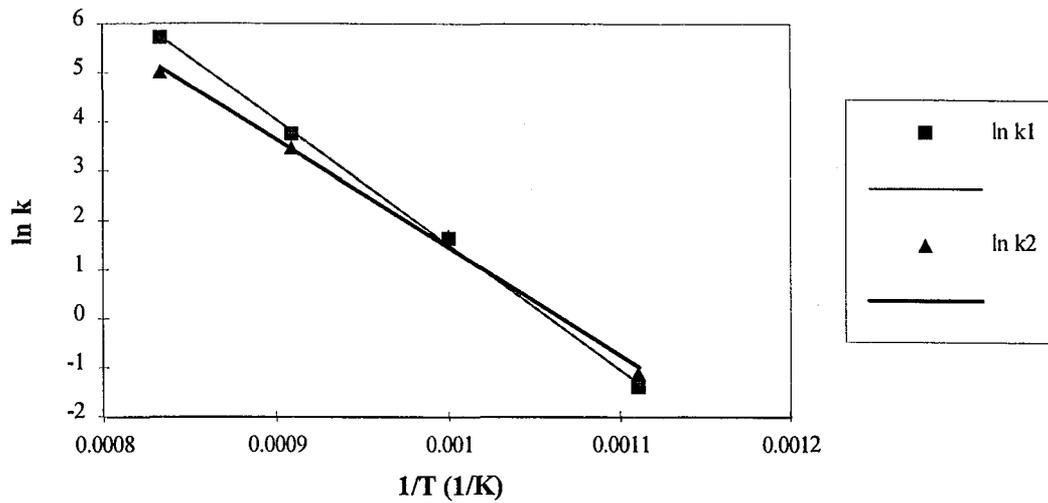


Figure V.10 : Calcul des paramètres cinétiques : tracé de $\ln k_i$ en fonction de $1/T$

		Modèle A	Modèle B
Réaction (1)	k_{o1}	$1,06 \cdot 10^{12}$	$5,23 \cdot 10^{11}$
	E_1 (kJ/mol)	215	212
Réaction (2)	k_{o2}	$5,90 \cdot 10^9$	$1,47 \cdot 10^{10}$
	E_2 (kJ/mol)	175	183

Tableau V.6 : Constantes cinétiques des réactions de combustion

Ces deux schémas réduits peuvent être évalués pour des concentrations initiales différentes à la température de 1100 K. Pour un titre molaire initial en oxygène supérieur à 10%, les deux modèles cinétiques ne sont plus du tout adaptés, les écarts avec les avancements obtenus avec *Chemkin* atteignant 100% pour la combustion de l'hydrogène (figure V.11). En ce qui concerne les titres initiaux en méthane et hydrogène, seule une faible variation par rapport aux titres de référence (4% pour CH_4 , 14% pour H_2) permet de conserver un écart relatif avec les résultats de *Chemkin* qui soit acceptable (figures V.12 et V.13).

La fonction objectif F , calculée à partir des points des trois courbes (V.11 à V.13), permet d'évaluer l'écart avec les résultats de *Chemkin* : de 0,65 pour le modèle (A), elle passe à 0,90 pour le modèle (B). Le modèle (A), dont les coefficients proviennent en partie de la littérature, est donc mieux adapté pour prendre en compte les variations des concentrations initiales.

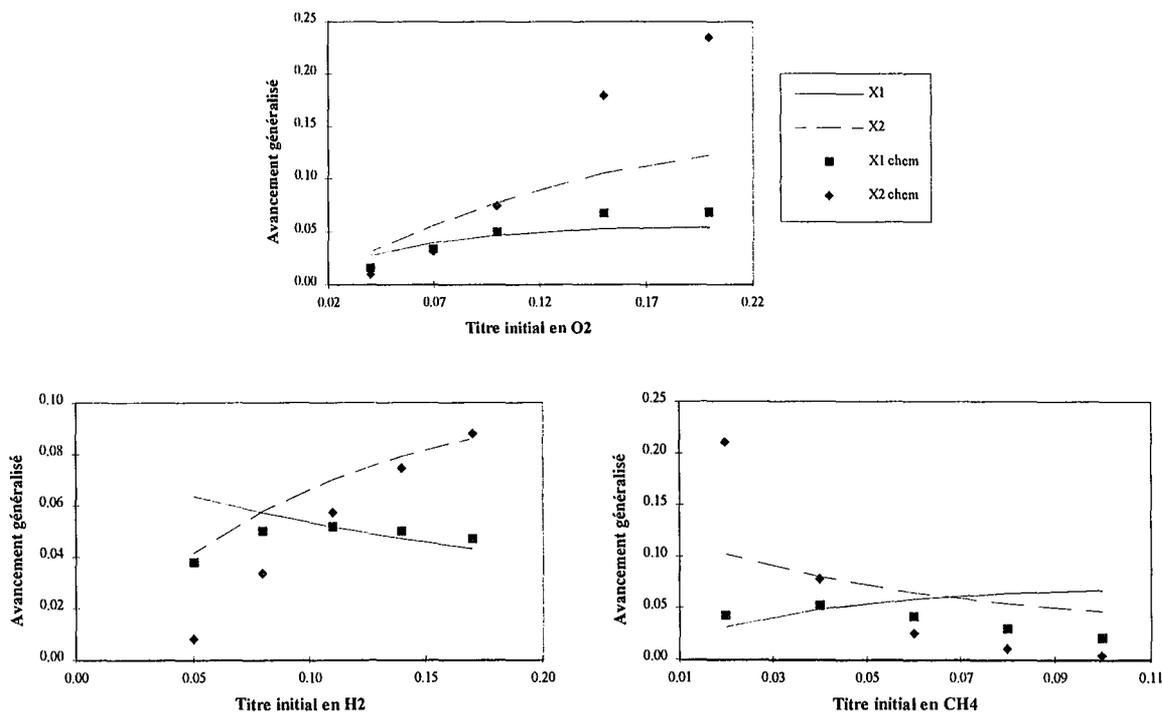


Figure V.11 à V.13 : Comparaison des résultats du modèle cinétique (A) avec les résultats obtenus avec Chemkin ($X_{i\text{chem}}$) - Avancements généralisés pour un temps de passage de 0,02 s

Les résultats obtenus peuvent être comparés aux valeurs de la littérature (tableau V.4). L'énergie d'activation calculée pour la combustion du méthane est proche des valeurs citées plus haut. Par contre, en ce qui concerne la combustion de l'hydrogène, l'énergie d'activation calculée est plus élevée que les valeurs trouvées dans la littérature.

V.1.4 Simulation de la combustion des MV dans le four tournant

Les résultats issus de la bibliographie pour le craquage des goudrons et du calcul pour la combustion des gaz légers permettent de procéder à une simulation de la combustion des matières volatiles dans le four tournant.

Le calcul s'effectue du côté coke vers le côté charbon, dans le sens des x décroissants. Le four est divisé en une succession de réacteurs parfaitement agités (RPA), correspondant chacun à une tranche du four de largeur 20 cm. Pour chaque RPA, on calcule les débits entrants de matières volatiles issues de la pyrolyse du charbon (cf. figure V.1). Le débit d'air entrant côté coke est déduit de la mesure du débit d'azote en sortie de la chambre à fumées. La température au sein de chaque RPA est déduite du profil thermique du gaz mesuré dans le four tournant.

Les lois cinétiques de combustion des gaz légers sont celles du modèle (A) calculées plus haut. La cinétique de craquage des goudrons utilisée est donnée par Serio [60] (formule

{ V.1 }). Le bilan matière du craquage est tiré des résultats de Hesp [58] (tableau V.3), dont les conditions expérimentales correspondent le mieux à la situation du four tournant. D'après les résultats de Lahouste [57], la combustion des goudrons ne devrait pas avoir lieu dans le four tournant, elle n'est donc pas modélisée.

Les figures V.14 à V.16 présentent les résultats de ces calculs. La combustion de l'hydrogène et du méthane s'effectue de façon instantanée, hormis entre les abscisses 40 et 50 m. Ce phénomène est dû à la température relativement basse du gaz dans cette zone du four (environ 300°C). La simulation ne représente pas ici la réalité, car la combustion s'effectue en fait en surface du lit de grain qui est à une température d'environ 800°C, elle est donc beaucoup plus rapide que le calcul ne le prévoit (ce qui remet en cause l'hypothèse du réacteur parfaitement agité dans cette zone du four). Le craquage s'effectue également très rapidement, mais seuls 53% du méthane et de l'hydrogène formés peuvent être consommés avant disparition de l'oxygène.

Les débits gazeux calculés côté charbon ne correspondent pas aux mesures effectuées sur le four tournant. La quantité de CO calculée est trop élevée et les débits de H₂ et CO₂ sont trop faibles. Le bilan matière du craquage peut être mis en cause, mais il n'explique pas le défaut de CO₂ côté charbon. La combustion des poussières entre les abscisses 20 et 30 m peut expliquer en partie ce manque de CO₂, car ce phénomène n'est pas pris en compte dans le calcul. Toutefois, la quantité de poussières qu'il faudrait brûler pour produire les 14 mol/s de CO₂ manquant correspond à environ 4% en masse du charbon enfourné. Or les rendements mesurés sur l'installation industrielle permettent d'estimer une perte par combustion de l'ordre de 3 à 4 %. La combustion du coke du lit représentant déjà 3 % des pertes (cf. § V.2.1), cette hypothèse ne suffit pas à elle seule à justifier le déficit de CO₂ coté coke. La seule solution consiste donc à envisager la combustion de CO. En effet, si les gaz brûlent en surface du lit, les concentrations ne sont pas comparables avec la situation qui a été modélisée avec le logiciel *Chemkin*.

En ce qui concerne le déficit d'hydrogène coté coke, il peut être imputé à la cinétique de production de H₂ par craquage des goudrons. On a estimé dans ce calcul que le craquage produisait instantanément CO, CH₄ et H₂ dans les proportions voulues. En réalité, chaque constituant est produit à une vitesse différente, et il est probable que l'hydrogène soit produit plus tardivement que le méthane. Le taux de combustion de H₂ sera donc plus faible que celui du méthane.

Afin de simplifier la simulation de la combustion des MV dans le modèle de four tournant, on estime que la combustion et le craquage sont instantanés. Les résultats de cette simulation sont présentés figures V.17 à V.19.

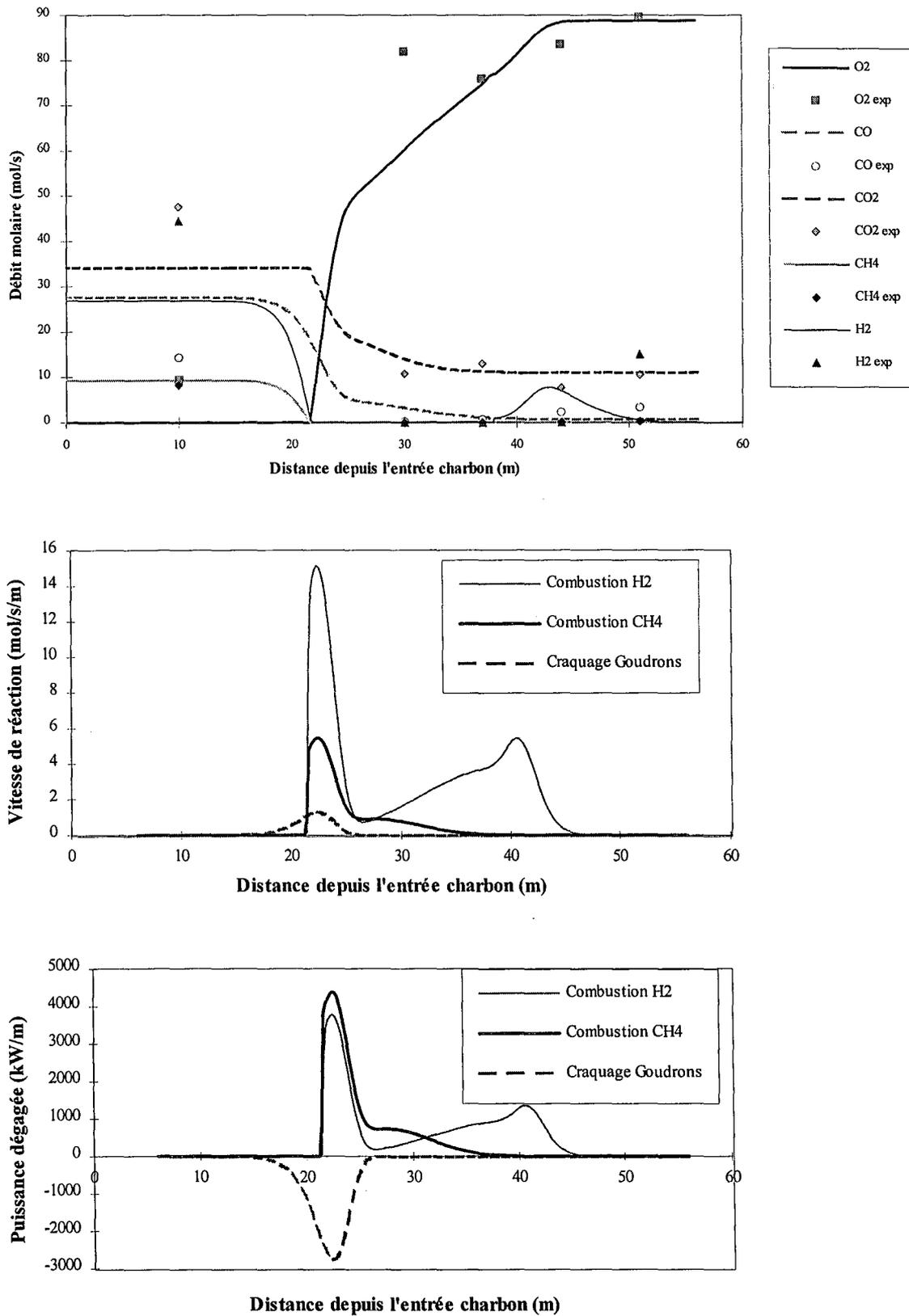


Figure V.14 à V.16 : Débits molaires, vitesses de réaction et puissance dégagée par chaque réaction le long de l'axe du four (calcul effectué à partir des cinétiques de réaction et du profil thermique mesuré)

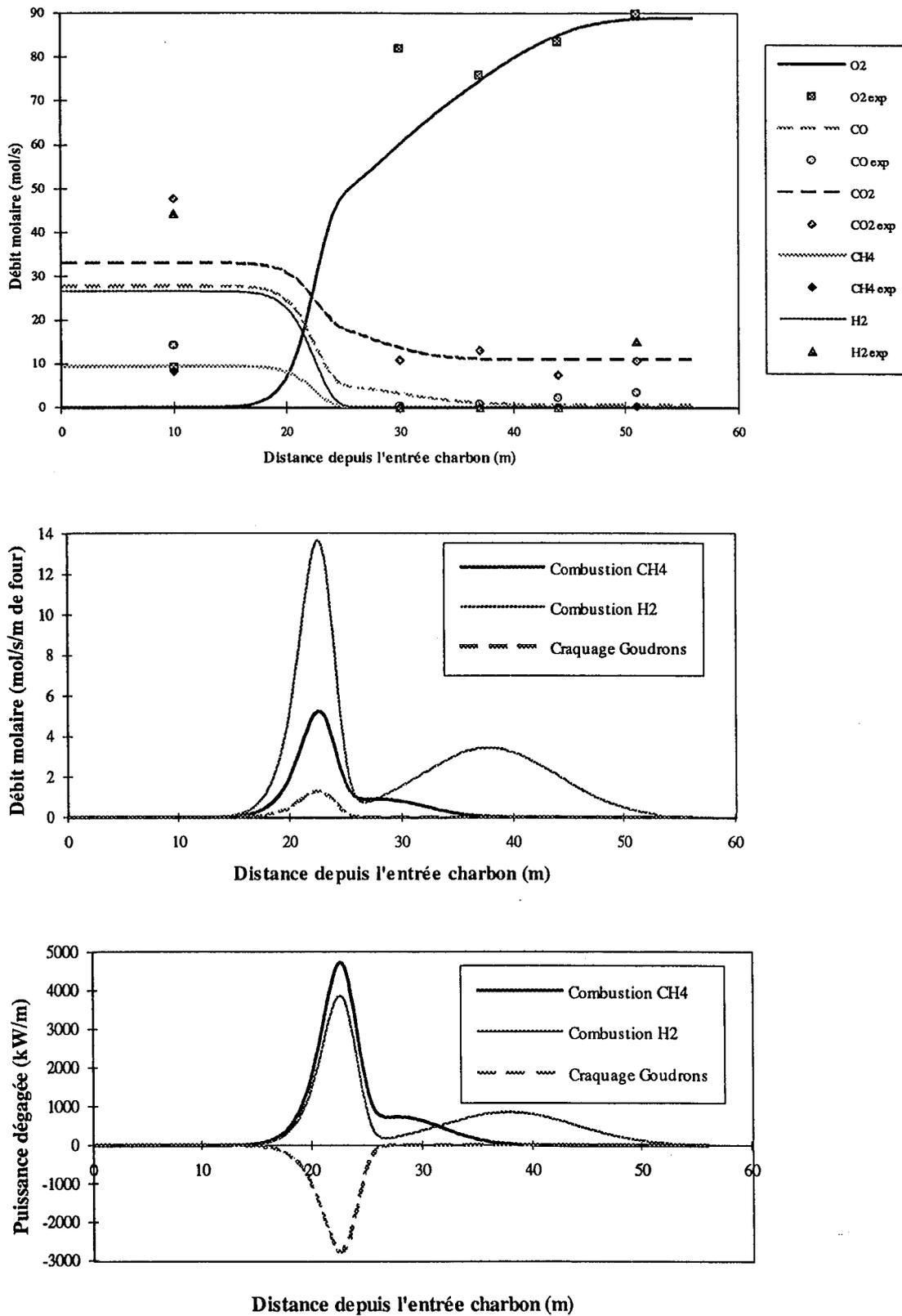


Figure V.17 à V.19 : Débits molaires, vitesses de réaction et puissance dégagée par chaque réaction le long de l'axe du four (calcul simplifié)

La seule différence avec le calcul précédent concerne la zone de combustion des produits de craquage. Les simplifications effectuées reviennent à étendre la combustion du méthane et de l'hydrogène entre les abscisses 17 et 25 m alors qu'elle se produit en fait entre les abscisses 21 et 25 m. La puissance correspondant aux réactions qui se produisent dans cette zone du four est donc répartie sur une longueur de four légèrement plus grande.

Un deuxième calcul simplifié a été effectué en tenant compte de la combustion de CO (figures V.20 à V.22). Il est nécessaire de spécifier la proportion de chaque produit de craquage (H_2 , CH_4 , CO) qui pourra être consommée dans le four en tenant compte de la quantité d'oxygène disponible. Pour le calcul ci-dessous, 34 % de l'hydrogène, 57 % du méthane et 36 % du monoxyde de carbone issus du craquage des goudrons sont brûlés dans le four. Ces valeurs ont été déterminées de manière à satisfaire le bilan matière dans le four tournant. Elles permettent également de tenir compte de la cinétique de production de chaque constituant issu du craquage des goudrons.

Les débits de gaz calculés côté charbon sont alors nettement plus proches des débits mesurés. Ce type de calcul sera donc employé dans le modèle global de four tournant.

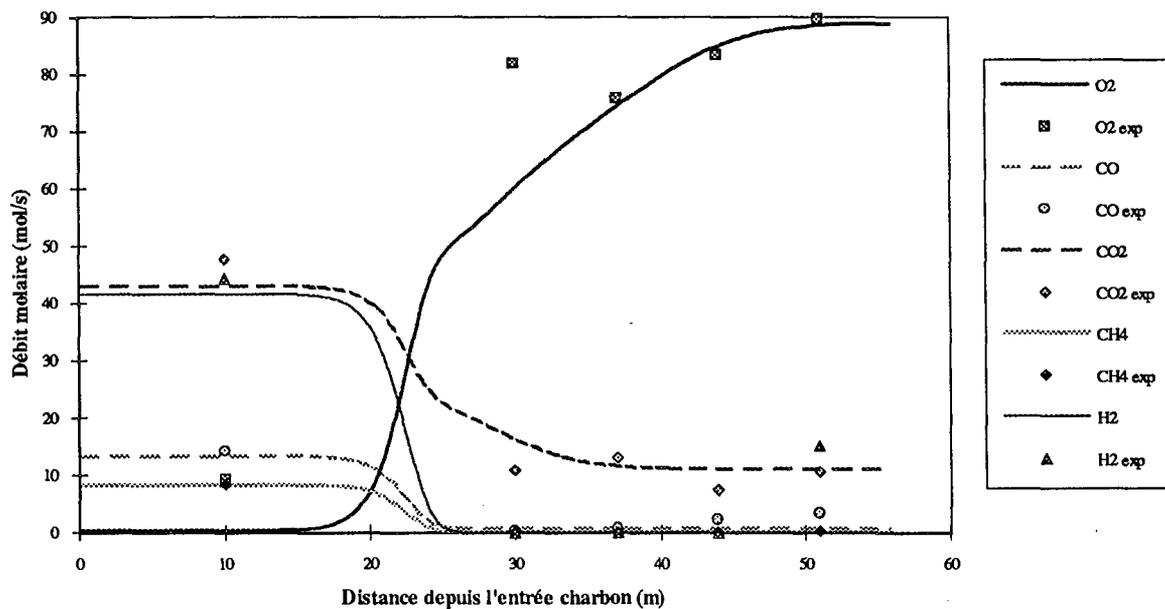


Figure V.20 : Débits molaires le long de l'axe du four
(calcul simplifié avec combustion de CO)

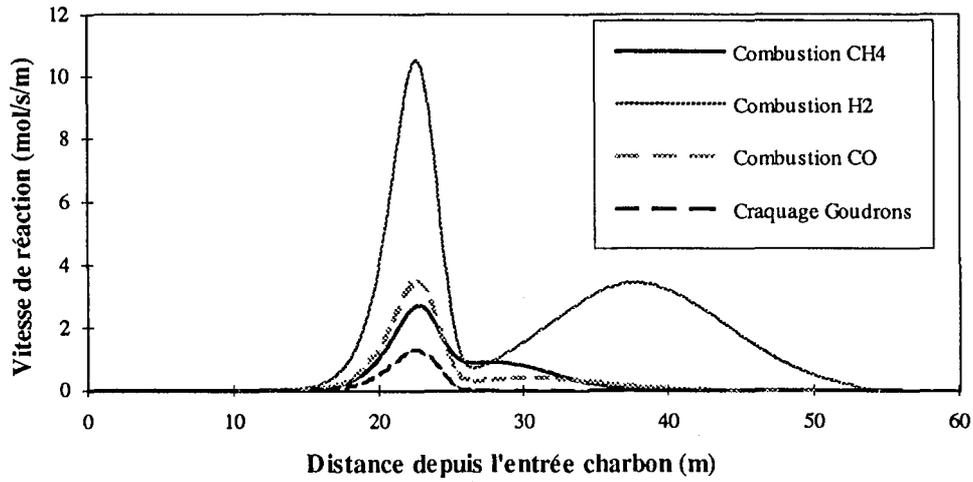


Figure V.21 : Vitesses de réaction le long de l'axe du four
(calcul simplifié avec combustion de CO)

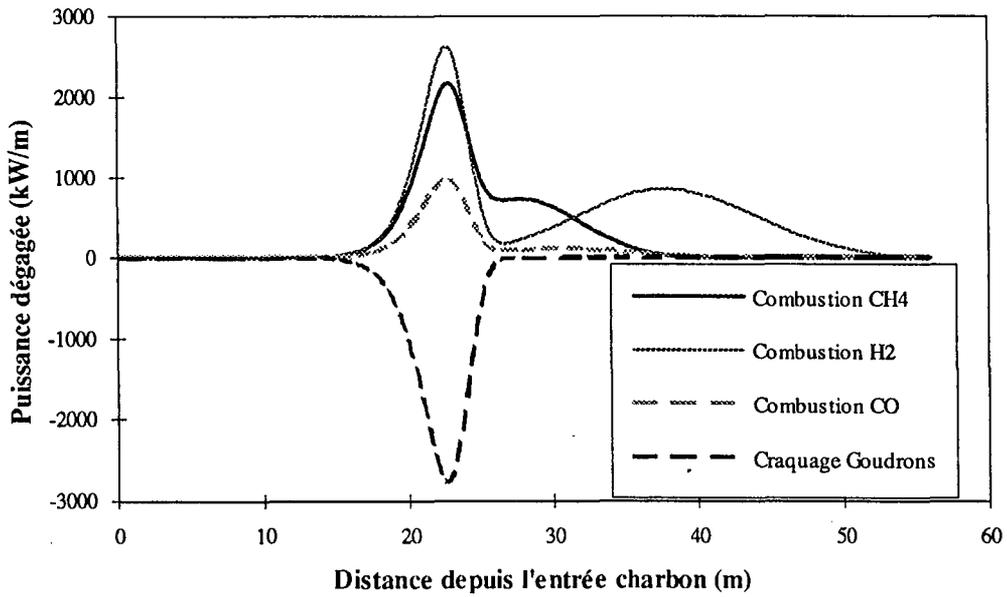


Figure V.22 : Puissance dégagée par chaque réaction le long de l'axe du four
(calcul simplifié avec combustion de CO)

V.2 Combustion du coke

V.2.1 Combustion des grains en surface du lit

V.2.1.1 MISE EN EVIDENCE DU PHENOMENE

Les analyses des prélèvements de gaz dans le four tournant montre la présence de CO et de CO₂ aux abscisses 44 et 51 m (cf. tableau V.1). Cela prouve que la combustion du coke a lieu dans cette zone du four puisqu'il n'y a pas de dégagement de méthane (ni de CO ou de CO₂) à cet endroit. Une concentration de 2% de CO₂ en $x = 33$ m correspond à environ 11,5 mol/s si l'on se base sur le débit d'azote, constant le long du four, estimé d'après la mesure du débit des fumées. Cela représente 0,66 t/h de charbon, soit environ 3 % de la charge, qui serait consommé sur les 23 derniers mètres du four.

Une confirmation de la combustion du coke du lit est donnée par la mesure des profils thermiques de la charge et du gaz dans le four tournant (figure V.23). L'élévation de température du solide (d'environ 100°C) au delà du point de croisement des courbes de température indique en effet la présence d'une source de chaleur au sein de la charge.

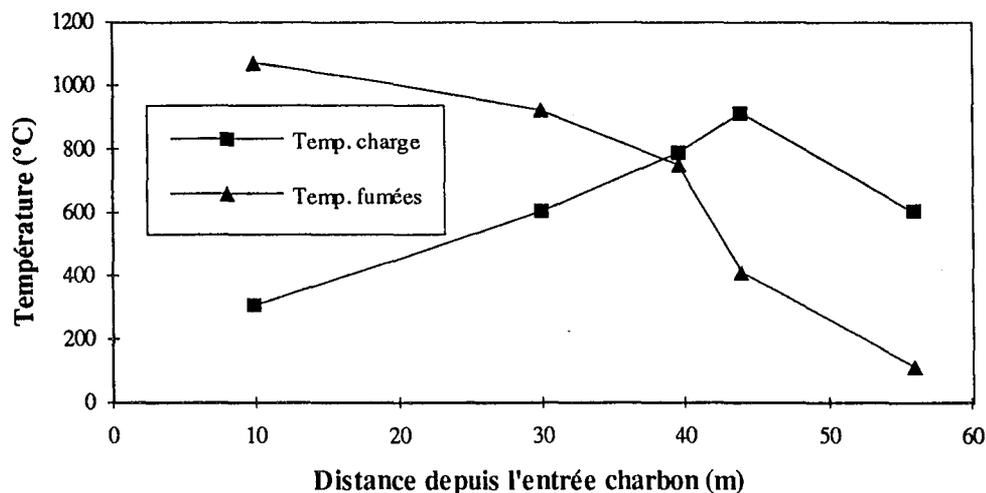
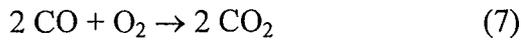


Figure V.23 : Profils thermiques de la charge et du gaz dans le four tournant industriel (mesures effectuées le 08/06/94)

V.2.1.2 MODELISATION

Comme toute réaction gaz-solide, la combustion du coke fait intervenir différents processus : le transfert externe (diffusion à travers la couche limite entourant les grains), le

transfert interne (diffusion au sein du solide poreux), l'adsorption des réactifs, la réaction chimique et la désorption des produits. Ce sont les étapes les plus lentes qui vont fixer la vitesse apparente de la réaction. Un schéma réactionnel simplifié de la combustion du coke est donné par Tsuji [70] :



Les réactions 4 à 6 ont lieu à la surface du carbone alors que la réaction 7 se produit dans le gaz.

Les résultats des expériences de Tu [71] portant sur la combustion de sphères de charbon de 2,5 cm de diamètre ont fait l'objet d'une étude approfondie par Essenhigh [72]. Il en résulte que trois phénomènes sont potentiellement limitants : le transfert externe, l'adsorption et la désorption. La vitesse apparente de combustion des grains est bien représentée par la somme des trois résistances en série :

$$\bar{r}_c = \left(\frac{1}{r_a} + \frac{1}{r_d} + \frac{1}{\bar{r}_t} \right)^{-1} \quad \{V.3\}$$

où : r_a est la vitesse d'adsorption (cinétique d'ordre 1) : $r_a = k_{oa} \exp(-E_a / RT) P_{O_2}$

r_d est la vitesse de désorption (cinétique d'ordre 0) : $r_d = k_{od} \exp(-E_d / RT)$

\bar{r}_t est la vitesse apparente en régime de transfert externe : $\bar{r}_t = \frac{6 k_D}{D_p} C_{O_2}$

Le coefficient de transfert k_D est calculé par l'intermédiaire du critère de Sherwood Sh donné par la corrélation de Ranz et Levenspiel [71] :

$$Sh = \frac{k_D D_p}{\mathcal{D}} = 2 + 0,6 Re^{1/2} Sc^{1/3} \quad \{V.4\}$$

avec : nombre de Reynolds : $Re = \frac{\rho_g u_g D_p}{\mu}$

nombre de Schmidt : $Sc = \frac{\mu_g}{\rho_g \mathcal{D}}$

où D_p est le diamètre de la particule; u_g , ρ_g , μ_g sont respectivement la vitesse, la masse volumique et la viscosité du gaz ; \mathcal{D} est la diffusivité de l'oxygène dans l'azote.

La corrélation utilisée ici n'est valable que pour une sphère isolée dans un courant gazeux, ce qui ne correspond pas à la situation du four tournant où le grain roule sur le talus. Intuitivement, la valeur de k_D réelle est plus faible que la valeur calculée ci-dessus. Il faut donc appliquer un facteur correctif κ ($0 < \kappa < 1$) au calcul du coefficient de transfert. Une valeur de κ égale à 0,55 donne de bons résultats pour la modélisation du four tournant (cf. § VI.4.2).

A basse température (inférieure à 1000 K), la combustion a lieu en régime chimique car elle est limitée par le phénomène de désorption. A haute température, c'est le transfert

externe qui constitue la principale résistance du processus réactionnel. La combustion des particules peut donc être simulée dans le modèle de grain par un terme source présent dans chaque volume de contrôle à l'intérieur du grain (cf. annexe IV). A basse température la vitesse de combustion varie en fonction du rayon et est déterminée par la température au point considéré. Aux températures plus élevées, la vitesse de combustion est identique dans toute la particule, déterminée par le coefficient de transfert de l'oxygène dans la couche limite autour du grain.

V.2.2 Combustion des poussières

D'après Perron [40], la combustion des poussières pourrait constituer une part non négligeable de l'apport énergétique dans le four tournant. En effet, dans le procédé qu'il modélise (la calcination du coke de pétrole) la production de poussières peut atteindre 5% en masse de la charge. La combustion de ces envols représenterait ainsi 14 % de l'apport de chaleur dans le four, soit autant que l'énergie dégagée par la combustion du coke du lit.

L'approche d'Essenhig [72] convient bien à la modélisation de la combustion de ces fines particules de charbon. Compte tenu du faible diamètre des grains, le transfert externe ne limite plus la combustion à haute température, mais la cinétique d'adsorption de l'oxygène devient alors limitante.

Le problème majeur consiste à simuler de façon réaliste la génération de poussières dans le four tournant. D'après le travail expérimental de Tackie [73], la production de poussière est fortement influencée par la vitesse des gaz au dessus du lit. L'augmentation du taux de remplissage du four et la vitesse de rotation conduisent également à une augmentation de la quantité de poussières engendrées. Li [74] propose une corrélation empirique pour la vitesse de production des poussières dans un four de calcination de coke de pétrole :

$$r_p = K \frac{n T_g^{3/4} (A_s R_{pi}^3 u_g \rho_g)^{1/2}}{\rho_s^2} \quad \{V.5\}$$

où K est une constante qui doit être ajustée en fonction du four à modéliser.

Le manque de données expérimentales concernant la génération de poussières dans le four tournant de pyrolyse du charbon ne nous permet pas de prendre en compte ce phénomène de façon détaillée dans la modélisation du four. Seuls un bilan matière et un bilan thermique sur le four tournant permettraient d'évaluer l'importance de la combustion des poussières. Malheureusement, la précision des données disponibles sur les bilans matière et thermique de l'installation industrielle ne nous permet pas de mettre en évidence ce phénomène.

V.3 Conclusion

La combustion des matières volatiles sera supposée instantanée dans le modèle de four tournant. Les analyses des prélèvements de gaz ainsi que les simulations effectuées montrent en effet que les vitesses de combustion sont suffisamment rapides pour que leurs cinétiques ne soient pas modélisées. Le méthane, l'hydrogène et le monoxyde de carbone seront donc supposés être consommés au fur et à mesure de leur dévolatilisation.

Le craquage des goudrons est également pratiquement instantané dans les conditions du four tournant, mais la nature des produits de craquage n'est pas connue avec précision. Cependant une simulation satisfaisante a été obtenue avec les résultats expérimentaux de Hesp [58] qui considère que le gaz issu du craquage est composé de 60 % d'hydrogène, 20 % de méthane et 20% de CO (pourcentages molaires). La combustion des produits de craquage a lieu en défaut d'oxygène dans le four et d'après la simulation le méthane et l'hydrogène présents dans les fumées proviennent exclusivement du craquage des goudrons.

D'après les analyses de gaz, la combustion du coke du lit consommerait environ 3 % en masse du charbon enfourné. La combustion des particules sera simulée par un nouveau terme source dans le modèle de grain représentant la pyrolyse du charbon.



Chapitre VI

Modèle de four tournant

Le modèle global de four tournant a été conçu dans ses grandes lignes par F. Hanrot [2]. Les résultats des études bibliographiques et expérimentales présentés dans les quatre chapitres précédents de ce manuscrit y ont été incorporés. Les principales modifications apportées à ce modèle permettent de prendre en compte :

- le profil de chargement du four
- la cinétique de dévolatilisation de chaque constituant des MV
- le rayonnement paroi/charge
- la combustion du coke
- l'extinction.

D'autre part, des mesures effectuées sur le four tournant industriel permettent maintenant de valider les résultats de ce modèle.

VI.1 Principe de la modélisation et hypothèses

VI.1.1 Discrétisation du four en "tranches"

Le four tournant est divisé en portions d'égale longueur ΔL qui sont autant de réacteurs élémentaires en cascade (figure VI.1). Les échanges de matière entre deux réacteurs consécutifs se limitent aux mouvements convectifs de la charge et du gaz. En effet, le gaz s'écoule en régime turbulent (avec un nombre de Reynolds supérieur à 40 000), le nombre de Peclet est donc voisin de 5, ce qui nous permet de négliger les phénomènes de diffusion gazeuse (cf. Patankar [75]). L'étude du mouvement de la charge a par ailleurs montré que le régime d'écoulement de l'ensemble des grains est proche de l'écoulement piston (cf. § III.2.2.3).

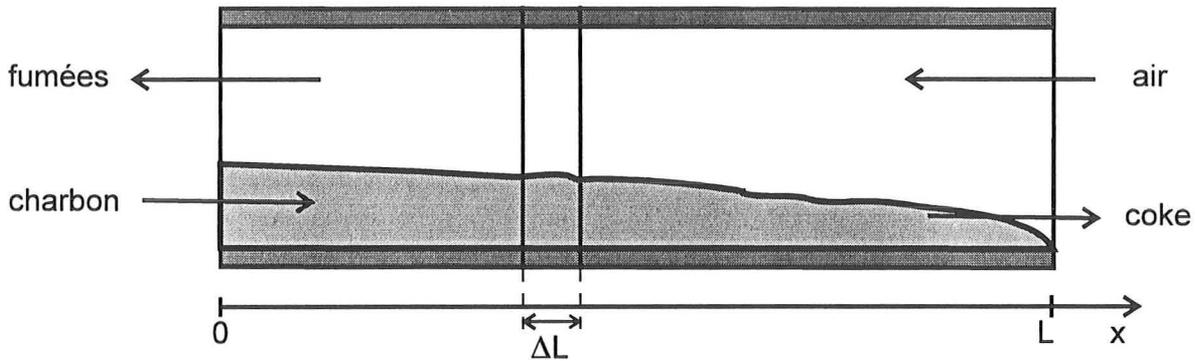


Figure VI.1 : Portion du tube délimitée par deux sections transversales

Les phénomènes de rayonnement thermique dans le sens longitudinal du four pouvant être négligés (cf. § IV.1), seuls les échanges thermiques dans une section perpendiculaire à l'axe du four sont pris en compte dans le modèle. Les gradients axiaux de températures sont négligés sur la longueur ΔL . De même, la composition de la phase gazeuse est supposée constante sur chaque portion de four.

Le calcul débute côté charbon : la composition et la température de la charge sont connues mais il faut donner une estimation du débit, de la composition et de la température des fumées. Les températures du gaz, du solide et de la paroi, ainsi que la composition de chaque phase, sont calculées successivement pour chaque portion de tube. Si l'initialisation est correcte, la composition et la température du gaz calculée côté coke correspondent à l'air qui est injecté dans le four. Dans le cas contraire, il faut modifier la composition ou la température des fumées côté charbon et reprendre le calcul.

VI.1.2 Hypothèse du "grain-témoin"

Dans son mouvement au sein de la charge, un grain passe successivement dans la zone active puis contre la paroi ou à l'intérieur de la charge (figure VI.2). Ainsi chaque particule a sa propre histoire thermique qui dépend des rayons successifs parcourus au sein de la charge. Cependant, en raison du brassage des grains dans la couche active, les particules suivent toutes en moyenne le même parcours. Ainsi, le temps de séjour moyen sur le talus τ_f et le temps de séjour moyen contre la paroi τ_p sont identiques pour chaque particule. Le temps de séjour moyen au coeur de la charge est alors $(\tau - \tau_f - \tau_p)$.

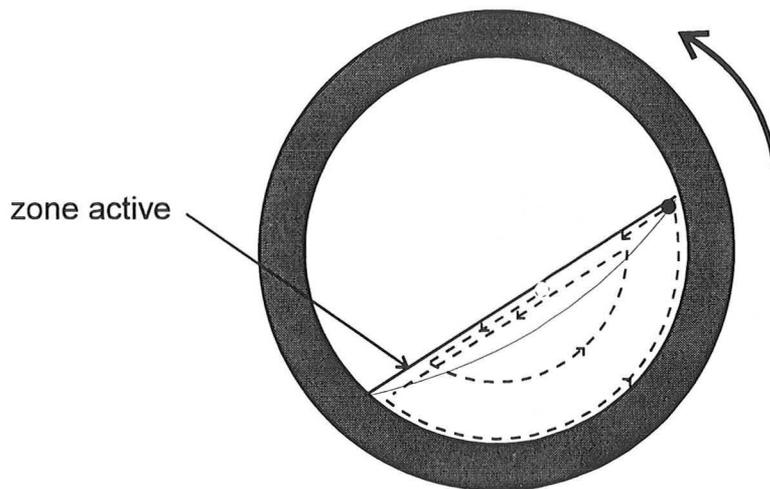


Figure VI.2 : Mouvement d'un grain dans une section transversale du four

La méthode utilisée consiste à suivre l'évolution d'un "grain témoin", image de toute la charge, effectuant un parcours moyen rythmé par la valeur des rapports τ_f/τ et τ_p/τ . Le rapport τ_f/τ est donné par la formule {III.14}. Le rapport τ_p/τ peut être calculé de la même façon en considérant qu'il n'y a pas d'accumulation de matière dans une section du four par :

$$\frac{\tau_p}{\tau} = \frac{l_p/D_{app}}{S/s_{app}} \quad \{\text{VI.1}\}$$

où l_p est la distance parcourue par un grain contre la paroi : $l_p = D \omega/2$

d'où :

$$\frac{\tau_p}{\tau} = \frac{4 \omega D_{app}}{D (\omega - \sin \omega)} \quad \{\text{VI.2}\}$$

Le rapport τ_p/τ vaut 0,05 côté charbon dans le four tournant de Carling. Compte tenu de la durée d'un passage contre la paroi (20 s) et de la vitesse de progression axiale du grain (25 m/h), cela signifie que la distance parcourue entre deux passages successifs contre la paroi est de 3 m. De même, la valeur du rapport τ_f/τ (0,04) signifie qu'un grain passe en moyenne tous les 14 cm à la surface du talus.

Pour une longueur de tranche de 14 cm, un grain ne passerait donc contre la paroi que toutes les 21 tranches, et ne serait plus représentatif de l'ensemble de la charge. C'est pourquoi la solution retenue a été de faire passer le grain contre la paroi dans chaque tranche, mais de diminuer le flux de chaleur qu'il reçoit à chaque passage ($1/21^e$ du flux de chaleur cédé par la paroi avec $\Delta L = 14$ cm). La valeur de cette fraction correspond à la probabilité p qu'a un grain de passer contre la paroi dans une tranche donnée. Il s'agit également du rapport entre le débit de grain contre la paroi dans cette tranche et le débit total de particules Q_n (cf. Hanrot [2]) :

$$p = \frac{\pi D n \Delta L}{60 D_{app}^2 Q_n} \quad \{\text{VI.3}\}$$

La distance parcourue par un grain entre deux passages successifs contre la paroi vaut ainsi $\Delta L/p$.

VI.2 Déroulement du calcul

VI.2.1 Profil de chargement

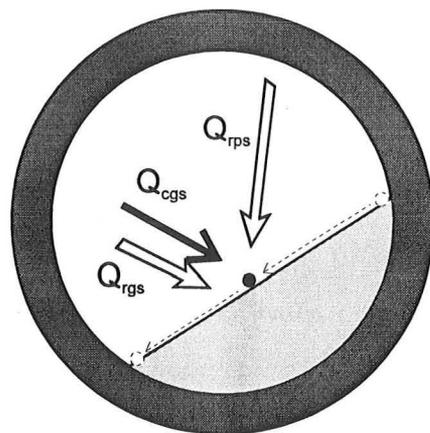
La première étape du calcul, après l'initialisation des différentes variables, est le calcul du profil de chargement du four. On utilise pour cela l'équation de Kramers {III.8}. Les données nécessaires à ce calcul sont la vitesse de rotation du four, l'angle de repos dynamique de la charge et les paramètres relatifs à la géométrie du four (diamètre, inclinaison par rapport à l'horizontale, hauteurs des diaphragmes d'entrée et de sortie). Le four étant alimenté par débordement, le débit de solide enfourné (Q_s) n'est pas un paramètre du modèle : il est une conséquence de la vitesse de rotation et il est calculé en même temps que le profil de chargement $H(x)$.

La hauteur de chargement permet, au début de chaque portion de four, de calculer le temps de séjour moyen dans la tranche considérée en fonction de sa longueur ΔL :

$$\tau = \frac{S \Delta L}{Q_v} = \frac{(\omega - \sin\omega) D^2 \Delta L \rho_v}{8 Q_s} \quad \text{avec : } \omega = 2 \cos^{-1} \left(1 - \frac{2H}{D} \right) \quad \{\text{VI.4}\}$$

VI.2.2 Grain en surface du lit

La première étape du calcul dans chaque tranche du four est le passage du grain en surface du lit. Les conditions aux limites (CL) du modèle de grain prennent en compte le rayonnement de la paroi (Q_{rps}) et du gaz (Q_{rgs}) ainsi que la convection gaz/solide (Q_{cgs}). La température de paroi utilisée est une valeur moyenne sur l'ensemble de la paroi non couverte par le solide. Cette température n'est pas connue à cette étape du calcul : il faut utiliser une valeur d'initialisation puis



reprendre ce calcul après avoir déterminé le profil thermique dans la paroi. On utilise pour cela les valeurs des températures de la paroi dans la tranche précédente, ou une valeur fixée arbitrairement (inférieure à la température du gaz) dans le cas de la première tranche du four.

La durée de ce passage en surface du lit correspond à la durée moyenne passée par un grain sur le talus dans la tranche considérée, soit d'après les équations {III.14} et {VI.4} :

$$\tau_f = \tau \frac{8 D_{app} \sin \frac{\omega}{2}}{(\omega - \sin \omega) D} = \frac{D \Delta L \rho_v D_{app} \sin \frac{\omega}{2}}{Q_s} \quad \{VI.5\}$$

Les flux de chaleur échangés sont exprimés dans le chapitre IV en fonction de la surface du lit $A_{cgs} \Delta L$. Ainsi le flux convectif gaz/solide s'écrit (en W) :

$$Q_{cgs}^{(1)} = A_{cgs} \Delta L h_{cgs}^{(1)} (T_g - T_s) \quad \{VI.6\}$$

où $h_{cgs}^{(1)}$ est le coefficient global de transfert par convection entre le gaz et la charge, $Q_{cgs}^{(1)}$ représentant le flux transféré du gaz vers l'ensemble des grains présents en surface du lit.

Or ce même flux de chaleur s'exprime également en fonction du nombre de grains présents en surface du lit ($A_{cgs} \Delta L / D_{app}^2$) et de la surface d'un grain (πD_p^2) par :

$$Q_{cgs}^{(2)} = A_{cgs} \Delta L \frac{\pi D_p^2}{D_{app}^2} h_{cgs}^{(2)} (T_g - T_s) \quad \{VI.7\}$$

où $h_{cgs}^{(2)}$ est le coefficient de transfert par convection à la surface d'un grain.

L'égalité des flux $Q_{cgs}^{(1)}$ et $Q_{cgs}^{(2)}$ permet de déterminer l'expression du coefficient $h_{cgs}^{(2)}$, utilisé dans le modèle de grain :

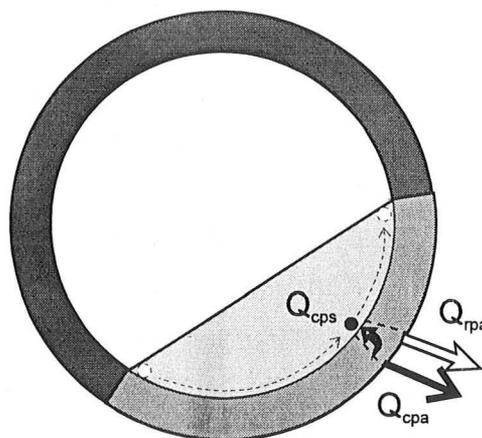
$$h_{cgs}^{(2)} = C_1 h_{cgs}^{(1)} \quad \text{avec : } C_1 = \frac{D_{app}^2}{\pi D_p^2} = \frac{0,96^2}{\pi} \quad \{VI.8\}$$

De la même façon, les coefficients de transfert par rayonnement h_{rgs} et h_{rps} utilisés dans le modèle de grain sont déterminés à partir des expressions présentées dans le chapitre IV auxquelles sont appliquées le facteur correctif C_1 .

VI.2.3 Grain contre la paroi

Le grain passe ensuite contre la paroi du four : à chaque pas de temps, le profil thermique dans la portion de paroi qui se trouve en regard du grain est calculé. La CL du modèle de grain correspond uniquement au transfert par conduction paroi/solide (Q_{cps}). Le calcul du transfert de chaleur dans la paroi prend en compte les pertes thermiques par convection et rayonnement dans l'air ambiant (Q_{cpa} et Q_{rpa}).

La durée du passage contre la paroi est fixe quelle que soit la longueur de tranche utilisée : elle ne dépend que de la vitesse de rotation du four et de l'angle de remplissage ($60 \omega / 2 \pi n$). Par contre, le flux de chaleur reçu par conduction dépend de ΔL de façon à tenir compte de la probabilité de passage du grain contre la paroi p (cf. § VI.1.2). De plus, le coefficient de transfert h_{cpc} donné au chapitre IV correspond à un échange sur la surface couverte $A_{cpc} \Delta L = \omega D \Delta L / 2$, alors que la surface prise en compte dans le modèle de grain est πD_p^2 , que

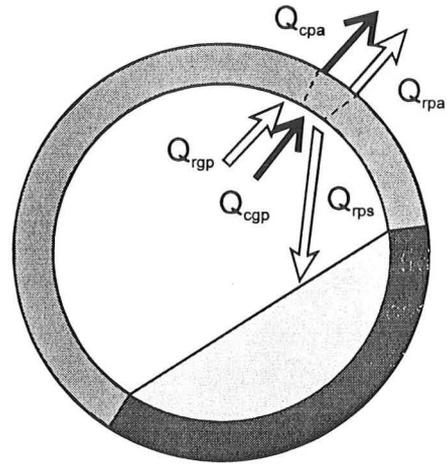


multiplie le nombre de grains contre la paroi $A_{cpc} \Delta L / D_{app}^2$. Le facteur correctif C_2 à appliquer au coefficient de transfert h_{cpc} est donc :

$$C_2 = \frac{p D_{app}^2}{\pi D_p^2} = \frac{p 0,96^2}{\pi} \quad \{\text{VI.9}\}$$

VI.2.4 Fin du calcul dans la paroi

Le profil thermique dans chaque portion de paroi non couverte est calculé en prenant en compte les flux de chaleur échangés avec le gaz (Q_{rgp} et Q_{cgp}) et le solide (Q_{rps}). Puis les étapes VI.2.2 à VI.2.4 sont renouvelées en tenant compte de la valeur réactualisée de la température paroi. Le nouveau profil thermique de la paroi est comparé au profil précédent. Si l'écart de température est inférieur à une valeur limite fixée (ΔT_p) alors le calcul passe à l'étape suivante, sinon une nouvelle boucle est effectuée. L'hypothèse du régime permanent signifie en effet qu'un élément de paroi retrouve la même température lorsque le four a effectué un tour complet : le champ de température, variable dans un repère lié à la paroi, est constant dans un repère lié au sol.



Le coefficient de transfert par rayonnement h_{rps} utilisé dans le modèle de transfert de chaleur dans la paroi doit être corrigé pour prendre en compte la surface d'échange utilisée. L'expression du flux Q_{rps} présentée au chapitre IV correspond à la surface d'échange $A_{rps} \Delta L = D \Delta L \sin(\omega/2)$ (surface du lit), et non à la surface non couverte de la paroi intérieure du four $(\pi - \omega/2) D \Delta L$. Le facteur correctif C_3 vaut donc :

$$C_3 = \frac{\sin(\omega/2)}{\pi - \omega/2} \quad \{\text{VI.10}\}$$

Le flux de chaleur Q_{rps} est calculé à deux reprises au cours de ce cycle : par le modèle de grain en utilisant une température moyenne de la paroi découverte, puis par le modèle de transfert thermique dans la paroi en utilisant une température moyenne du grain en surface du lit. Ces deux flux devraient être rigoureusement identiques, mais dans la pratique ils diffèrent de quelques pourcents, introduisant ainsi une erreur dans le bilan thermique sur la portion de four considérée. En se basant sur la valeur de Q_{rps} donnée par le calcul effectué au niveau de la paroi, le coefficient de transfert par rayonnement paroi/solide utilisé dans le modèle de grain est corrigé de façon à obtenir un flux rayonné identique.

VI.2.5 Grain à l'intérieur du lit

Enfin, le calcul effectué par le modèle de grain reprend pour un passage au coeur de la charge où les échanges thermiques avec les autres grains sont supposés nuls. Cette hypothèse est justifiée par la faible profondeur de pénétration de la chaleur dans la charge, que ce soit au contact de la paroi (11 mm) ou du gaz (4 mm) (cf. Hanrot [2]). On peut donc estimer que seule une couche de grain est sensible à la présence de la paroi ou du gaz.

VI.2.6 Bilan matière dans le gaz

Le calcul effectué par le modèle de grain donne les débits de matières volatiles dégagées dans la tranche ainsi que le débit de CO_2 issu de la combustion du coke du lit. Un bilan matière prenant en compte la combustion des gaz légers et le craquage des goudrons permet de déterminer la composition du gaz à la sortie de la tranche considérée. On suppose que l'azote est inerte dans le four et que les réactions de craquage et de combustion des gaz légers sont instantanées.

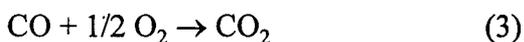
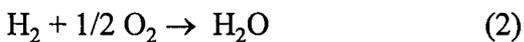
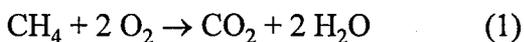
D'après l'étude présentée au chapitre V, on estime que les goudrons sont totalement craqués dans le four tournant. Ils produisent du carbone solide (20 % en masse) et un mélange gazeux (80%). Ce gaz est composé de 60 % d'hydrogène, 20 % de méthane et 20 % de monoxyde de carbone (en % molaire). La combustion des produits de craquage est incomplète : un calcul a montré que 57 % du méthane, 34 % de l'hydrogène et 36 % du monoxyde de carbone sont consommés lors d'une marche normale du four (cf. § V.1.4). Ces taux de combustion sont désignés respectivement par p_1 , p_2 et p_3 dans le cas général.

On désigne par f_{GOU} , f_{CH_4} , f_{H_2} , f_{CO_2} , f_{CO} et $f_{\text{H}_2\text{O}}$ les débits molaires de matières volatiles qui se dégagent dans la portion de four considérée, et par g_{CO} , g_{CH_4} et g_{H_2} les débits molaires de CO , CH_4 et H_2 produits par craquage des goudrons. La masse molaire du gaz de craquage est de 10 g.mol^{-1} . En utilisant une masse molaire moyenne des goudrons de 228 g.mol^{-1} on obtient :

$$g_{\text{H}_2} = 0,6 \times 0,8 f_{\text{GOU}} \times 228 / 10$$

$$\text{et } g_{\text{CO}} = g_{\text{CH}_4} = 0,2 \times 0,8 f_{\text{GOU}} \times 228 / 10$$

Les réactions de combustion des gaz légers sont les suivantes :



D'après les hypothèses mentionnées ci-dessus, les débits de gaz consommés par chaque réaction r_1V , r_2V et r_3V s'expriment par :

$$r_1V = f_{\text{CH}_4} + p_1 g_{\text{CH}_4}$$

$$r_2 V = f_{H_2} + p_2 g_{H_2}$$

$$r_3 V = f_{CO} + p_3 g_{CO}$$

On désigne par c_{CO_2} le débit molaire de CO_2 produit par la combustion du coke du lit, par F_i le débit molaire du constituant i entrant dans la tranche, et par F_i' le débit molaire sortant. D'où le bilan matière par constituant :

$$F'_{N_2} = F_{N_2}$$

$$F'_{CH_4} = F_{CH_4} + f_{CH_4} + g_{CH_4} - r_1 V$$

$$F'_{H_2} = F_{H_2} + f_{H_2} + g_{H_2} - r_2 V$$

$$F'_{CO} = F_{CO} + f_{CO} + g_{CO} - r_3 V$$

$$F'_{CO_2} = F_{CO_2} + f_{CO_2} + c_{CO_2} + r_1 V + r_3 V$$

$$F'_{H_2O} = F_{H_2O} + f_{H_2O} + 2 r_1 V + r_2 V$$

$$F'_{O_2} = F_{O_2} - c_{CO_2} - 2 r_1 V - 1/2 r_2 V - 1/2 r_3 V$$

En l'absence de cinétique de combustion et en supposant une dévolatilisation complète, ces bilans peuvent être effectués sur l'ensemble du four. Ils permettent alors de calculer la composition des fumées côté charbon en fonction du débit d'air et de déterminer les coefficients p_i permettant de satisfaire le bilan global. Ce type de calcul est effectué en début de programme pour l'initialisation de la composition du gaz. La quantité de CO_2 formé par combustion du coke est alors une inconnue dans ce bilan : elle est fixée initialement à 2 % du débit de charbon puis corrigée lors d'un deuxième calcul. L'influence de cette valeur sur les résultats du modèle étant très faible, il n'est pas nécessaire d'effectuer plus de deux simulations pour obtenir une initialisation correcte de ce paramètre.

VI.2.7 Bilan thermique dans le gaz

Les calculs effectués par le modèle de grain et le modèle de transfert thermique dans la paroi permettent d'évaluer les flux de chaleur échangés avec le gaz. Il s'agit des flux convectifs Q_{cgp} et Q_{cgs} , et des flux rayonnés Q_{rgp} et Q_{rgs} . Un bilan thermique dans le gaz prenant en compte ces échanges de chaleur ainsi que les termes sources de la phase gazeuse permet de déterminer la variation de température du gaz dans cette tranche du four.

On désigne par ΔH_c l'enthalpie des réactions de craquage des goudrons, par ΔH_i l'enthalpie de combustion du constituant i (en J/mol) et par Cp_i la chaleur spécifique du constituant i (en J/mol/K). Les termes sources dans le gaz sont les suivants (en W) :

- craquage des goudrons : $f_{GOU} \Delta H_c$
- combustion du méthane : $r_1 V \Delta H_{CH_4}$
- combustion de l'hydrogène : $r_2 V \Delta H_{H_2}$
- combustion du CO : $r_3 V \Delta H_{CO}$

- chauffage des MV de T_s à T_g :

$$\sum_i \int_{T_s}^{T_g} f_i C_{p_i} dT$$

Le bilan thermique sur la tranche de gaz comprise entre x et $x+\Delta L$ s'écrit :

$$\sum_i \int_{T_g(x)}^{T_g(x+\Delta L)} F_i C_{p_i} dT$$

$$= Q_{cgp} + Q_{cgs} + Q_{rgp} + Q_{rgs} - \sum_i \int_{T_s}^{T_g} f_i C_{p_i} dT - f_{GOU} \Delta H_c - r_1 V \Delta H_{CH_4} - r_2 V \Delta H_{H_2} - r_3 V \Delta H_{CO}$$

La variation de température du gaz ne dépassant jamais $5^\circ C$ sur une tranche, on suppose que la chaleur spécifique varie peu entre x et $x+\Delta L$, d'où :

$$\sum_i \int_{T_g(x)}^{T_g(x+\Delta L)} F_i C_{p_i} dT = \sum_i F_i C_{p_i} [T_g(x+\Delta L) - T_g(x)]$$

On détermine ainsi la température du gaz en $x + \Delta L$ à partir de la température en x et du bilan thermique ci-dessus.

VI.2.8 Simulation de l'extinction

La zone d'extinction se situe entre les abscisses 52,8 m et 55,3 m. Un débit d'eau Q_e est déversé de façon uniforme à la surface du lit de grains. On suppose que la combustion du coke est stoppée et que l'énergie nécessaire à la vaporisation de cette eau provient exclusivement du solide présent sur le talus. La puissance calorifique nécessaire ($Q_e \Delta H_s$) est donc répartie sur la charge sous la forme d'un nouveau terme source dans le modèle de grain (cf. annexe IV).

Le bilan matière dans le gaz est modifié par l'apparition d'un débit d'extinction sur le bilan en H_2O : $e_{H_2O} = Q_e \Delta L / 2,5$.

VI.3 Etude de sensibilité

Afin de pouvoir valider les résultats du modèle de four tournant, il faut dans un premier temps vérifier l'indépendance de ses résultats vis-à-vis du maillage et des autres paramètres de discrétisation. La sensibilité à certains paramètres dont les valeurs ne sont pas connues avec précision doit également être étudiée pour donner une idée de la précision de ces calculs.

VI.3.1 Influence des paramètres de discrétisation

Les paramètres de discrétisation du modèle de four tournant sont au nombre de cinq : le nombre de mailles dans le grain (N), le nombre de secteurs pour le calcul effectué dans la paroi (N_θ), le nombre de mailles dans un secteur (N_p), la longueur d'une tranche de four (ΔL) et le pas de temps utilisé dans le modèle de grain (Δt). La convergence est atteinte sur une tranche lorsque l'écart obtenu entre deux calculs du profil thermique dans la paroi est inférieur à ΔT_p . De même que pour les paramètres de discrétisation, la valeur de ΔT_p utilisée ne doit pas avoir d'influence significative sur les résultats du modèle.

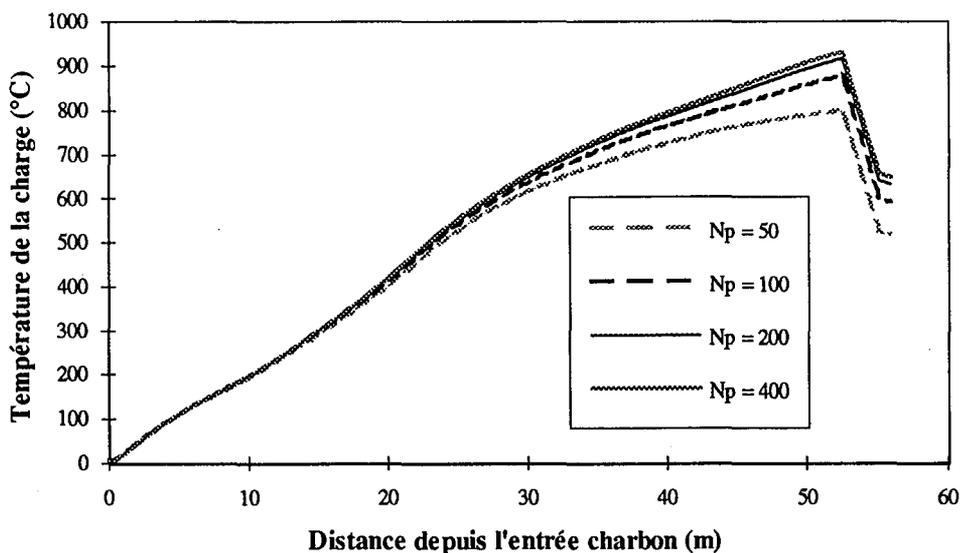


Figure VI.3: Influence du paramètre N_p sur le profil thermique de la charge

La figure VI.3 permet de visualiser l'influence du nombre de mailles dans l'épaisseur de la paroi (N_p) sur le profil thermique de la charge. Il est nécessaire de fixer la valeur de N_p au delà de 200 pour que les résultats du modèle soient indépendants de ce paramètre. Une solution permettant de réduire le nombre de mailles dans la paroi serait d'utiliser un maillage évolutif. En effet, seule une épaisseur d'environ 15 mm de la paroi, subissant de fortes fluctuations de températures, nécessite l'emploi d'un maillage fin.

Le tableau VI.1 permet de rendre compte de l'ensemble des résultats de l'étude de sensibilité aux paramètres de discrétisation. L'influence de chaque paramètre sur la température maximale de la charge et sur la température du gaz côté coke peut être évaluée. Les valeurs des paramètres en gras correspondent à un compromis entre la précision souhaitée pour les résultats et le temps de calcul du modèle. Ces valeurs seront utilisées pour toutes les simulations suivantes.

Paramètre	Valeur	T _s maximale (°C)	T _g côté coke (°C)
N	400	919	122
	200	921	122
	100	921	124
	50	924	125
N _θ	400	916	130
	250	921	122
	100	931	97
	50	940	81
N _p	400	935	108
	200	921	122
	100	881	173
	50	802	511
ΔL (m)	0,1	831	96
	0,2	921	122
	0,3	923	129
Δt (s)	0,001	922	121
	0,002	921	122
	0,005	922	121
	0,1	900	145
	0,2	863	168
ΔT _p (°C)	0,05	921	122
	0,1	900	145
	0,2	858	176
	0,5	946	90

Tableau VI.1 : Influence des paramètres de discrétisation

Le paramètre ΔT_p a une forte influence sur les résultats du modèle. Aucune convergence du calcul n'a pu être obtenue au-dessous de 0,05°C. Toutefois, on atteint ici une limite physique, une différence de température de quelques centièmes de degrés n'ayant plus

beaucoup de signification. D'après ces résultats, la précision obtenue sur la température maximale du solide est donc de l'ordre de 20°C soit environ 2 %.

La longueur de tranche (ΔL) est un paramètre particulier : la sensibilité des résultats à ce paramètre est très faible au-delà de 0,2 m alors qu'une valeur inférieure provoque d'importantes modifications. L'explication de ce comportement réside dans le caractère instationnaire des calculs effectués par le modèle de grain. Le temps de séjour en surface du talus dans une tranche est proportionnel à ΔL mais une augmentation de la fréquence des passages sur le talus provoque un accroissement de la vitesse de chauffe du grain. La figure VI.4 illustre cette affirmation par deux cas simples : un grain subi successivement un passage dans une atmosphère à 800°C pendant 2 s puis un refroidissement ($h = 0$) pendant 18 s (cas n°1) ou le même cycle avec des durées diminuées de moitié (cas n°2). La différence de température au coeur du grain est nettement visible à la fin du quatrième cycle.

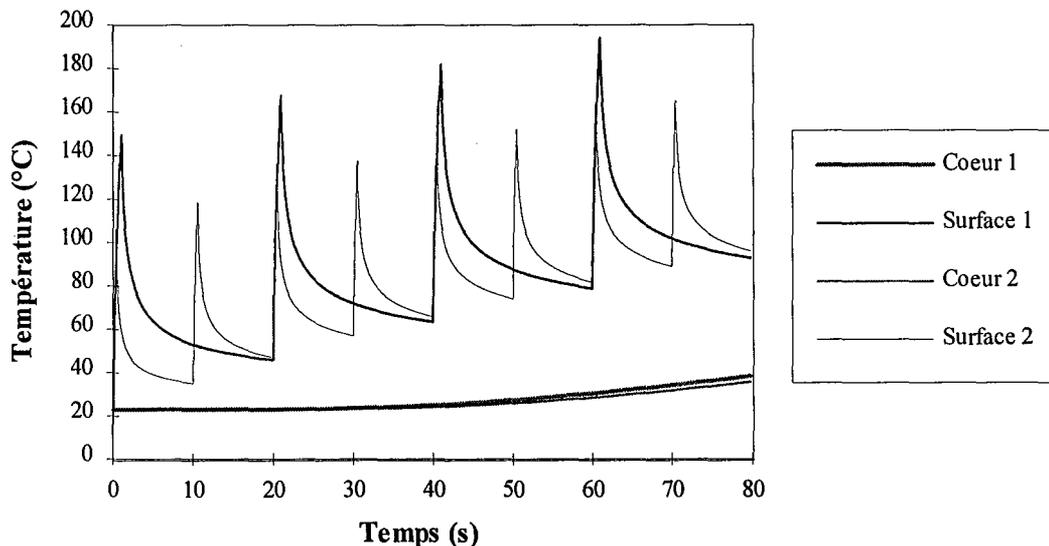


Figure VI.4 : Mise en évidence de l'influence de ΔL sur le profil thermique à coeur et en surface d'un grain

La fréquence des passages en surface du talus a été calculée au § VI.1.2 : la distance moyenne entre deux apparitions d'un grain sur le talus est de 14 cm. La longueur d'une tranche doit donc être fixée à cette valeur pour que le parcours du "grain-témoin" au sein de la charge corresponde au parcours moyen d'un grain : la vitesse de chauffe obtenue sera ainsi plus proche de la réalité.

VI.3.2 Influence des paramètres liés aux transferts thermiques

Parmi les nombreux paramètres du modèle (dont la liste se trouve en annexe VII), certains sont connus avec moins de précision car ils sont issus de la littérature ou car ils n'ont

pas été mesurés avec exactitude. Ces paramètres concernent essentiellement les transferts de chaleur : il s'agit des émissivités du solide (ϵ_s) et de la paroi interne (ϵ_p), de la contribution des poussières à l'émissivité du gaz (ϵ_{pou}) et des coefficients de transfert par convection gaz/paroi (h_{cgp}), gaz/solide (h_{cgs}) et paroi externe/air ambiant (h_{cpa}). L'influence de l'enthalpie des réactions de pyrolyse (ΔH_p), de l'enthalpie des réactions de craquage des goudrons (ΔH_c) et de la conductivité thermique de la paroi (λ_p) doit également être examinée.

Le tableau VI.2 permet d'évaluer l'influence de chaque paramètre sur la température maximale de la charge et la température du gaz côté coke.

Paramètre	Valeur	T _c maximale (°C)	T _g côté coke (°C)
ϵ_s	0,8	921	122
	0,9	916	47
	1	903	-19
ϵ_p	0,8	921	122
	0,9	925	67
	1	922	-5
ϵ_{pou}	0	875	279
	0,05	921	122
	0,1	931	29
h_{cgp} (W/m ² /K)	3	921	150
	10	921	122
	30	896	59
h_{cgs} (W/m ² /K)	3	921	163
	10	921	122
	30	874	25
h_{cpa} (W/m ² /K)	1	872	163
	17	921	122
	30	937	114
ΔH_p (kJ/kg)	100	747	121
	300	921	122
	600	1090	297
ΔH_c (kJ/mol)	2200	648	81
	2400	956	60
	2600	1070	12
λ_p (W/m/K)	1,60	921	122
	2,45	1000	85

Tableau VI.2 : Influence des paramètres liés aux transferts thermiques

La température du gaz côté coke est beaucoup plus sensible aux variations de ces paramètres que la température maximale de la charge. Cependant, une variation de 5°C de la température du gaz côté charbon provoque une variation d'environ 40°C côté coke, ainsi il est possible de rectifier la température de l'air injecté en agissant faiblement sur l'initialisation de la température du gaz.

Pour les six premiers paramètres du tableau VI.2, la température maximale de la charge reste élevée (supérieure à 870°C) dans tous les cas. Le solide reste donc converti à 100 %, seul le taux de dévolatilisation de l'hydrogène pouvant subir de légères modifications. La combustion du coke n'est jamais modifiée de façon importante car elle est rapidement limitée par le transfert externe (au-delà de 750°C).

La sensibilité du modèle aux enthalpies de réactions (ΔH_p et ΔH_c) et à la conductivité thermique de la paroi est plus importante. Ces paramètres devraient donc être déterminés avec précision. En ce qui concerne λ_p , la valeur la plus faible (correspondant à une absence de diffusion de carbone dans la paroi) est sans doute proche de la réalité puisque le béton réfractaire de la paroi interne est remplacé périodiquement. Pour ce qui est de l'enthalpie de réaction de la pyrolyse, sa valeur a été fixée par la suite à 300 kJ/kg, valeur jugée raisonnable compte tenu des résultats de l'étude bibliographique. Par contre, on ne dispose pas de résultats concernant l'enthalpie de craquage des goudrons. La valeur de 2400 kJ/mol a été déterminée de façon à satisfaire le bilan thermique dans le gaz.

Les valeurs des paramètres en gras seront utilisées par la suite pour toutes les simulations.

VI.4 Validation du modèle

La validation du modèle de four tournant nécessite des données précises sur le fonctionnement de l'installation industrielle. Avant cette thèse, il n'avait été effectué aucune mesure du profil thermique de la charge et du gaz sur le four tournant de Carling. Des ouvreaux percés dans la paroi du four (figure VI.4) ont permis de réaliser pour la première fois des mesures de températures précises et d'effectuer des prélèvements de solide et de gaz le long du four.

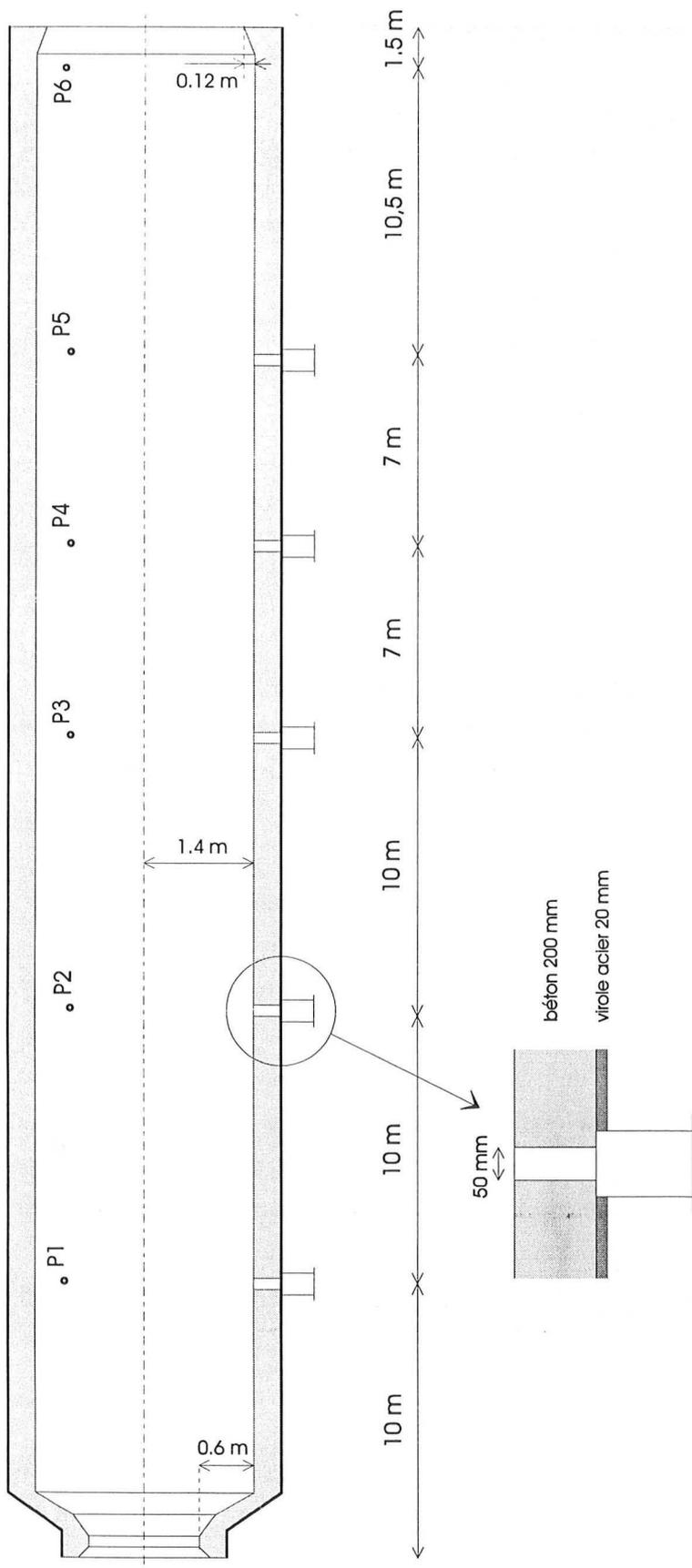


Figure VI.4 : Schéma du four tournant de Carling

VI.4.1 Mesures effectuées sur le four tournant industriel

Ces mesures ont nécessité l'emploi de techniques spécifiques développées au Centre de Pyrolyse de Marienau. En effet, les sondes de températures installées sur le four ne peuvent fournir que des valeurs indicatives servant à la conduite de l'installation. Les sondes "produit", solidaires de la paroi, passent alternativement dans la charge et dans le gaz. Compte tenu de l'importante inertie de ces thermocouples, les températures indiquées par ces sondes sont donc intermédiaires entre celles du gaz et celles de la charge. Les sondes "fumée", plus longues, ne posent pas ce type de problème car elles sont en contact permanent avec le gaz. Par contre, la mesure est perturbée par les échanges par rayonnement se produisant entre les sondes, la paroi et le solide.

VI.4.1.1 TECHNIQUES UTILISEES

- Température de la charge

Les mesures sont effectuées à travers les ouvreaux percés dans la paroi du four à l'aide d'un thermocouple de type K de 1 mm de diamètre. Le thermocouple gainé est mis en place sans qu'un arrêt du four soit nécessaire. Grâce à un temps de réponse assez court, la mesure s'effectue également sans arrêter la rotation alors que le thermocouple plonge dans la charge (figure VI.5).

La température du coke à la sortie du four est mesurée à travers une trappe située sur le capot de chauffe.

- Température des fumées

Les mesures sont effectuées à l'aide d'un pyromètre à aspiration, ce qui permet d'éviter les perturbations liées aux phénomènes de rayonnement à l'intérieur du four. Un arrêt de la rotation du four de 2 minutes permet d'introduire le pyromètre à travers l'ouveau et d'obtenir une valeur stable de la température (figure VI.5). Il est ensuite nécessaire d'attendre un minimum d'une demi-heure pour que le four retrouve une marche normale.

Aucune mesure n'a pu être effectuée en P2 (dans la zone de craquage des goudrons) en raison de l'obstruction de l'ouveau par les dépôts de graphite.

- Prélèvements de solide

Des prélèvements de semi-coke ont pu être pratiqués à travers chaque ouveau à l'exception de P2. Du coke a été prélevé en sortie de four à travers la trappe du capot de chauffe. Ces échantillons ont été immédiatement trempés à l'eau pour arrêter la pyrolyse et éviter l'inflammation. Le charbon a été prélevé sur la bande de chargement.

- Prélèvements de gaz

Les prélèvements de gaz sont effectués à l'aide d'une canne refroidie à l'eau. Il ont été effectués à travers les ouvreaux (sauf en P2), à travers les trappes des collecteurs, à travers la fausse porte placée sur le capot de chauffe (à 5 mètres de la sortie du four) et à travers le canon à air avec une canne de 16 mètres de long.

Les échantillons sont prélevés en ampoule de verre afin d'éviter la perte d'hydrogène due à l'emploi de baudruches. Les ampoules sont initialement remplies d'air et purgées en début de prélèvement. Un filtre placé avant l'ampoule permet de piéger l'eau et les goudrons.

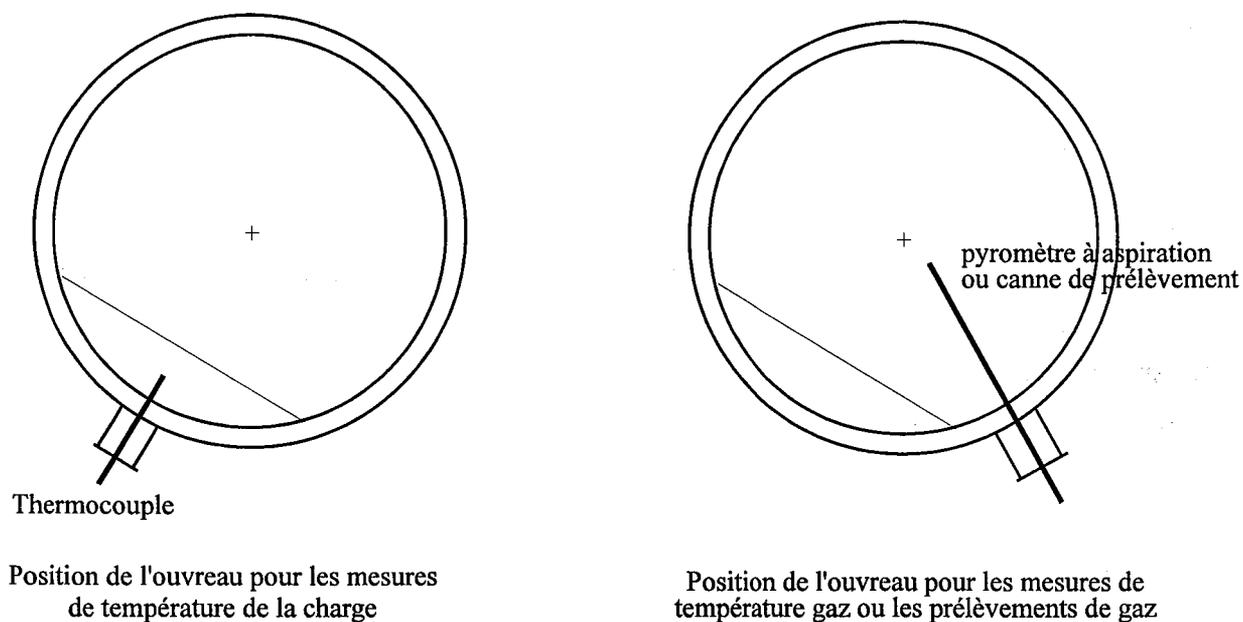


Figure VI.5 : Position du four pour les mesures et les prélèvements

VI.4.1.2 RESULTATS

- Températures de la charge et des fumées

Deux campagnes de mesures ont été réalisées, la première en février 93 et la deuxième en juin 94. Les résultats sont regroupés dans le tableau VI.3 et visualisés sur la figure VI.6. La température de l'air côté coke correspond à la mesure effectuée à travers le capot de chauffe sur les entrées d'air parasites.

Pour ces deux séries de mesures, le maximum de température de la charge est situé en P5, à 45 m de l'entrée du four, et le point de croisement des courbes se situe entre 30 et 40 m, près du point P4. Le maximum de température de la charge est de 850°C pour les premiers essais et de 912°C pour les seconds. Les températures fumées en P1 et P3 sont plus faibles

pour les derniers essais. Ces différences peuvent s'expliquer en partie par la nature de la charge qui contenait du charbon Freymining lors des premières mesures.

	P1	P2	P3	P4	P5	sortie four
Charge (°C) (1)	232	435	610	780	850	625
(2)	305	-	603	788	912	600
Fumées (°C) (1)	1200	-	1010	-	410	-
(2)	1070	-	920	750	410	112

Tableau VI.3 : Températures de la charge et des fumées le 23/02/93 (1) et le 08/06/94 (2)

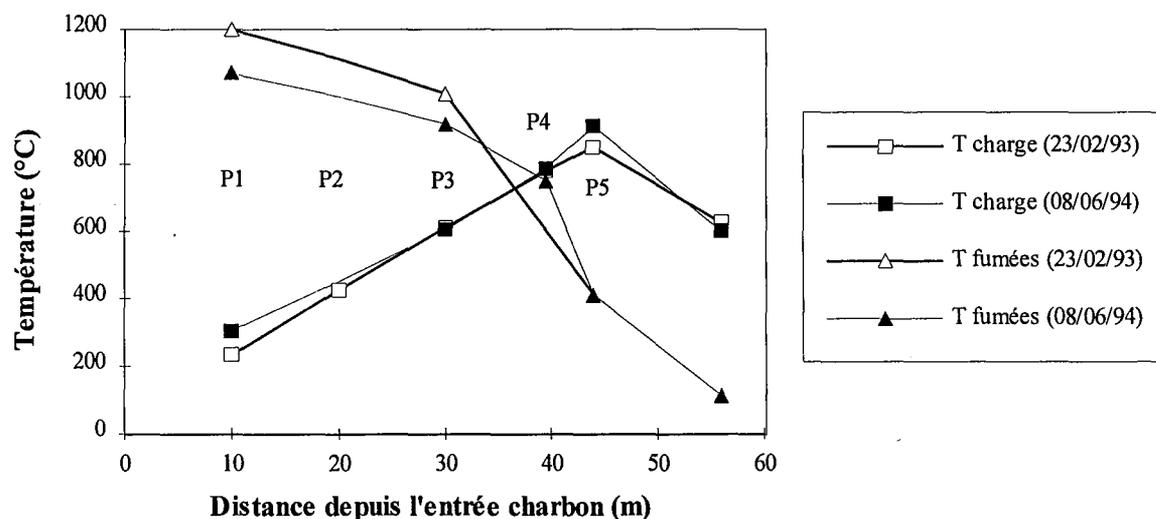


Figure VI.6 : Températures de la charge et des fumées le long du four

- Température de la paroi extérieure

La température de la paroi extérieure a été mesurée à l'aide d'un thermomètre à contact. Les résultats sont regroupés dans le tableau VI.4 en fonction de l'abscisse x (distance depuis l'entrée charbon) et visualisés sur la figure VI.7.

La différence de température de la paroi entre le 8 et le 9 juin alors que les conditions de fonctionnement du four étaient identiques est due aux conditions atmosphériques : le premier jour la température ambiante était de 24°C et le vent très faible alors que le deuxième jour la température ambiante était de 14°C et le vent fort.

La nette augmentation de la température de la paroi extérieure sur les 10 premiers mètres du four reflète l'évolution de la température des gaz dans cette zone. Cela indique qu'il y a défaut d'oxygène, donc absence de combustion et baisse de la température du gaz dans le sens des x décroissants entre P1 et le côté charbon.

x (m)	0	5	10	20	25	30	37	44	50
23/02/93	-	163	185	233	-	203	195	176	-
08/06/94	140	170	214	220	220	210	200	200	165
09/06/94	119	151	200	192	188	186	170	163	140

Tableau VI.4 : Température de la paroi extérieure

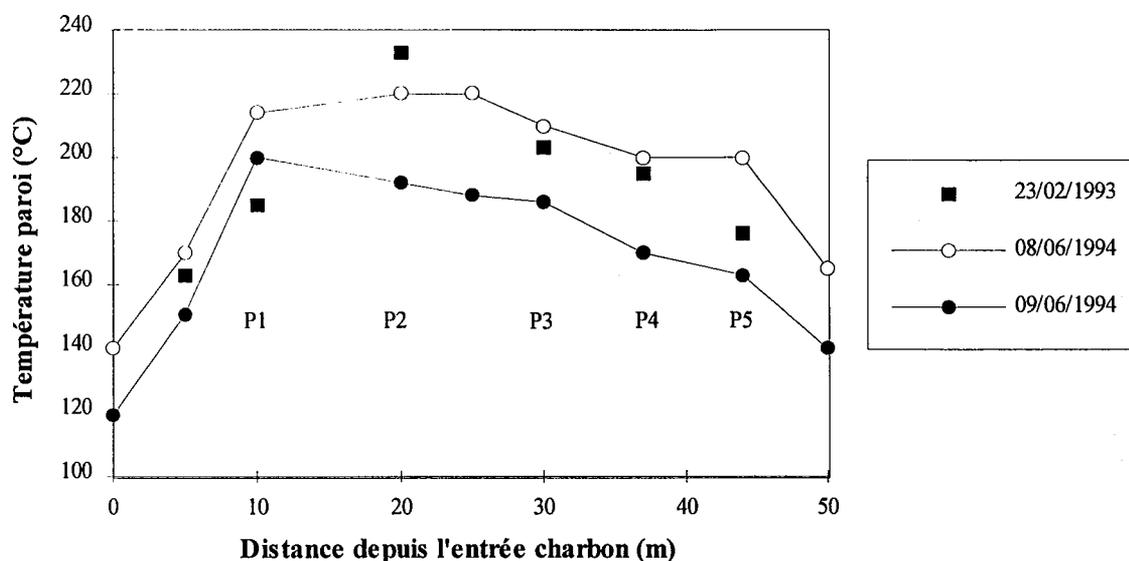


Figure VI.7 : Température de la paroi extérieure le long du four

- Analyse des prélèvements de charbon et de semi-coke

Le taux de matières volatiles a été mesuré sur chaque prélèvement de solide. Les résultats sont présentés dans le tableau VI.5 et sur la figure VI.8.

La teneur en matières volatiles est pratiquement constante jusqu'à P1 et il est probable qu'elle reste voisine de cette valeur jusqu'en P2 puisque la température du produit à cet endroit est d'environ 400°C (température de début de dévolatilisation du charbon). La perte de masse s'effectue essentiellement entre P2 et P3, c'est-à-dire entre 400°C et 600°C.

Une mesure de l'humidité du charbon prélevé sur la bande de chargement a également été effectuée : elle était de 6,4 % le 08/06/94 et de 6 % le 09/06/94 (elle varie habituellement entre 2,5 et 6,5 %).

	Charbon	P1	P3	P4	P5	Coke
23/02/93	36,4	36,0	12,0	3,4	1,2	1,0
08/06/94	31,5	33,0	6,8	2,5	1,5	1,0

Tableau VI.5 : Taux de matières volatiles des échantillons de solide (% sur sec)

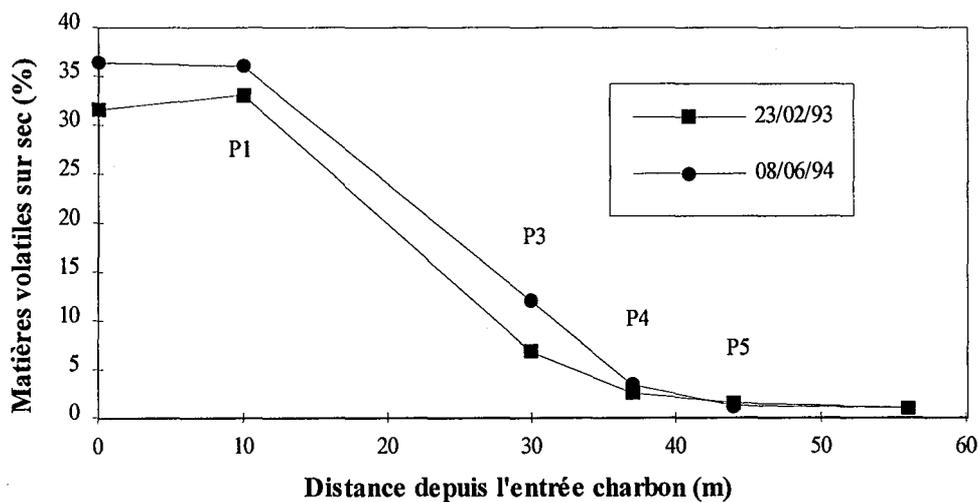


Figure VI.8 : Teneur en matières volatiles le long du four

- Analyse des prélèvements de gaz

Les résultats de ces analyses sont présentés au chapitre V (tableau V.1) et sur la figure VI.9 ci-dessous.

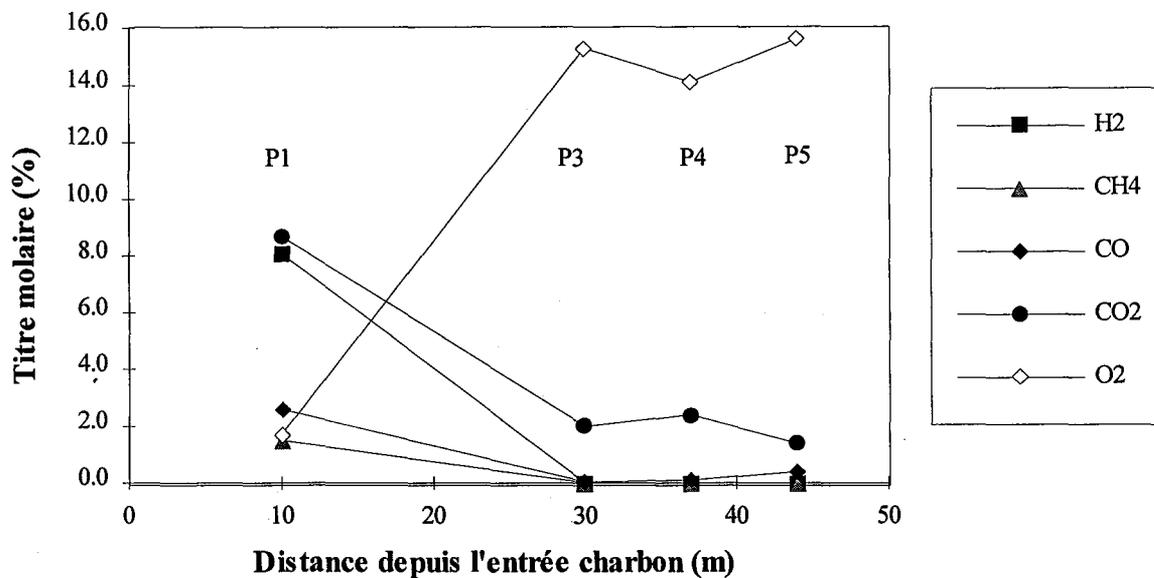


Figure VI.9 : Composition des prélèvements de gaz

En P1, on retrouve la composition des fumées côté charbon (cf. [2]). De plus, le faible pourcentage d'oxygène en P1 confirme l'absence de combustion entre P1 et le côté charbon.

Les autres analyses donnent une composition proche de l'air entre P3 et le côté coke, avec une quantité importante de CO₂ (de 1,4 à 2,4 %). Cette présence de CO₂, en particulier

au delà de P5 où la pyrolyse ne dégage que de l'hydrogène, ne peut s'expliquer que par une combustion partielle du coke. L'analyse de gaz en P5 était donc fondamentale pour mettre en évidence la combustion du coke dans le four tournant.

L'absence de méthane et d'hydrogène en P3 indique une combustion très rapide de ces gaz puisqu'entre le côté coke et P3 il se dégage tout l'hydrogène et environ la moitié du méthane contenu dans le charbon. La combustion de ce méthane n'engendre pas d'augmentation du CO₂ en P3 car la quantité qui se dévolatilise reste très faible en comparaison du débit d'azote. La présence d'hydrogène en P1 ne peut donc être due qu'à un craquage des goudrons qui se dégagent entre P1 et P3. De même, la quantité importante de CO₂ en P1 ne peut s'expliquer par la seule combustion du méthane se dégageant entre P1 et P3, mais par la combustion des produits de craquage des goudrons. L'absence de prélèvement en P2 nous prive d'informations sur une zone où s'effectue d'important phénomènes de combustion en phase gazeuse.

- Mesure du débit de fumées sortant du four

La mesure a été effectuée au tube de pitot à travers les ouvertures existantes sur les collecteurs situés entre la chambre à fumées et les chambres de post-combustion.

Le débit total des fumées à la sortie de la chambre à fumées est d'environ 47000 Nm³/h. Bien sûr cela ne constitue qu'une approximation du débit des fumées en sortie de four côté charbon en raison des phénomènes de combustion (dus aux entrées d'air parasites) et de craquage qui se produisent dans la chambre à fumées.

Cette valeur est à rapprocher de celle obtenue précédemment par F.Hanrot à l'aide d'un bilan thermique sur les chambres de post-combustion : 40000 Nm³/h.

- Mesure du débit de refus du charbon

Le débit de refus du charbon a été mesuré le 08/06/94 et le 09/06/94 sur une durée d'une heure. Il était de 1,28 t/h le premier jour et de 1,35 t/h le deuxième jour. La mesure sur la bande de chargement indiquait 24 t/h durant cette période. Le débit réellement enfourné était donc de 22,7 t/h. Cette valeur est nécessaire pour l'établissement d'un bilan matière correct sur le four tournant, en effet le refus représente une quantité non négligeable (environ 5% du débit réel enfourné).

VI.4.2 Comparaison des résultats du modèle avec les mesures

Les résultats du modèle sont comparés aux mesures effectuées le 8 et le 9 juin 1994 sur le four tournant industriel. Les paramètres de fonctionnement nécessaires à la simulation du procédé ont été fixés en fonction des conditions de marche du four durant ces deux jours (liste en annexe VII).

VI.4.2.1 PROFILS THERMIQUES

La figure VI.10 montre un bon accord entre les profils thermiques du gaz et de la charge issus du calcul et les mesures effectuées le long de l'axe du four. Aucune mesure de la température du gaz n'ayant pu être effectuée en P2 ($x = 20$ m), il n'est pas possible d'affirmer que l'allure du profil thermique du gaz entre les abscisses 20 et 30 m soit conforme à la réalité. En effet, la température de la paroi extérieure issue du calcul (figure VI.11) ne correspond qu'approximativement aux mesures en particulier dans cette zone du four. Cette différence dans l'allure des courbes s'explique certainement par l'approximation qui a été faite sur la combustion des produits de craquage des goudrons (cf. § V.1.4), mais elle ne remet pas en cause l'ensemble des résultats du modèle.

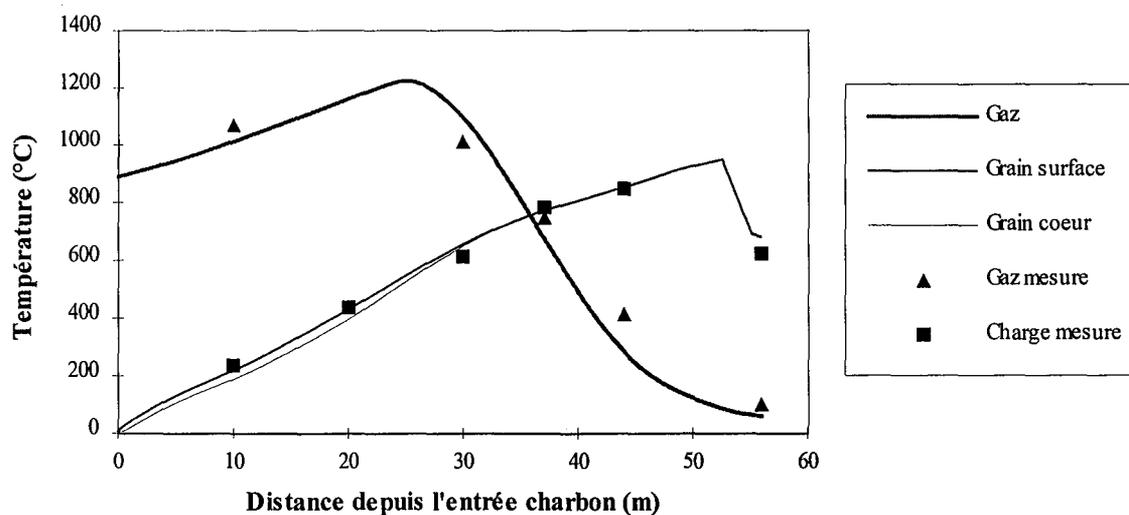


Figure VI.10 : Profils thermiques de la charge et du gaz

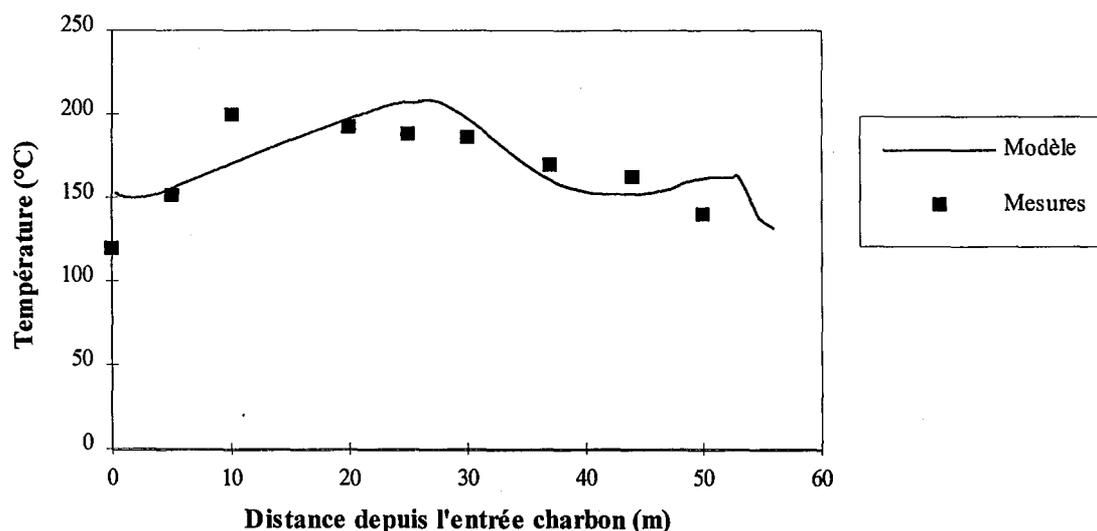


Figure VI.11 : Température de la paroi extérieure le long de l'axe du four

VI.4.2.2 TAUX DE CONVERSION

La pyrolyse étant limitée par le transfert thermique, le taux de conversion du charbon dépend de la température atteinte par le solide. Le profil thermique de la charge étant bien représenté, il en est également de même du profil du taux de conversion (figure VI.12).

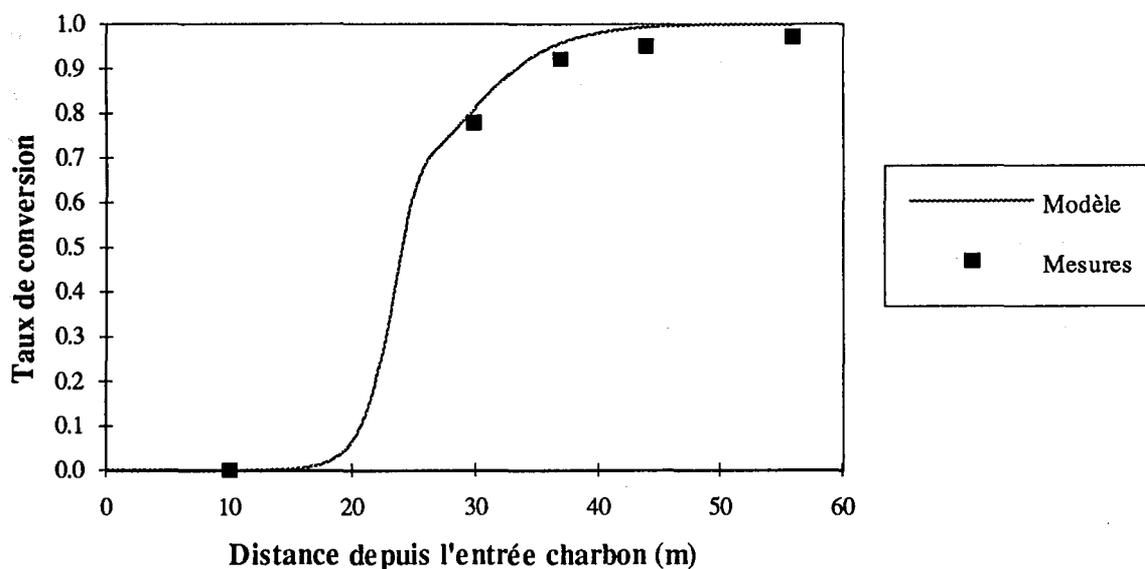


Figure VI.12 : Taux de conversion le long de l'axe du four

VI.4.2.3 COMPOSITION DU GAZ

Les débits molaires gazeux calculés par le modèle sont conformes aux débits évalués à partir des analyses effectuées sur le four tournant.

On remarque cependant deux points aberrants : le débit d'oxygène mesuré en $x = 30$ m n'est pas en accord avec les autres mesures et les débits d'hydrogène et de dioxyde de carbone mesurés en $x = 51$ m sont anormalement élevés. Ces derniers points sont certainement dus à un prélèvement effectué trop près de la surface du talus, car il a été pratiqué à l'aide d'une canne introduite à travers une trappe située sur le capot de chauffe.

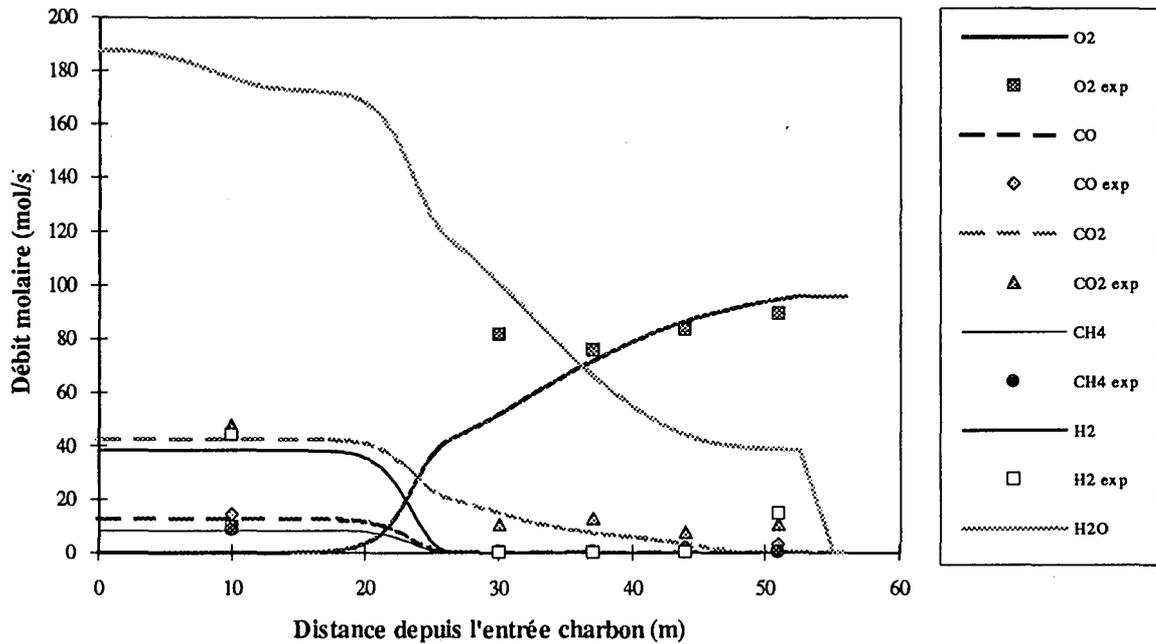


Figure VI.13 : Débit molaire des gaz le long de l'axe du four

VI.5 Conclusion

A partir du modèle de grain décrivant la pyrolyse d'une particule de charbon isolée, un modèle global de four tournant a été développé en tenant compte du mouvement d'une particule au sein de la charge, des phénomènes de combustion et des transferts thermiques. La précision (numérique) des résultats donnés par ce modèle a été évaluée par une étude de sensibilité sur les paramètres de discrétisation : elle est de l'ordre de 2 %.

Les campagnes de mesures effectuées sur le four tournant de Carling ont abouti à un ensemble de données cohérentes sur le fonctionnement du four. Elles ont permis de mieux comprendre le fonctionnement de ce procédé et de valider les résultats de la simulation.

Chapitre VII

Exploitation du modèle

Le modèle de four tournant qui a été développé permet de simuler le four de Carling dans son fonctionnement habituel mais il a également été conçu pour pouvoir s'adapter à une autre géométrie de four et à des conditions de marche différentes. Il permet ainsi d'étudier l'influence des paramètres de contrôle du procédé (vitesse de rotation, débit d'air et débit d'eau) et de tout autre paramètre de fonctionnement du four. Une optimisation du four tournant peut également être envisagée en cherchant d'une part à diminuer les pertes de coke par combustion et d'autre part à augmenter le débit de charbon enfourné.

VII.1 Simulation du four tournant en marche normale

Les valeurs des paramètres utilisées pour cette simulation sont présentées en annexe VII. Les profils thermiques et les évolutions du taux de conversion et du débit des gaz le long du four ont été présentés dans le chapitre précédent (§ VI.4.2).

VII.1.1 Bilan matière

Entrée :

Charbon sec :	22,4 t/h	6,23 kg/s
Eau d'humidité :	4,3 %	0,27 kg/s
Air :	10,2 Nm ³ /s	13,09 kg/s
Eau d'extinction :	2,5 m ³ /h	0,69 kg/s
Total :		20,28 kg/s

Sortie :

Coke :	14,0 t/h	3,90 kg/s
Fumées :	15,2 Nm ³ /s	16,38 kg/s
Total :		20,28 kg/s

Le rendement en coke sur sec est de 62,5 %. Les pertes sont constituées pour 35 % par les matières volatiles et pour 2,5 % par la combustion du coke.

VII.1.2 Bilan thermique

On désigne respectivement par T_{s_1} et T_{s_2} la température du solide à l'entrée et à la sortie du four et par $T_{s_{\max}}$ la température maximale du solide. T_{g_1} et T_{g_2} désignent respectivement la température du gaz côté charbon et côté coke. Tous les termes de ce bilan sont exprimés en kW.

Solide :

- Séchage :
 - eau de T_{s_1} à 100°C : - 107
 - vaporisation : - 613
 - eau de 100°C à T_g : - 359
- Pyrolyse :
 - charbon de T_{s_1} à $T_{s_{\max}}$: - 8816
 - enthalpie de réaction : - 2220
 - matières volatiles de T_s à T_g : - 4484
- Combustion du coke : + 4586
- Coke de $T_{s_{\max}}$ à T_{s_2} : + 2045

Gaz :

- Gaz de T_{g_1} à T_{g_2} : - 11298
- Combustion des MV (sauf goudrons) : + 22203
 - dont : CO + 1373
 - CH₄ + 7705
 - H₂ + 13125
- Combustion/craquage des goudrons : + 3008
 - dont : craquage - 12796
 - combustion CO + 1973
 - combustion CH₄ + 8957
 - combustion H₂ + 4874

Pertes thermiques : - 2716

Extinction : - 1566

BILAN : -337

	Consommé		Dégagé	
Solide	Séchage	1079	Combustion	4586
	Pyrolyse	15520	Refroidissement	2045
Gaz	Chauffage	11298	Combustion MV	25211
Pertes		2716		
Extinction		1566		
Total		32179		31842

Tableau VII.1 : Récapitulatif du bilan thermique (en kW)

L'erreur obtenue sur le bilan thermique issu de la simulation du four tournant est très faible (environ 1 % de la puissance dégagée).

La puissance nécessaire au fonctionnement du procédé est d'environ 32 MW, dont 48 % servent à la pyrolyse du charbon et 35 % à chauffer le gaz (constitué essentiellement d'azote). Les pertes thermiques représentent 8,4 % de l'énergie totale.

La combustion des matières volatiles fournit 79 % de la puissance nécessaire et la combustion du coke environ 14 %. Sur l'énergie issue de la combustion des MV, 52 % provient de l'hydrogène, 31 % du méthane, 12 % des goudrons et 5 % du monoxyde de carbone.

VII.1.3 Transferts de chaleur

La figure VII.1 présente un bilan local de puissance le long de l'axe du four.

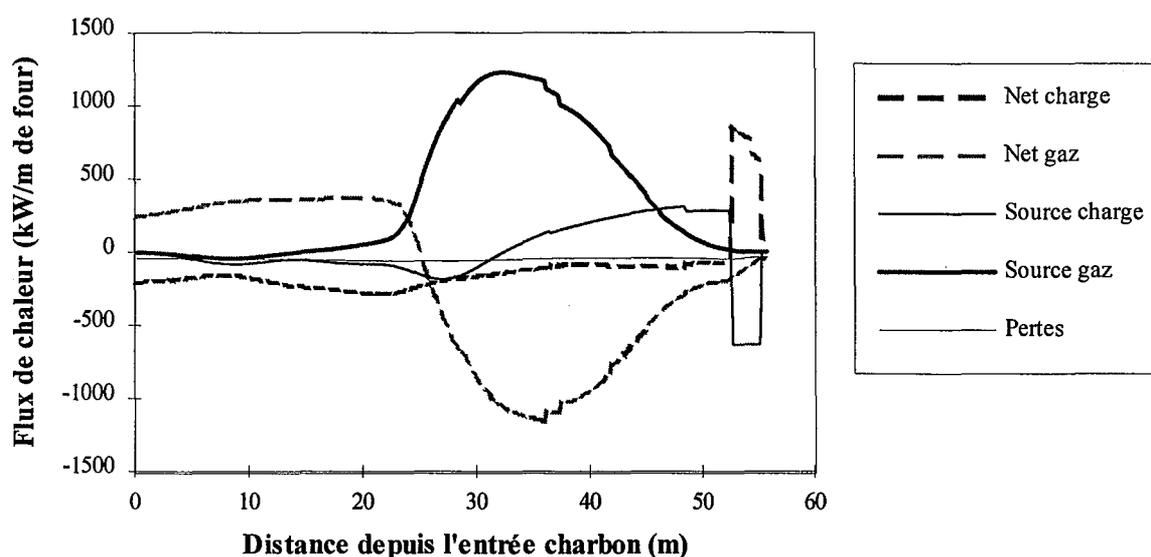


Figure VII.1 : Bilan thermique le long de l'axe du four

La montée en température linéaire de la charge s'explique par un apport régulier d'environ 200 kW/m de four sur les 30 premiers mètres. Cette énergie provient du gaz, directement ou indirectement par l'intermédiaire de la paroi. Au-delà de l'abscisse 35 m, c'est la combustion du coke qui fournit l'énergie nécessaire à la fin de la pyrolyse, le solide accumulant alors environ 100 kW/m de four. La combustion du coke n'est pas directement indispensable à la pyrolyse puisque le solide est converti à 93 % en $x = 35$ m, mais elle permet le dégagement de l'hydrogène nécessaire à l'échauffement de l'air de combustion.

Les pertes thermiques sont relativement constantes le long du four et représentent environ 40 kW/m.

La figure VII.2 permet de détailler l'origine des flux de chaleur reçus par le solide le long du four. L'apport le plus important vient du rayonnement gaz/solide qui constitue 50 % de l'énergie reçue sur les 35 premiers mètres. Le rayonnement paroi/solide et le phénomène de régénération (conduction paroi/solide) ont des contributions voisines qui représentent chacune environ 23 % du total. La convection gaz/solide est presque négligeable puisqu'elle ne représente que 5 % de l'apport énergétique.

La deuxième partie du graphique (de 35 à 56 m) permet d'évaluer la contribution du solide à l'échauffement de l'air injecté côté coke. Celle-ci est très faible par rapport à l'apport énergétique que constitue la combustion de l'hydrogène (figure VII.4).

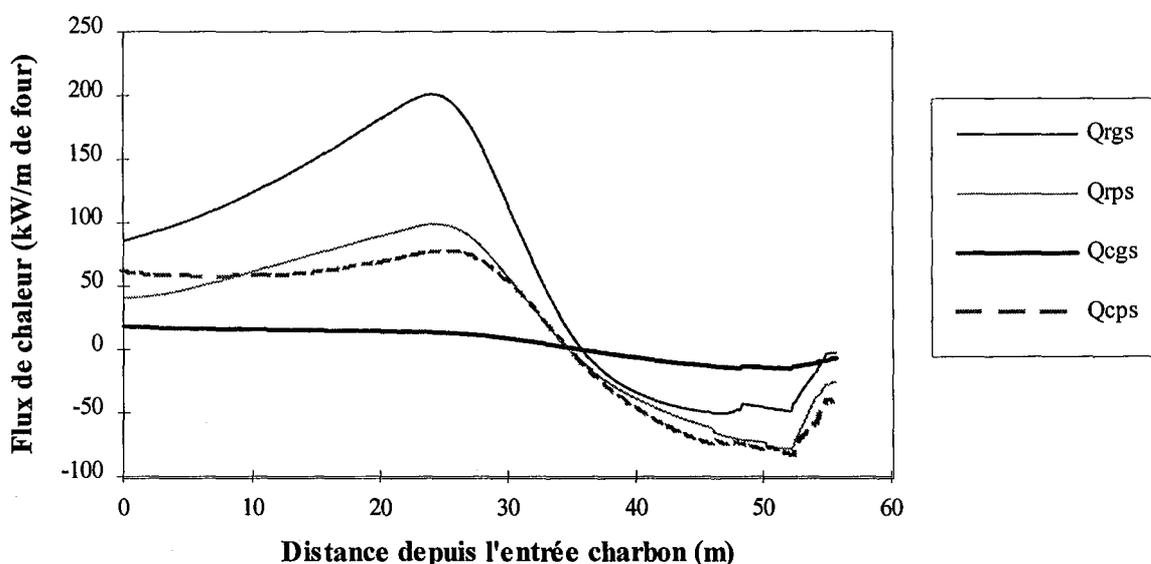


Figure VII.2 : Energie transférée vers le solide le long de l'axe du four
 (Q_{rgs} : rayonnement gaz/solide, Q_{rps} rayonnement paroi/solide,
 Q_{cgs} : convection gaz/solide, Q_{cps} : conduction paroi/solide)

Les figures VII.3 et VII.4 détaillent les termes sources de la charge et du gaz.

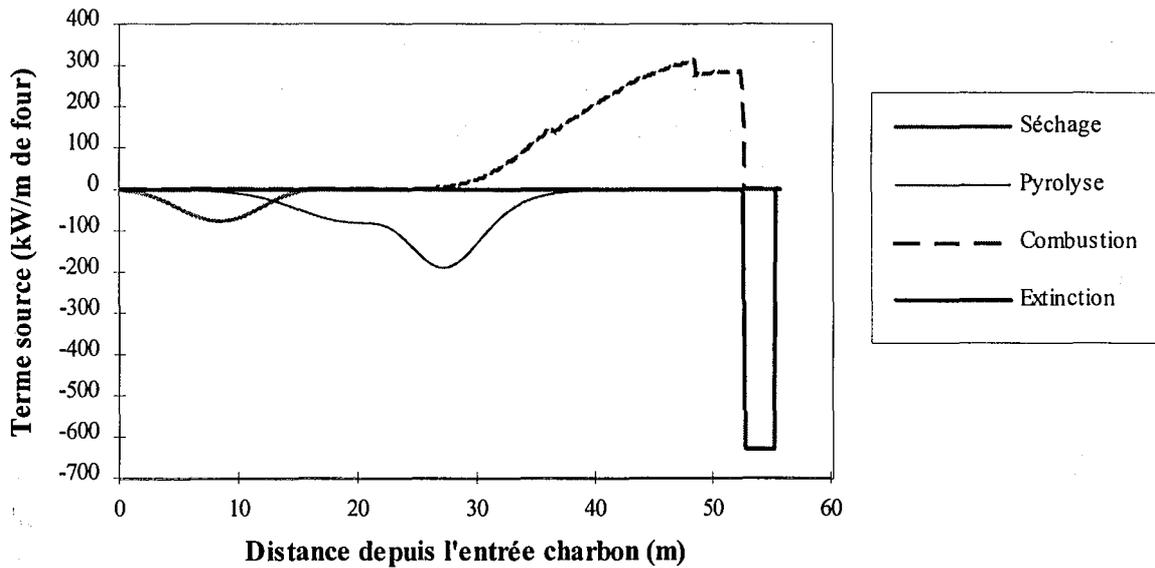


Figure VII.3 : Termes sources dans le solide le long de l'axe du four

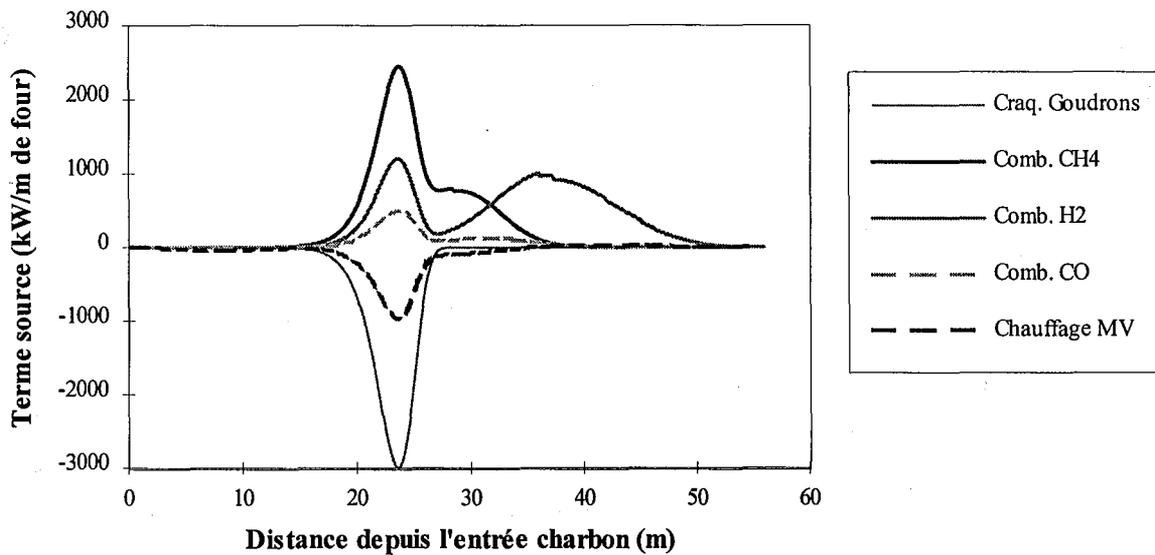


Figure VII.4 : Termes sources dans le gaz le long de l'axe du four

Les fortes puissances mises en jeu dans le gaz entre les abscisses 20 et 27 m se compensent presque parfaitement, l'apport global étant faiblement positif (figure VII.1). Ainsi, la combustion des gaz issus du craquage permet de compenser l'important pic dû au craquage des goudrons. L'apport global des goudrons par combustion/craquage est sans doute réaliste puisque le profil de température du gaz est bien représenté, cependant les valeurs respectives des pics de craquage et de combustion sont plus approximatives. En effet, l'enthalpie de craquage des goudrons a été fixée de façon à ce que le bilan thermique dans le gaz soit

respecté, elle est donc fortement dépendante des hypothèses faites sur le bilan matière du craquage des goudrons qui définissent les quantités formées de CH_4 , H_2 et CO .

Le rôle du dégagement d'hydrogène est bien mis en évidence sur la figure VII.4 puisqu'il constitue la seule source d'énergie dans le gaz au-delà de $x = 35$ m. Cela montre son importance en ce qui concerne l'échauffement de l'air injecté côté coke.

VII.2 Influence des paramètres de contrôle du four

Trois paramètres permettent de contrôler le fonctionnement du four tournant : la vitesse de rotation, le débit d'air et le débit d'eau d'extinction. Ces paramètres sont modifiés par l'opérateur pour corriger les effets dus par exemple à un changement dans la qualité du charbon ou à une variation de son humidité. L'influence de chaque paramètre sur le fonctionnement du four peut être étudiée par une série de simulations, en ne faisant varier que la valeur de la variable concernée. Contrairement aux simulations effectuées pour l'étude de sensibilité du modèle (cf. § VI.3), la valeur de la température du gaz côté charbon n'est pas maintenue constante. Cette valeur est modifiée de façon à obtenir pour chaque simulation une même température de l'air injecté côté coke, chaque résultat représentant ainsi une position de fonctionnement réaliste du four tournant.

Ces simulations constituent en fait une étude de sensibilité du procédé aux paramètres de contrôle, l'évolution des différentes variables du procédé engendrée par une modification de l'un de ces paramètres ne pouvant être étudiée que par un modèle en régime transitoire.

VII.2.1 Vitesse de rotation

Le premier effet d'une modification de la vitesse de rotation du four est de modifier dans les mêmes proportions le débit de solide enfourné. Le tableau VII.2 et les figures VII.5 et VII.6 présentent l'effet d'une variation de 5 % de la vitesse de rotation.

La vitesse de pyrolyse diminue lorsque la vitesse de rotation augmente, le débit de solide à traiter étant plus important. La zone de combustion des matières volatiles se déplace alors vers le côté coke.

L'augmentation de la température maximale du solide pour les vitesses de 0,95 et 1,05 tr/min entraîne une augmentation de la combustion du coke (respectivement + 58 % et + 13 %). Cela montre qu'il existe un optimum de fonctionnement du four tournant en ce qui concerne la combustion du coke.

	Vitesse de rotation (tr/min)		
	0,95	1	1,05
Débit d'air (Nm ³ /s)	9,86	9,86	9,86
Débit d'eau (m ³ /h)	2,5	2,5	2,5
Débit de charbon sec (t/h)	21,3	22,4	23,6
Temps de séjour (min)	114	108	103
Température maximale du solide (°C)	1018	951	1017
Température de sortie du solide (°C)	735	685	759
Température maximale du gaz (°C)	1253	1224	1309
Température de sortie du gaz (°C)	985	890	855
Débit des fumées côté charbon (Nm ³ /s)	14,8	15,0	15,2
PCI des fumées côté charbon (kJ/Nm ³)	1115	1299	1478
Pic de dégagement des goudrons (m)	18,4	23,6	27,8
Pic de dégagement de l'hydrogène (m)	32,8	36,0	36,8
Longueur de la zone de dévolatilisation (m)	26,2	25,6	17,4
Combustion du coke (%/charbon sec)	3,44	2,47	2,78
Taux de dévolatilisation de l'hydrogène	1,0	1,0	1,0
Rendement	61,6	62,5	62,2

Tableau VII.2 : Influence de la vitesse de rotation

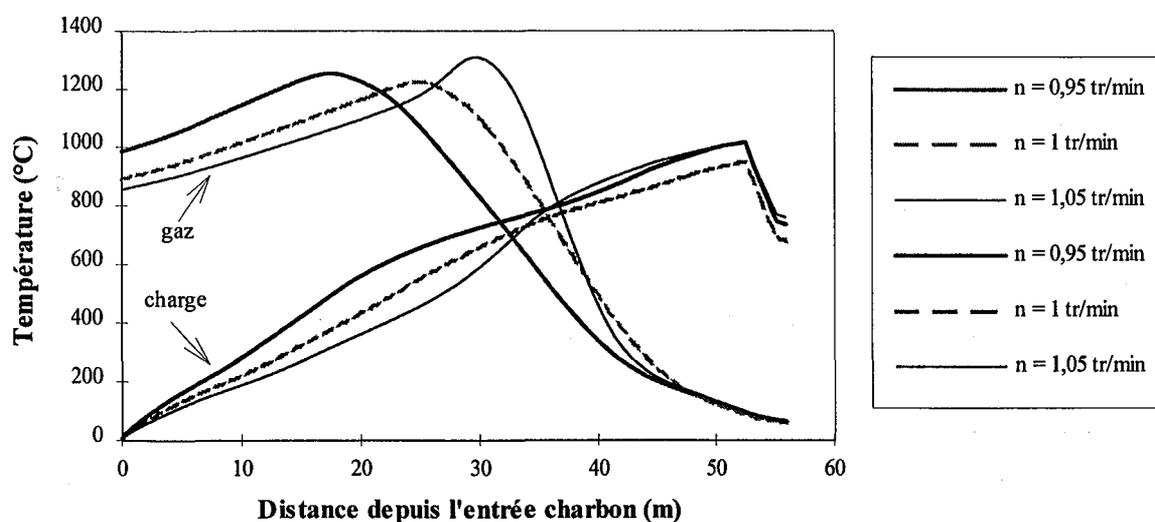


Figure VII.5 : Influence de la vitesse de rotation sur les profils thermiques de la charge et du gaz

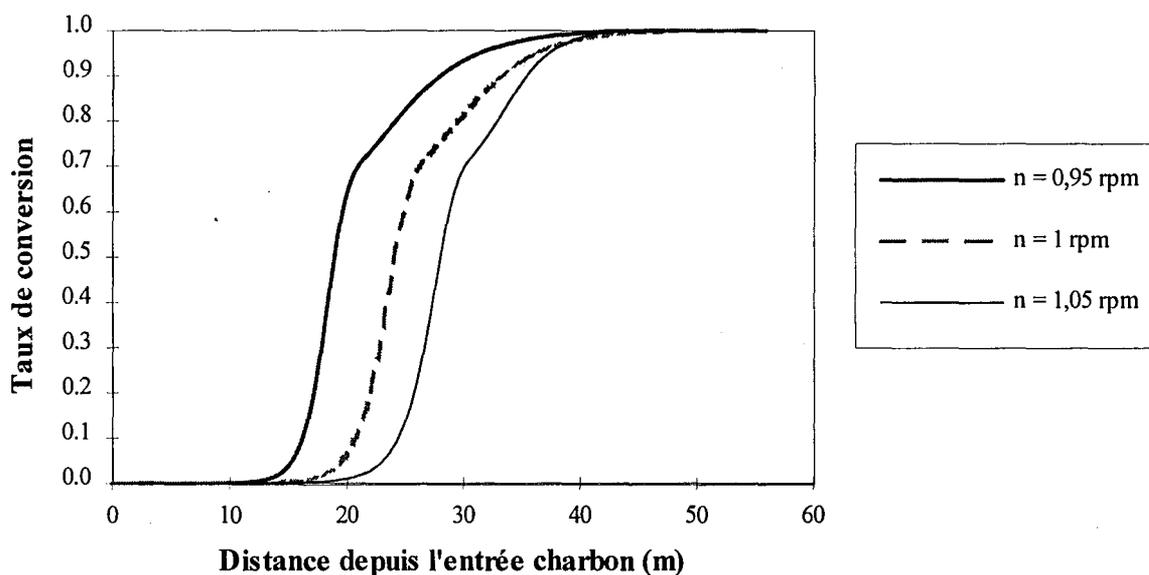


Figure VII.6 : Influence de la vitesse de rotation sur le profil du taux de conversion

Le procédé est très sensible à une modification de la vitesse de rotation du four. Ce paramètre est effectivement utilisé pour déplacer rapidement la zone de combustion des matières volatiles. La vitesse de rotation usuelle est cependant reprise dès que possible pour maintenir le débit de charbon enfourné à un niveau constant.

VII.2.2 Débit d'air

Le débit d'air injecté côté coke influence directement la combustion des matières volatiles en modifiant le taux de combustion des gaz issus du craquage des goudrons ; il a donc un effet important sur la température du gaz et la vitesse de pyrolyse (cf. tableau VII.3 et figures VII.7 et VII.8).

Une augmentation du débit d'air provoque une augmentation de la vitesse de pyrolyse. La température à laquelle débute la combustion du coke étant atteinte plus tôt, celle-ci se produit sur une longueur de four plus importante. Il faut donc utiliser un débit d'air le plus faible possible pour minimiser les pertes par combustion.

La quantité de matières volatiles consommées dans le four augmente avec le débit d'air, ce qui entraîne une diminution du PCI des fumées en sortie de four : la quantité de vapeur produite par la chaudière devrait donc diminuer.

Ces conclusions ne sont valables que dans le domaine de variation du débit d'air qui a été étudié. En effet, les phénomènes tels que l'extinction du four par un apport d'air trop important ne peuvent être étudiés que par un modèle en régime transitoire.

	Débit d'air (Nm ³ /s)		
	9,5	9,86	10,2
Vitesse de rotation (tr/min)	1,0	1,0	1,0
Débit d'eau (m ³ /h)	2,5	2,5	2,5
Débit de charbon sec (t/h)	22,4	22,4	22,4
Temps de séjour (min)	108	108	108
Température maximale du solide (°C)	923	951	998
Température de sortie du solide (°C)	650	685	733
Température maximale du gaz (°C)	1237	1224	1236
Température de sortie du gaz (°C)	825	890	955
Débit des fumées (Nm ³ /s)	15,0	15,0	15,0
PCI des fumées (kJ/Nm ³)	1403	1299	1202
Pic de dégagement des goudrons (m)	28,0	23,6	20,2
Pic de dégagement de l'hydrogène (m)	40,0	36,0	34,6
Longueur de la zone de dévolatilisation (m)	23,6	25,6	25,4
Combustion du coke (%/charbon sec)	2,00	2,47	3,09
Taux de dévolatilisation de l'hydrogène	0,995	1,0	1,0
Rendement	63,0	62,5	61,9

Tableau VII.3 : Influence du débit d'air

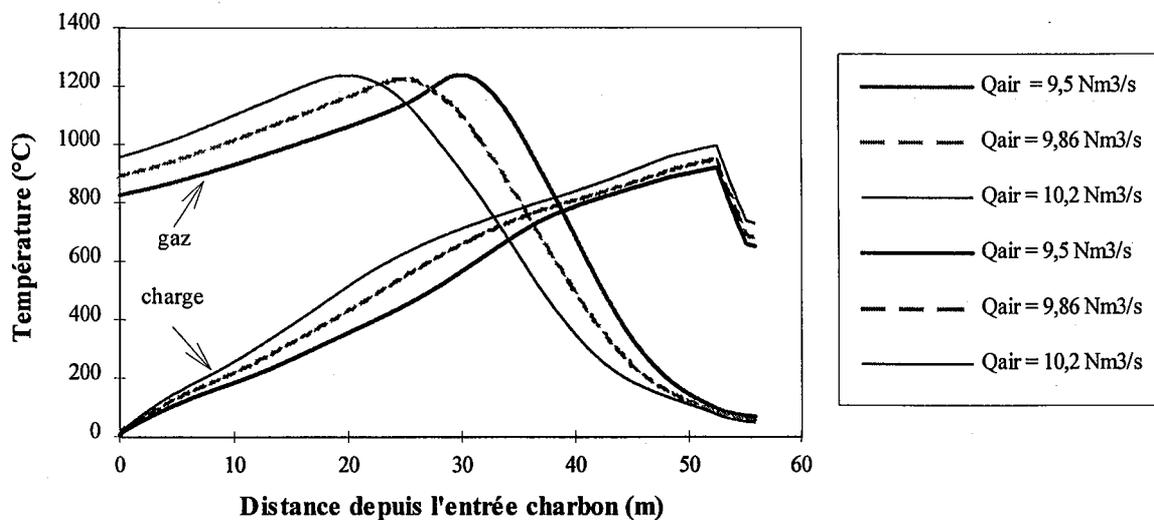


Figure VII.7 : Influence du débit d'air sur les profils thermiques de la charge et du gaz

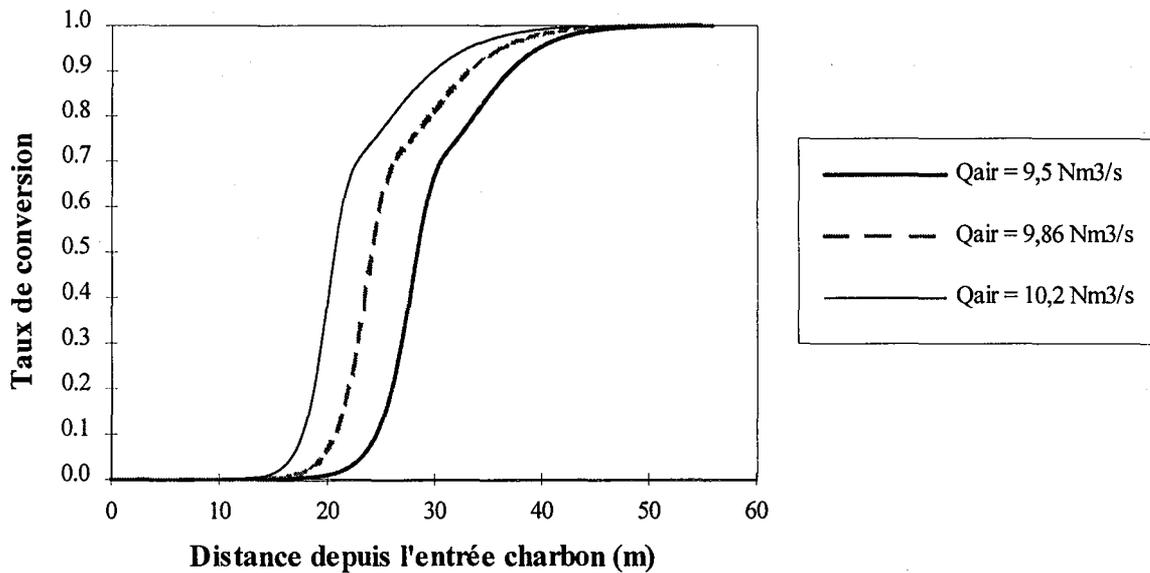


Figure VII.8 : Influence du débit d'air sur le profil du taux de conversion

VII.2.3 Débit d'eau

Une augmentation du débit d'eau d'extinction agit essentiellement sur la température du coke en sortie de four. Mais en raison de l'augmentation de l'émissivité du gaz, les transferts thermiques sont modifiés et la vitesse de pyrolyse s'accroît légèrement (tableau VII.4 et figures VII.9 et VII.10). Cette évolution explique le fait que le débit d'eau ne serve pas seulement à la stabilisation de la température de sortie du coke, mais également à la conduite de la pyrolyse dans le four.

	Débit d'eau (m ³ /h)		
	1,5	2,5	3,5
Vitesse de rotation (tr/min)	1,0	1,0	1,0
Débit d'air (Nm ³ /s)	9,86	9,86	9,86
Débit de charbon sec (t/h)	22,4	22,4	22,4
Temps de séjour (min)	108	108	108
Température maximale du solide (°C)	897	951	994
Température de sortie du solide (°C)	718	685	643
Température maximale du gaz (°C)	1222	1224	1229
Température de sortie du gaz (°C)	878	890	904
Débit des fumées (Nm ³ /s)	14,7	15,0	15,3
PCI des fumées (kJ/Nm ³)	1330	1299	1270
Pic de dégagement des goudrons (m)	24,2	23,6	23,0
Pic de dégagement de l'hydrogène (m)	36,0	36,0	35,8
Longueur de la zone de dévolatilisation (m)	29,2	25,6	22,4
Combustion du coke (%/charbon sec)	1,98	2,47	2,96
Taux de dévolatilisation de l'hydrogène	0,998	1,0	1,0
Rendement	63,0	62,5	62,0

Tableau VII.4 : Influence du débit d'eau

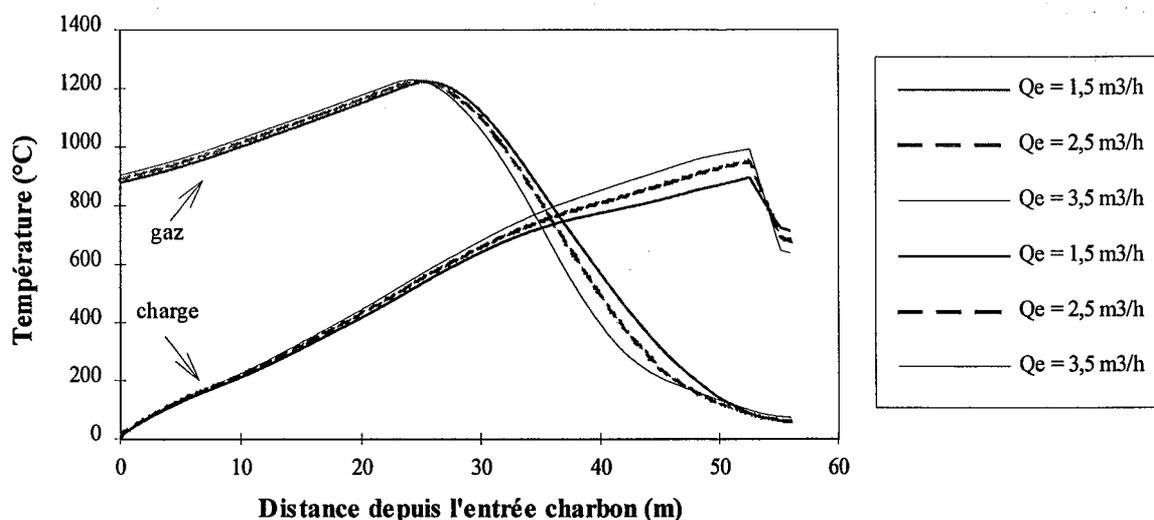


Figure VII.9 : Influence du débit d'eau sur les profils thermiques de la charge et du gaz

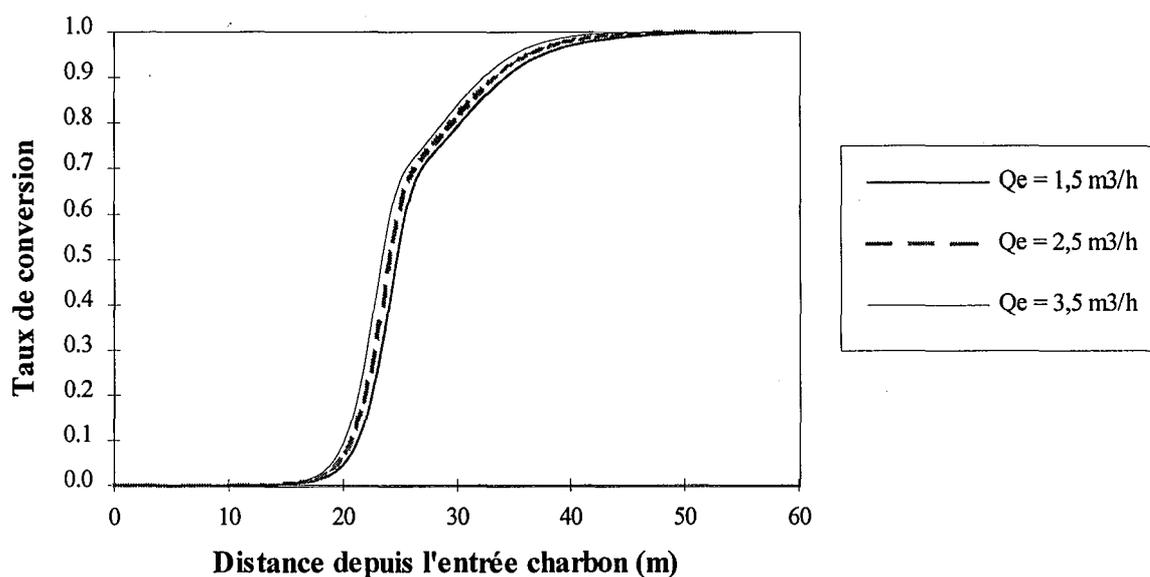


Figure VII.10 : Influence du débit d'eau sur le profil du taux de conversion

VII.3 Déplacement de la zone d'extinction

Afin de diminuer la combustion du coke, un essai a été effectué sur le four tournant de Carling en avançant la zone d'extinction à l'intérieur du four. La nouvelle canne d'arrosage permet également d'étendre l'extinction sur 3,5 m au lieu de 2,5 m. Auparavant située entre les abscisses 52,8 et 55,3 m, la zone d'extinction a ainsi été déplacée entre les abscisses 46,8 et 50,3 m.

VII.3.1 Comparaison avec la situation précédente

Le tableau VII.5 et les figures VII.11 et VII.12 présentent les résultats du modèle pour les deux situations suivantes : l'indice 1 correspond à la situation usuelle (extinction entre 52,8 et 55,3 m, $Q_e = 2,5 \text{ m}^3/\text{h}$) et l'indice 2 à l'essai effectué (extinction entre 46,8 et 50,3 m, $Q_e = 1,5 \text{ m}^3/\text{h}$).

Le calcul indique une nette diminution de la combustion du coke qui passe de 2,47 % du charbon sec à 1,72 %. Cette nouvelle configuration de l'extinction permettrait donc un gain de 0,75 % sur le rendement du procédé. Les profils thermiques de la charge et du gaz sont très peu modifiés en dehors de la zone d'extinction, la conduite de l'installation ne devrait donc pas être perturbée par ce changement.

	Avant (1)	Après (2)
Débit d'eau (m ³ /h)	2,5	1,5
Vitesse de rotation (tr/min)	1,0	1,0
Débit d'air (Nm ³ /s)	9,86	9,86
Débit de charbon sec (t/h)	22,4	22,4
Temps de séjour (min)	108	108
Température maximale du solide (°C)	951	909
Température de sortie du solide (°C)	685	622
Température maximale du gaz (°C)	1224	1237
Température de sortie du gaz (°C)	890	890
Débit des fumées (Nm ³ /s)	15,0	14,7
PCI des fumées (kJ/Nm ³)	1299	1330
Pic de dégagement des goudrons (m)	23,6	23,6
Pic de dégagement de l'hydrogène (m)	36,0	36,0
Longueur de la zone de dévolatilisation (m)	25,6	24,2
Combustion du coke (%/charbon sec)	2,47	1,72
Taux de dévolatilisation de l'hydrogène	1,0	0,989
Rendement	62,5	63,3

Tableau VII.5 : Effets du déplacement de la zone d'extinction

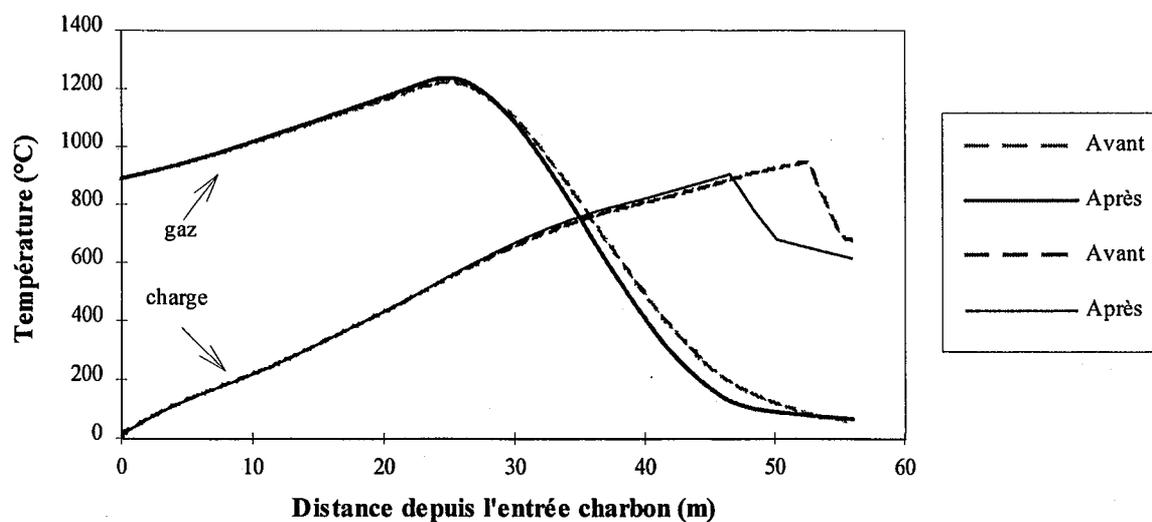


Figure VII.11 : Profils thermiques de la charge et du gaz avant et après déplacement de la zone d'extinction

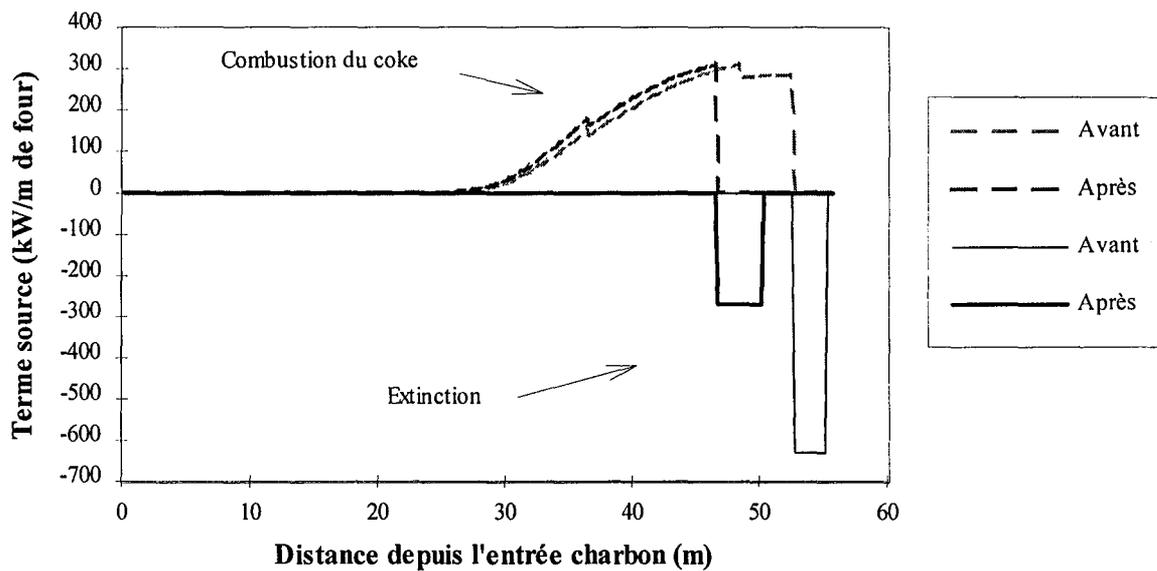


Figure VII.12 : Flux de chaleur correspondant à la combustion du coke et à l'extinction avant et après déplacement de la zone d'extinction

Un effet facilement quantifiable de cette modification sur le four tournant industriel concerne la qualité du coke produit : à la suite du déplacement de la zone d'extinction le taux de matières volatiles a en effet augmenté d'environ 1 %. Cette évolution n'est pas perceptible à travers les résultats de la simulation (le taux de conversion global reste égal à 1), seul le taux de dévolatilisation de l'hydrogène subissant une légère baisse. Au niveau industriel, cette baisse du taux de dévolatilisation du coke entraîne non seulement une augmentation supplémentaire du rendement mais également une diminution du PCI des fumées en sortie de four. La production de vapeur devrait donc diminuer avec cette nouvelle configuration de l'extinction. Les capacités de la chaudière constituant actuellement une limite à l'augmentation de la production, cette modification pourrait ainsi permettre un léger accroissement du débit de charbon.

VII.3.2 Influence du débit d'eau

Le tableau VII.6 et les figures VII.13 et VII.14 permettent d'évaluer l'influence du débit d'eau avec la nouvelle configuration de l'extinction. La sensibilité du procédé à ce paramètre n'est pas modifiée : une diminution du débit d'eau entraîne une légère réduction de la vitesse de pyrolyse et permet de diminuer les pertes par combustion du coke. Il faut donc utiliser le débit d'eau le plus faible possible, permettant de conserver une température acceptable du coke en sortie de four.

	Débit d'eau (m ³ /h)		
	0,5	1,5	2,5
Vitesse de rotation (tr/min)	1,0	1,0	1,0
Débit d'air (Nm ³ /s)	9,86	9,86	9,86
Débit de charbon sec (t/h)	22,4	22,4	22,4
Temps de séjour (min)	108	108	108
Température maximale du solide (°C)	897	909	976
Température de sortie du solide (°C)	677	622	583
Température maximale du gaz (°C)	1238	1237	1248
Température de sortie du gaz (°C)	879	890	910
Débit des fumées (Nm ³ /s)	14,3	14,7	15,0
PCI des fumées (kJ/Nm ³)	1362	1330	1299
Pic de dégagement des goudrons (m)	24,0	23,6	22,4
Pic de dégagement de l'hydrogène (m)	36,0	36,0	34,4
Longueur de la zone de dévolatilisation (m)	27,2	24,2	20,2
Combustion du coke (%/charbon sec)	1,37	1,72	2,33
Taux de dévolatilisation de l'hydrogène	0,968	0,989	1,0
Rendement	63,7	63,3	62,7

Tableau VII.6 : Influence du débit d'eau avec la nouvelle configuration de l'extinction

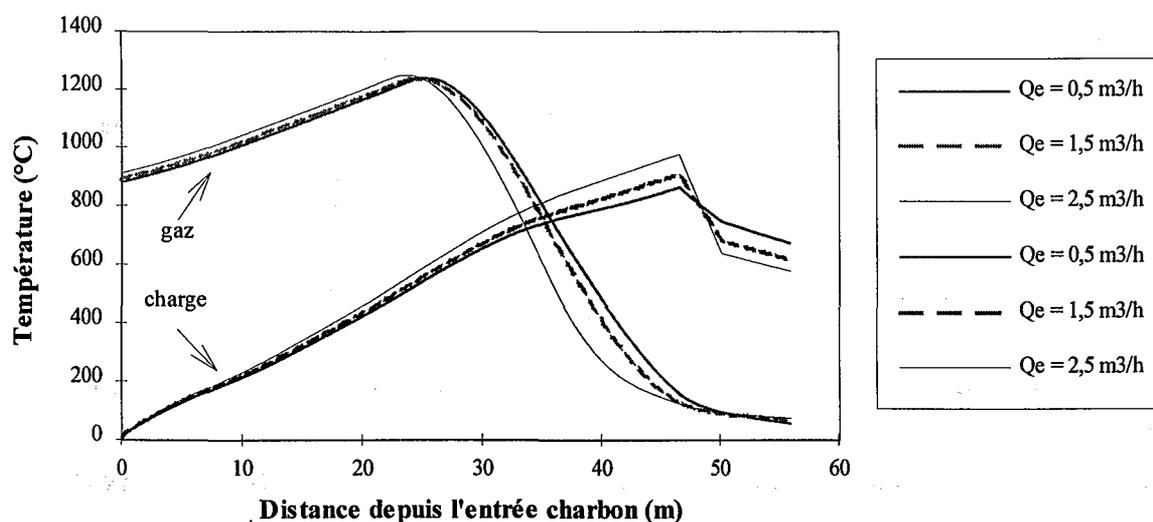


Figure VII.13 : Influence du débit d'eau sur les profils thermiques de la charge et du gaz

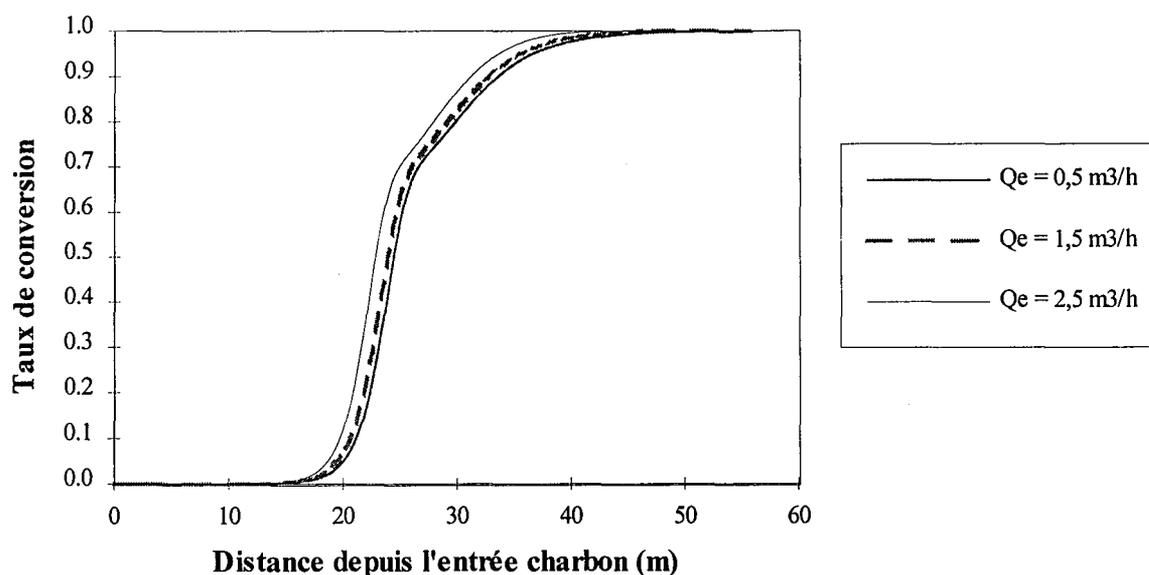


Figure VII.14 : Influence du débit d'eau sur le profil du taux de conversion

VII.4 Conclusion

Le modèle de four tournant de pyrolyse du charbon qui a été développé permet de mieux comprendre le fonctionnement de ce procédé. Le bilan thermique montre que plus du tiers de l'énergie dégagée dans le four sert à chauffer l'air introduit côté coke. Une grande partie de cette énergie (40 %) est fournie par la combustion de l'hydrogène, qui se dégage en fin de pyrolyse.

La combustion du coke en surface du lit représente une perte d'environ 2,5 % sur le rendement du procédé. Cette combustion est nécessaire pour que la pyrolyse soit complète et que la plus grande partie de l'hydrogène se dévolatilise dans le four. Cependant, elle peut être diminuée sans que cela nuise au fonctionnement du procédé. Ainsi, l'avancement de la zone d'extinction à l'intérieur du four, associé à une diminution du débit d'eau, permet d'augmenter le rendement d'environ 0,75 %.

Le modèle a également permis d'évaluer la sensibilité du procédé aux paramètres utilisés pour la conduite de l'installation. La vitesse de rotation et le débit d'air ont une forte influence sur la vitesse de pyrolyse ; ils sont utilisés conjointement pour maintenir le profil de température de la charge constant, quelles que soient les variations de la qualité du charbon. Le débit d'eau d'extinction agit essentiellement sur la température du coke en sortie de four, mais il permet également une certaine régulation de la vitesse de chauffe dans le four.

Chapitre VIII

Conclusions et perspectives

Ce travail, qui porte sur la modélisation de la pyrolyse de grains de charbon en four tournant, a été mené en étroite collaboration avec le Centre de Pyrolyse de Marienau et les Houillères du bassin de Lorraine. Le modèle qui a été développé a nécessité une étude approfondie de différents phénomènes : la pyrolyse du charbon, le mouvement de la charge, les transferts de chaleur en four tournant, la combustion des matières volatiles et la combustion du coke, chacun représentant à lui seul un thème de recherche actuel. La littérature a donc apporté un certain nombre de solutions aux problèmes rencontrés, mais dans certains cas l'expérimentation s'est avérée indispensable.

Le charbon est un produit d'une très grande diversité. Toutes les expériences réalisées pour cette étude ont été effectuées avec du charbon La Houve (cf. annexe VIII), qui est actuellement le principal charbon utilisé dans le four tournant industriel. La cinétique de dévolatilisation de chaque constituant des matières volatiles a pu être mesurée par une technique couplée associant thermogravimétrie et chromatographie en phase gazeuse. La vitesse de chauffe utilisée pour ces expériences, environ 9 K/min, est proche de celle mesurée sur le four tournant de Carling. Cette vitesse est suffisamment lente pour que la diffusion des matières volatiles dans le grain ne constitue pas un phénomène limitant de la pyrolyse. Un modèle de grain (cf. chapitre II) permet de rendre compte des phénomènes observés lors des expériences effectuées en laboratoire. Ce modèle prend en compte les transferts de chaleur vers et dans le grain et les cinétiques de séchage et de dévolatilisation. En fonction des conditions environnantes, une combustion partielle du grain ainsi que l'extinction de la charge ont également été modélisées.

Le mouvement de la charge dans le four tournant a été étudié grâce à des essais en four pilote. Le temps de séjour moyen, la distribution des temps de séjour, le profil de chargement, ainsi que le temps moyen passé par un grain en surface du lit ont été déterminés expérimentalement, dans différentes conditions. Ces expériences ont permis de mettre en évidence que le temps de séjour moyen augmente avec le taux de remplissage du four. Il a également été vérifié que le profil de chargement est indépendant de la vitesse de rotation lorsque le four est alimenté par débordement. D'autre part, dans les conditions de l'étude, le régime d'écoulement est toujours proche de l'écoulement piston. Enfin, des corrélations

adaptées à la modélisation du transport des grains dans le four tournant ont pu être déterminées.

Les phénomènes de transferts de chaleur ont essentiellement fait l'objet d'une étude bibliographique, de nombreux travaux y étant entièrement consacrés. Les expériences sont, de plus, difficiles à réaliser car elles nécessitent un four tournant très bien instrumenté, les mesures de température restant toujours délicates. La simulation des transferts de chaleur tient compte des phénomènes de rayonnement, de convection et de conduction se produisant entre le solide, le gaz et la paroi. Le transfert de chaleur à travers la paroi, à l'origine des pertes thermiques et du phénomène de régénération, a été modélisé de façon détaillée par la méthode des volumes de contrôle. Les principales incertitudes qui demeurent concernent les émissivités de la paroi et du solide (comprises entre 0,8 et 1), ainsi que les valeurs des coefficients de transfert par convection gaz/paroi et gaz/solide. Cependant, ces paramètres n'ont que peu d'influence sur les résultats du modèle de four tournant.

L'étude de la combustion des matières volatiles a été basée sur les analyses des prélèvements de gaz effectués sur le four tournant industriel et sur des simulations réalisées à l'aide du logiciel *Chemkin*. Il résulte de cette étude que les cinétiques de combustion du méthane, de l'hydrogène et du monoxyde de carbone sont très rapides dans les conditions du four tournant, ces réactions pouvant être considérées comme instantanées dans la modélisation du four.

Tous ces résultats ont permis d'améliorer le modèle de four tournant écrit par F. Hanrot [2]. Ce modèle est basé sur un fractionnement du four en portions de faible longueur. Dans chaque "tranche", le modèle de grain permet le calcul de l'évolution de la charge. La composition et la température du gaz sont calculées par un bilan massique et un bilan thermique. Le principal point faible du modèle demeure la prise en compte des phénomènes de craquage et de combustion des goudrons. Le bilan matière du craquage des goudrons (cf. chapitre VI) n'a en effet pas pu être vérifié expérimentalement.

La validation du modèle est une étape décisive qui a pu être franchie grâce à deux campagnes de mesures sur le four tournant de Carling. Un ensemble de données cohérentes sur le fonctionnement du four a pu être obtenu et a permis de juger du bon accord des résultats de la simulation avec les mesures effectuées.

L'utilisation de ce modèle a permis d'effectuer un certain nombre de simulation montrant son utilité pour la compréhension du procédé et son amélioration. Le bilan thermique effectué à partir de la simulation du four en marche normale montre que plus du

tiers de l'énergie dégagée dans le four sert à chauffer l'air introduit côté coke, environ la moitié de cette énergie servant à la pyrolyse du charbon. Une grande partie de l'énergie dégagée (40 %) est fournie par la combustion de l'hydrogène, qui se dégage en fin de pyrolyse. La combustion du coke en surface du lit représente une perte d'environ 2,5 % sur le rendement du procédé et fournit 14 % de l'apport énergétique. Cette combustion est nécessaire pour achever la pyrolyse du charbon et permettre en particulier la dévolatilisation complète de l'hydrogène. Cependant, elle peut être diminuée, afin d'augmenter le rendement du procédé, en déplaçant la zone d'extinction vers l'intérieur du four. Le modèle a également permis d'évaluer la sensibilité du procédé aux paramètres utilisés pour la conduite de l'installation : la vitesse de rotation et le débit d'air ont une forte influence sur la vitesse de pyrolyse alors que le débit d'eau d'extinction agit essentiellement sur la température du coke en sortie de four.

L'exploitation future de ce modèle, au Centre de pyrolyse de Marienau et sur site industriel, permettra d'étudier l'influence de divers paramètres sur le fonctionnement du procédé. Les conditions climatiques, l'humidité de la charge ou encore la taille moyenne des grains sont des paramètres dont l'évolution peut avoir des conséquences sur les conditions de marche du four. Il pourra également être envisagé d'utiliser ce modèle pour une aide à la conduite du four ainsi que pour l'optimisation du procédé dans différentes conditions de fonctionnement.

Références bibliographiques

Chapitre I : Introduction

1. Boillat, G., "Procédé de fabrication en four tournant de coke granulé pour l'électroméallurgie", Rev. Gén. Therm. Fr. **226**, 777-784 (1980).
2. Hanrot, F., "Analyse physico-chimique et modélisation de la pyrolyse de grains de charbon en four tournant", Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, (1992).
3. Hanrot, F., D. Ablitzer, J-L Houzelot and M. Dirand, "Experimental Measurement of the True Specific Heat Capacity of Coal and Semicoke During Carbonization", Fuel **73** (2), 305-309 (1994).

Chapitre II : Pyrolyse du charbon

4. Solomon, P. R., M. A. Serio and E. M. Suuberg, "Coal Pyrolysis : Experiments, Kinetics Rates and Mechanisms", Prog. Energy Combust. Sci. **18**, 133-220 (1992).
5. Solomon, P. R., D. G. Hamblen, R. M. Carangelo, M. A. Serio and G. V. Deshpande, "General Model of Coal Devolatilization", Energy Fuels **2**, 405-422 (1988).
6. Gavalas, G. R. and K. A. Wilks, "Intraparticule Mass Transfer in Coal Pyrolysis", AIChE J. **26**, 201-212 (1980).
7. Arendt, P. and K. H. van Heek, "Comparatives Investigations of Coal Pyrolysis under Inert Gas and H₂ at Low and High Heating Rates and Pressure up to 10 MPa", Fuel **60**, 779-787 (1981).
8. Chirone, R. and L. Massimilla, "Primary Fragmentation of a Coal in Fluidized Bed Combustion", 22nd Symposium (Int.) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburgh, 267-277 (1988).
9. Howard, J. B. and R. H. Essenhigh, "Pyrolysis of Coal Particles in Pulverized Fuel Flames", Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev. **6**, 74-84 (1967).

10. Hilaire P., "Etude cinétique de la décomposition thermique de particules de charbon", Diplôme CNAM, Nancy (1990).
11. Merrick, D., "Mathematical Models of the Thermal Decomposition of Coal. 2. Specific Heats and Heats of Reaction", *Fuel* **62**, 540-553 (1983).
12. Merrick, D., "The Thermal Decomposition of Coal : Mathematical Models of the Chemical and Physical Changes", *Coal Science and Chemistry*, Ed. A. Volborth, 307-342 (1987).
13. Badzioch, S., D.R. Gregory, M.A. Field, "Investigation of the Temperature Variation of the Thermal Conductivity and Thermal Diffusivity of Coal", *Fuel* **43**, 267 (1964).
14. Anthony, D.B., J. B. Howard, "Coal Devolatilisation and Hydrogasification", *AIChE J.* **22** (4), 625 (1976).
15. Suuberg, E. M., W. A. Peters, J. B. Howard, 17th Symposium (Int.) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburg, 117 (1979).
16. Merrick D., "Mathematical Models of the Thermal Decomposition of Coal. 1. The Evolution of Volatile Matter", *Fuel* **62**, 534 (1983).
17. Loison, R., P. Foch, A. Boyer, "Le coke, qualité et production", Ed. CERCHAR (1990).
18. James, R. K., A. F. Mills, "Analysis of Coal Particle Pyrolysis", *Letters in Heat and Mass Transfer* **3** (1), 1 (1976).
19. Hefta, R. S., H. H. Schobert, W. R. Kube, "Calorimetric Pyrolysis of a North Dakota Lignite", *Fuel* **65**, 1196 (1986).
20. Tromp, P.J.J., Kapteijn F., Moulijn J. A., "Characterisation of coal pyrolysis by means of differential scanning calorimetry. 1. Quantitative heat effect in an inert atmosphere", *Fuel Processing Technology* **15**, 45-57 (1987).
21. Hertzberg, M., I. A. Zlochower, "Devolatilization Wave Structures and Temperatures for the Pyrolysis of Polymethylmethacrylate, Ammonium Perchlorate, and Coal at Combustion Level Heat Fluxes", *Combust. Flame* **84**, 15-37 (1991).

Chapitre III : Mouvement de la charge

22. Henein, H., J. K. Brimacombe and A. P. Watkinson, "The Modeling of Transverse Solid Motion in Rotary Kilns", *Met. Trans.* **14B**, 207-220 (1983).
23. Sullivan, J. D., C. G. Maier and O. C. Ralston, "Passage of Solid Particles Through Rotary Cylindrical Kilns", U.S. Bureau of Mines, Technical Papers **384**, 1-42 (1927).
24. Bayard, R. A., "New Formula Developed for Kiln Time", *Chem. Met. Eng.* **52**, 100-102 (1945).
25. Saeman, W.C., "Passage of Solids Through Rotary Kilns", *Chem. Eng. Prog.* **47**, 508-514 (1951).
26. Kramers, H. and P. Croockewit, "The Passage of Granular Solids Through Inclined Rotary Kilns", *Chem. Eng. Sci.* **1**, 259-265 (1952).
27. Vahl, L. and W. G. Kingma, "Transport of Solids Through Horizontal Rotary Cylinders", *Chem. Eng. Sci.* **1**, 253-258 (1952).
28. Ronco, J.J., "Tecnologia de las operaciones y los procesos de la industria quimica", *Industria y Quimica* **20**, 605-614 (1965).
29. Perron, J. and R.T. Bui, "Rotary Cylinders: Solid Transport Prediction by Dimensional and Rheological Analysis", *Can. J. Chem. Eng.* **68**, 61-68 (1990).
30. Henein, H., "Bed Behaviour in Rotary Cylinders with Applications to Rotary Kilns", Ph. D. Thesis, University of British Columbia, Vancouver, BC (1980).
31. Chatterjee, A., A. V. Sathe, M. P. Srivastava and P. K. Mukhopadhyay, "Flow of Materials in Rotary Kilns Used for Sponge Iron Manufacture : Part 1. Effect of Some Operational Variables", *Met. Trans.* **14B**, 375-381 (1983).
32. Sai, P. S. T., G. D. Surender, A. D. Damodaran, V. Suresh, Z. G. Philip and K. Sankaran, "Residence Time Distribution and Material Flow Studies in a Rotary Kiln", *Met. Trans.* **21B**, 1005-1011 (1990).

33. Villermaux, J., "Génie de la réaction chimique. Conception et fonctionnement des réacteurs", Lavoisier, Paris (1985).

Chapitre IV : Transferts de chaleur

34. Hottel H.C., A.F. Sarofim, "Radiative transfer", New-York, Mac Graw-Hill (1967).

35. Gorog J.P., T.N. Adams, J.K. Brimacombe, "Heat transfer from flames in a rotary kiln", Met. Trans. **14B**, 411-424 (1983).

36. Gorog J.P., T.N. Adams, J.K. Brimacombe, "Radiative Heat transfer in Rotary Kilns", Met. Trans. **12B**, 55-69 (1981).

37. Solomon, P.R., R.M. Carangelo, P.E. Best, J.R. Markham, D.G. Hamblen, "Analysis of Particle Emittance, Composition, Size and Temperature by FT-IR Emission/Transmission Spectroscopy", Fuel **66**, 897-908 (1987).

38. Barr, P.V., "Heat Transfer Processes in Rotary Kilns", Ph. D. Thesis, University of British Columbia, Vancouver, BC (1986).

39. Barr, P.V., J.K. Brimacombe, A.P. Watkinson, "A Heat Transfer Model for the Rotary Kiln : Part II. Development of the Cross-Section Model", Met. Trans. **20B**, 403-419 (1989).

40. Perron, J., "Modélisation mathématique d'un four de calcination du coke de pétrole", Ph. D. Thesis, Université de Montréal, (1990).

41. Sass, A., "Simulation of the Heat Transfer Phenomena in a Rotary Kiln", I&EC Proc. Des. Dev. **6**, 532-535 (1967).

42. Manitus, A., E. Kurcysz, W. Kawecki, "Mathematical Model of the Aluminium Oxide Rotary Kiln", I&EC Proc. Des. Dev. **13**, 132-142 (1974).

43. Brimacombe, J.K., A.P. Watkinson, "Heat Transfer in a Direct Fired Rotary Kiln : 1, Pilot Plant and Experimentation", Met. Trans. **9B**, 201-219 (1978).

44. Ketslakh, G.A., I.P. Tsibin, "Heat transfer by radiation in rotary kiln", Ogneupory **1**, 17-19 (1978).

45. Kreith, F., W.Z. Black, "Basic Heat Transfer", Harper and Row, New York (1980).
46. Tsheng, S.H., "Convective Heat Transfer in a Rotary Kiln", Ph. D. Thesis, University of British Columbia, Vancouver, BC (1978).
47. Tsheng, S.H., A.P. Watkinson, "Convective Heat Transfer in a Rotary Kiln", Can. J. Chem. Eng. **57**, 433-442 (1979).
48. Zehner, P., E.U. Schlünder, "Effective Thermal Conductivity of Spherical Packings Perfused at Moderate and High Temperatures", Chem. Eng. Tech. **44**, 1303 (1972).
49. Ozisik, M.N., "Heat Transfer", McGraw-Hill, Montréal (1985).
50. Eucken, A., "Allgemeine Gesetzmässigkeiten für das Wärmeleitvermögen", Forschung 11. Bd., Heft 1 (1940). Référence tirée de : Missenard, A., "Conductivité thermique des solides, liquides, gaz et de leurs mélanges", Ed. Eyrolles, Paris (1965).

Chapitre V : Phénomènes de combustion

51. Essenhigh, R.H., "Chemistry of Coal Utilization", M.A. Elliot Ed., Ch. 19, John Wiley & Sons (1981).
52. Field, M.A., D.W. Gill, B.B. Morgan, P.G.W. Hawskley, "Combustion of Pulverised Coal", Brit. Coal Util. Research Assoc., Leatherhead (1967).
53. Smoot, L.D., M.D. Horton, G.A. Williams, "Propagation of Laminar Pulverized Coal-Air Flames", 16th Symposium (Int.) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburg, 375-387 (1977).
54. Shaw, D.W., X. Zhu, M.K. Misra, R.H. Essenhigh, "Determination of Global Kinetics of Coal Volatiles Combustion", 23rd Symposium (Int.) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburg, 155-1162 (1990).
55. Dervede E., A. Charette, T. Bourgeois, L. Castonguay, "Kinetic Phenomena of the Volatiles in Ring Furnace", Light Met., Proc. Tech. Sess., AIME 105th annual meeting, 589-592 (1986).

56. Howard, J.B., G.C. Williams, D.H. Fine, 14th Symposium (Int.) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburg, 975 (1973).
57. Lahouste, J., P. Payen, "Etude du craquage thermique de goudron primaire", 6th Int. Conf. on Coal Science, Munster (1965).
58. Hesp, W.R., P.L. Waters, "Thermal Cracking of Tars and Volatile Matter from Coal Carbonization", Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Develop. **9** (2), 194-202 (1970).
59. Wen, W-Y, E. Cain, "Catalytic Pyrolysis of a Coal Tar in a Fixed-Bed Reactor", Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev. **23**, 627-637 (1984).
60. Serio, M.A., "Secondary Reactions of Tars in Coal Pyrolysis", Ph.D. Thesis, Massachusetts Institute of Technology (1984).
61. Serio, M.A., A.P. Peters, J.B. Howard, "Kinetics of Vapor-Phase Secondary Reactions of Prompt Coal Pyrolysis Tars", Ind. Eng. Chem. Res. **26**, 1831-1838 (1987).
62. Doolan, K.R., J.C. Mackie, R.J. Tyler, "Coal Flash Pyrolysis : Secondary Cracking of Tar Vapours in the Range 870-2000 K", Fuel **66**, 572-578 (1987).
63. Barbé, P., F. Battin-Leclerc, G.M. Côme, "Experimental and Modelling Study of Methane and Ethane Oxidation between 773 and 1573 K", Journal de Chimie Physique, à paraître (1995).
64. Dutta, S., B.R. Christian, M.F. Raterman, The 6th Int. Conf. on Fluidization, Banff, Alberta, Canada, 7-12 Mai 1989.
65. Laidler, K.J., "Chemical kinetics", 2nd edition, McGraw-Hill, New-York (1985).
66. Bradley, D., S.B. Chin, M.S. Draper, "Aerodynamic and Flame Structure within a Jet-stirred Reactor", 16th Symposium (Int.) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburg, 1571-1581 (1977).
67. Dryer, F.L., I. Glassman, 14th Symposium (Int.) on Combustion, The Combustion Institute, Pittsburg, 987-994 (1973).
68. Van Tigellen, P., "Oxydations et Combustions", Technip, Paris (1968).

69. Kee, R.J., F.M. Rupley, I.A. Miller, "Chemkin II. A Fortran Chemical kinetics package for the Analysis of Gas Phase Chemical Kinetics", Sandia Laboratories Report, SAND 89-8009B (1993).
70. Tsuji, H., K. Matsui, "An Aerothermochemical Analysis of Combustion of Carbon in the Stagnation Flow", *Combust. Flame* **26**, 283-297 (1976).
71. Tu, C.M., H. Davis, H.C. Hottel, "Combustion rate of C", *Ind. Eng. Chem.* **26**, 749 (1934).
72. Essenhigh, R.H., "Combustion Behaviour of Small Particules", *Industrial and Engineering Chemistry* **57** (9), 32-43 (1965).
73. Tackie, E.N., A.P. Watkinson, J.K. Brimacombe, "Experimental Study of the Elutriation of Fine Materials from Rotary Kilns", *Can. J. Chem. Eng.* **67**, 806-817 (1989).
74. Li, K.W., "Application of Khodorov's and Li's Entrainment Equation to Rotary Coke Calciners", *AIChE J.* **20** (5), 1017-1020 (1974).

Chapitre VI : Modèle de four tournant

75. Patankar, S.V., "Numerical Heat Transfer and Fluid Flow", Hemisphere Publishing Corp., London, 1989.

Annexe I

Mesure de la cinétique de dévolatilisation du charbon

AI.1 Dispositif expérimental et principe de la mesure

Ces expériences ont été réalisées au Laboratoire de Science et Génie des Matériaux Métalliques (LSG2M). L'installation comprend une thermobalance Setaram couplée à un chromatographe Carlo Erba. Deux types de chromatographe ont été utilisés : l'un fonctionnait en catharomètre, l'autre était muni d'un détecteur à ionisation de flamme (FID). Le schéma du dispositif est présenté figure AI.1.

Un grain d'environ 10 mm de diamètre de charbon La Houve est placé dans une nacelle en fil de platine au milieu du four. Afin d'éviter la combustion des matières volatiles ou du coke au cours de l'expérience, il faut éliminer toute trace d'oxygène dans l'installation. Il a été vérifié qu'un balayage prolongé de la thermobalance avec un gaz inerte ne suffisait pas à éliminer totalement le risque de combustion. Le vide est donc fait dans l'installation, qui est ensuite ramenée à la pression atmosphérique par le balayage du gaz vecteur (N_2 ou He suivant les cas). Le débit de gaz vecteur utilisé était de 50 cc/min pour toutes les expériences.

La loi de chauffe utilisée est issue de mesures du profil thermique de la charge dans le four tournant de Carling. Il s'agit d'une montée en température de 20°C à 850°C en 95 minutes, suivie d'un palier à 850°C. La température du four est maintenue jusqu'à ce que le dégagement du gaz analysé cesse. En pratique, seul le dégagement de l'hydrogène se poursuit lorsque le palier à 850°C est atteint.

La sortie des gaz est dirigée vers le catharomètre pour l'analyse de H_2 , CO, CO_2 , N_2 et He ou vers le FID pour l'analyse des hydrocarbures. L'ordinateur, grâce à une acquisition de données, enregistre la température, la masse de l'échantillon et le débit de gaz entrant en fonction du temps. L'analyse du gaz en sortie est effectuée à intervalles réguliers en fonction du temps de rétention dans la colonne. Les matières volatiles condensables à température ambiante (goudrons et benzols) se retrouvent principalement à la base du thermocouple, endroit le plus froid de la thermobalance.

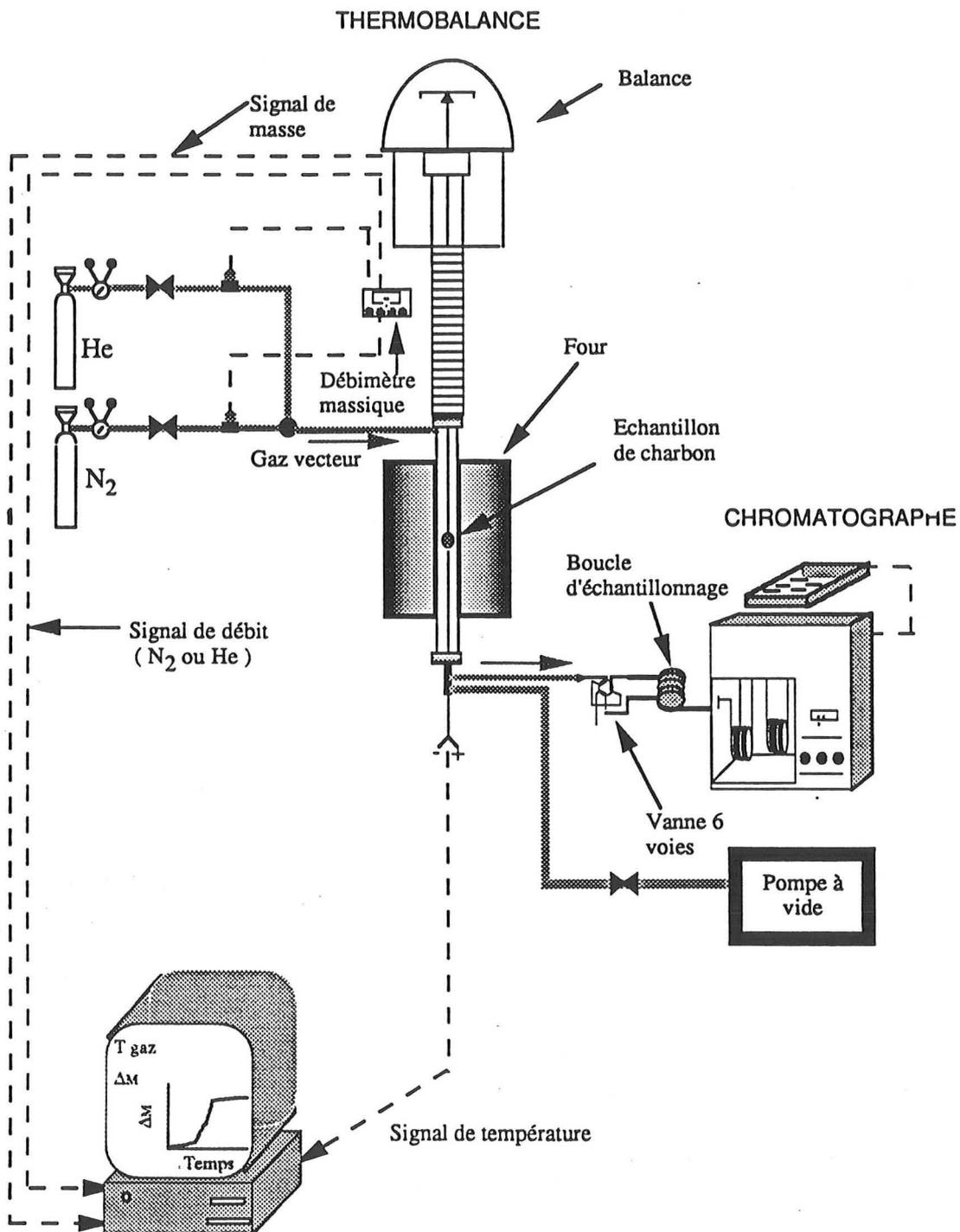


Figure A1.1 : Dispositif expérimental de mesure de la cinétique de dévolatilisation du charbon

Les conditions opératoires (gaz vecteur dans la thermobalance, nature de la colonne de séparation et gaz vecteur dans le chromatographe) varient dans chaque cas en fonction du gaz à analyser. Pour analyser l'hydrogène en sortie, par exemple, il faut utiliser une colonne au charbon actif balayée par de l'azote. Le pic de l'hélium étant proche de celui de l'hydrogène, il faut également un balayage d'azote dans la thermobalance. Les conditions opératoires pour l'analyse de chaque gaz sont regroupées dans le tableau AI.1.

Une analyse en sortie du gaz vecteur dans la thermobalance, dont le débit est fixé par un débitmètre massique, a été effectuée. Ainsi, à partir des concentrations molaires données par le chromatographe il est possible d'en déduire les débits molaires.

Gaz analysé	Gaz thermobalance	Chromatographe	Gaz chromatographe	Colonne
He	He	Catharomètre	N ₂	Charbon actif
H ₂	N ₂	Catharomètre	N ₂	Charbon actif
N ₂ , CO	N ₂	Catharomètre	He	Tamis moléculaire
CO ₂	He ou N ₂	Catharomètre	He	Carbosieve
Hydrocarbures	He ou N ₂	FID	N ₂	Porapak-N

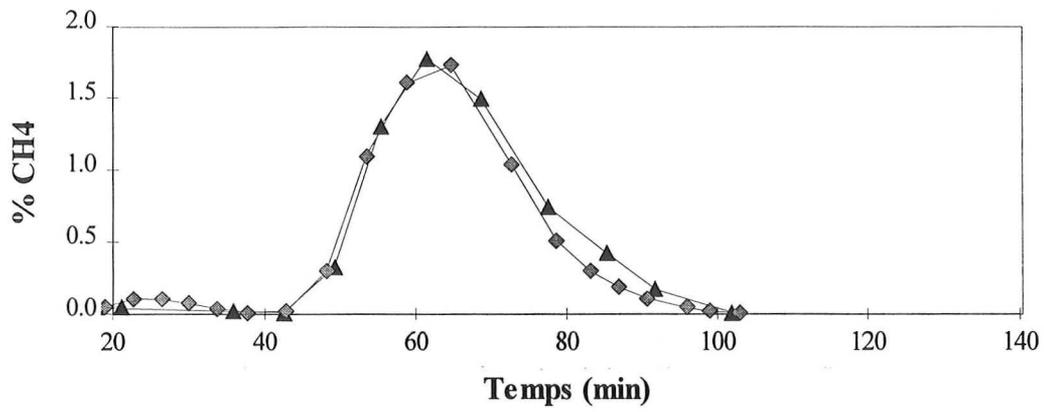
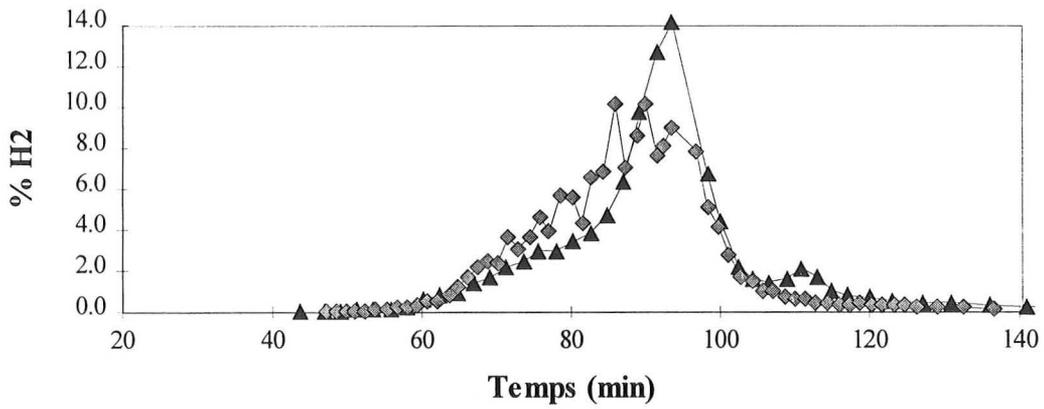
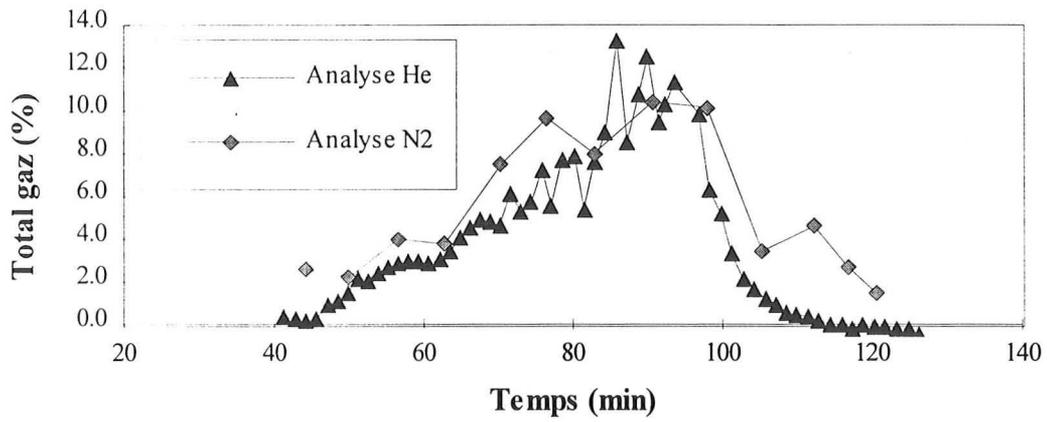
Tableau AI.1 : Conditions opératoires en fonction du gaz analysé

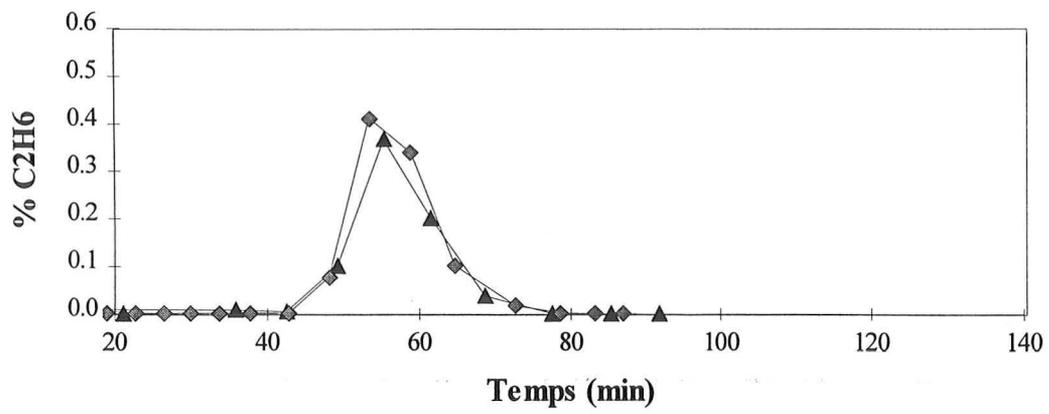
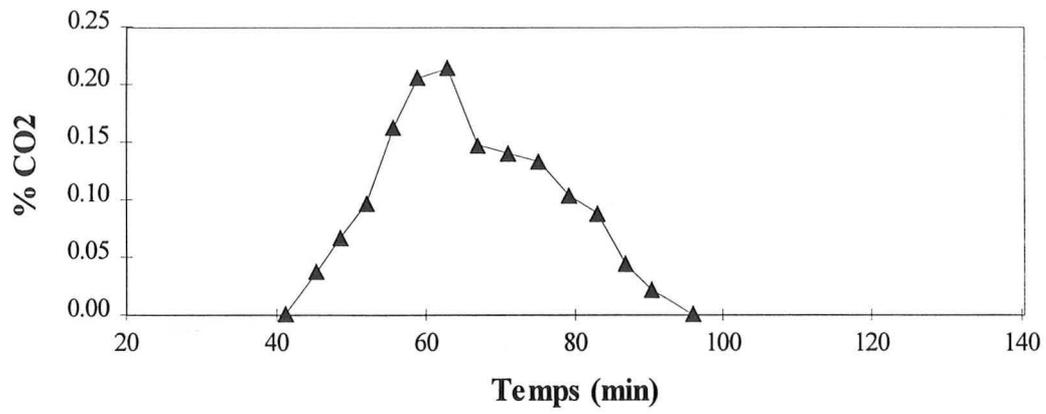
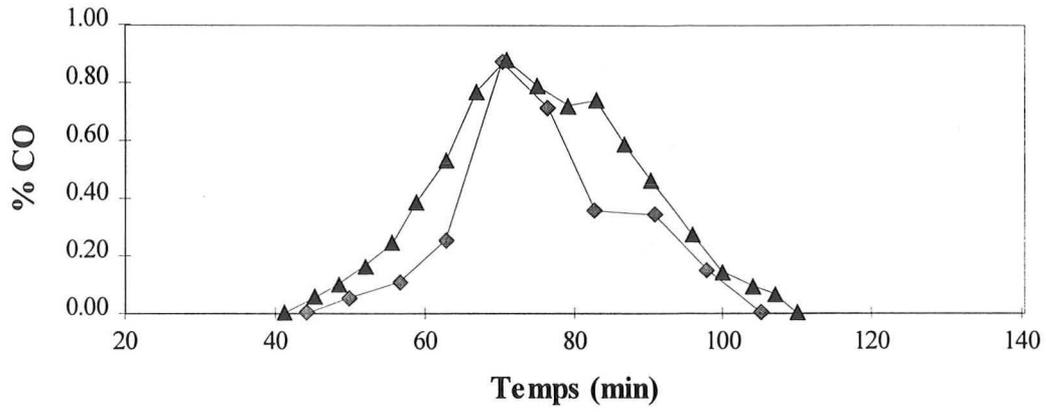
AI.2 Résultats

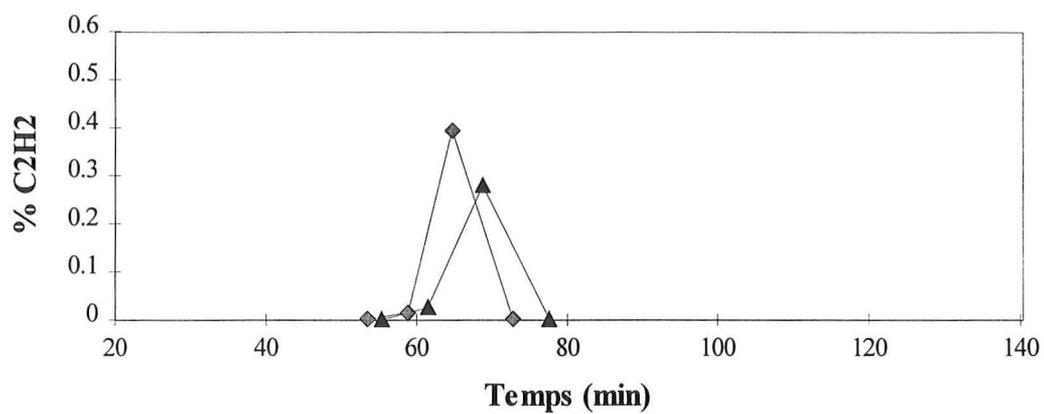
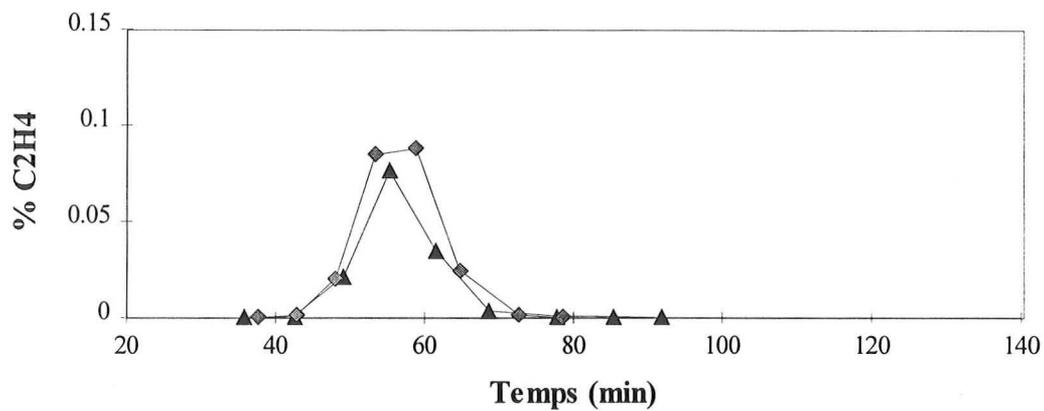
Les courbes AI.2 à AI.9 donnent l'ensemble des résultats obtenus avec une montée en température de 20°C à 850°C en 95 minutes. Les débits massiques calculés à partir de ces courbes sont donnés dans le paragraphe II.4.1. D'autres expériences ont été effectuées avec une montée en température plus rapide (en 60 minutes et en 30 minutes). Les résultats correspondants sont présentés dans le paragraphe II.4.3.

Chaque expérience a été effectuée deux fois, ce qui permet de se rendre compte de la reproductibilité des mesures. Les analyses effectuées avec le FID sont nettement plus précises, la reproductibilité de ces analyses est donc également meilleure.

La courbe "Total gaz" ci-dessous correspond à l'analyse du gaz vecteur dans la thermobalance. Elle représente la somme des concentrations des espèces autres que l'azote ou l'hélium.







Figures AI.2 à AI.9 : Concentration de l'espèce analysée dans le gaz de sortie de la thermobalance (% molaire) - 2 essais par gaz analysé

Annexe II

Mesure de l'enthalpie de réaction de la pyrolyse du charbon

AII.1 Principe de la mesure

Il n'est pas possible de procéder à une mesure directe de l'enthalpie de réaction de la pyrolyse du charbon. En effet, les effets thermiques dus à la pyrolyse s'accompagnent d'une perte de masse et d'une variation de la chaleur spécifique du semi-coke.

La première étape consiste donc à mesurer la chaleur spécifique vraie du semi-coke en cours de réaction, ce qui a été fait avec du charbon La Houve par F.Hanrot [3]. Le résultat de ces mesures est présenté dans le chapitre II.2.1. Il faut ensuite pouvoir disposer de la mesure simultanée de la quantité de chaleur absorbée par le semi-coke en cours de pyrolyse et de la perte de masse. L'enthalpie de réaction pourra ainsi être calculée à partir de la quantité de chaleur absorbée à laquelle il faut soustraire l'effet thermique du C_p .

AII.2 Dispositif expérimental

L'installation utilisée est celle du Laboratoire de Thermodynamique Chimique et Appliquée (LTCA) à Nancy. Il s'agit d'un calorimètre à flux différentiel (DSC 111 de Setaram) équipé d'une microbalance (figure AII.1).

Cet appareil mesure la différence de puissance absorbée entre la cellule de référence et la cellule de mesure, ainsi que la différence de masse entre les deux creusets. La température du calorimètre peut être programmée pour effectuer une montée par paliers successifs, le retour à la ligne de base du signal calorimétrique devant être atteint entre chaque saut de température (mode discontinu). Le calorimètre peut également fonctionner en mode continu, la température augmentant linéairement pendant toute la durée de l'analyse. La précision obtenue dépend alors beaucoup de la vitesse de chauffe, une vitesse lente permettant d'obtenir une meilleure précision sur la puissance absorbée.

Le mode continu a été utilisé pour toutes les expériences avec une vitesse de chauffe de 1 K/min de 20°C à 850°C suivi d'un palier de 10 minutes à 850°C (soit une durée de 14 heures par expérience). Avant chaque mesure il est nécessaire d'effectuer un blanc, c'est-à-dire une expérience dans des conditions identiques à la mesure mais avec un creuset de mesure vide. Le signal du calorimètre correspondant au blanc est stocké en mémoire et il est retranché du signal

obtenu lors de la mesure. Afin d'éviter la combustion du charbon, le vide est fait avant chaque expérience qui s'effectue sous atmosphère d'argon.

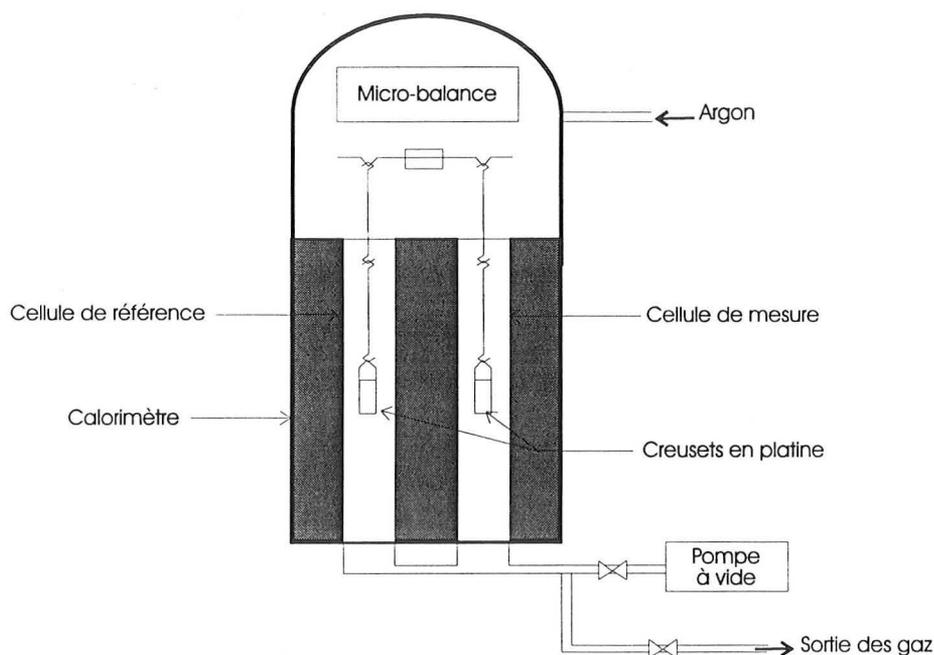


Figure AII.1 : Schéma du dispositif expérimental

Toutes les mesures ont été effectuées à l'aide de creusets en platine. Une masse d'environ 40 mg de charbon finement broyé (inférieur à 0,2 mm) a été utilisée à chaque essai.

AII.3 Résultats

Les figures AII.2 et AII.3 présentent les courbes de résultats obtenues à la suite d'une expérience. La courbe "mesure corrigée" correspond au signal calorimétrique obtenu avec l'échantillon de charbon (courbe "mesure") duquel est déduit le signal "blanc".

La puissance absorbée par l'échantillon est calculée à partir d'un polynôme d'étalonnage donnant la puissance en fonction du signal calorimétrique corrigé. Cette quantité est exprimée en W/g de charbon initialement présent (figure AII.4). La chaleur spécifique du semi-coke est calculée en fonction de la température du calorimètre. La puissance correspondante est déduite de la puissance absorbée, ce qui permet d'évaluer la puissance calorifique nécessaire à la réaction (ΔH_r). L'intégration de cette dernière courbe donne l'enthalpie de réaction de la pyrolyse.

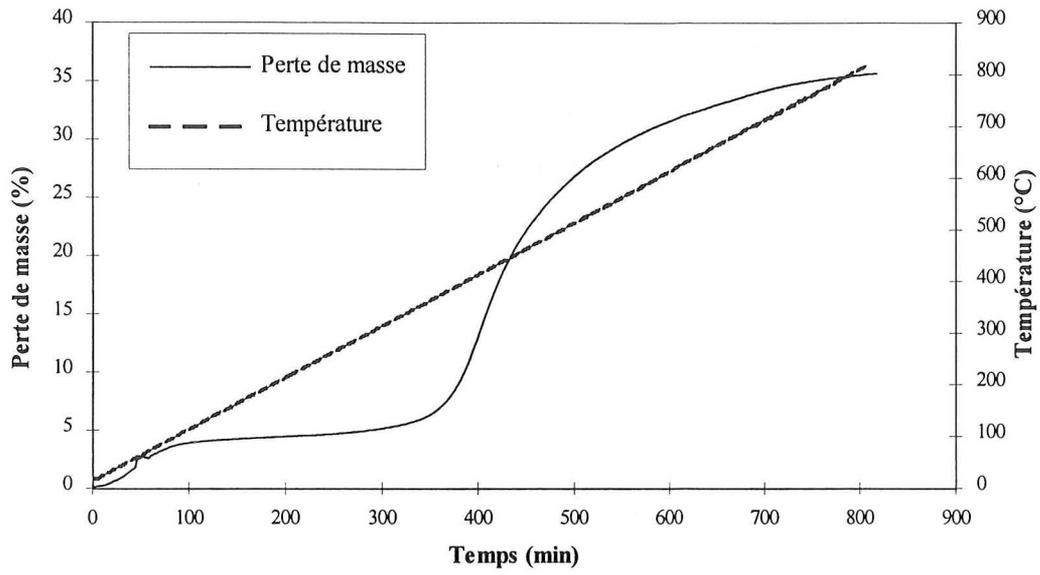


Figure AII.2 : Mesure de la température et de la perte de masse en fonction du temps

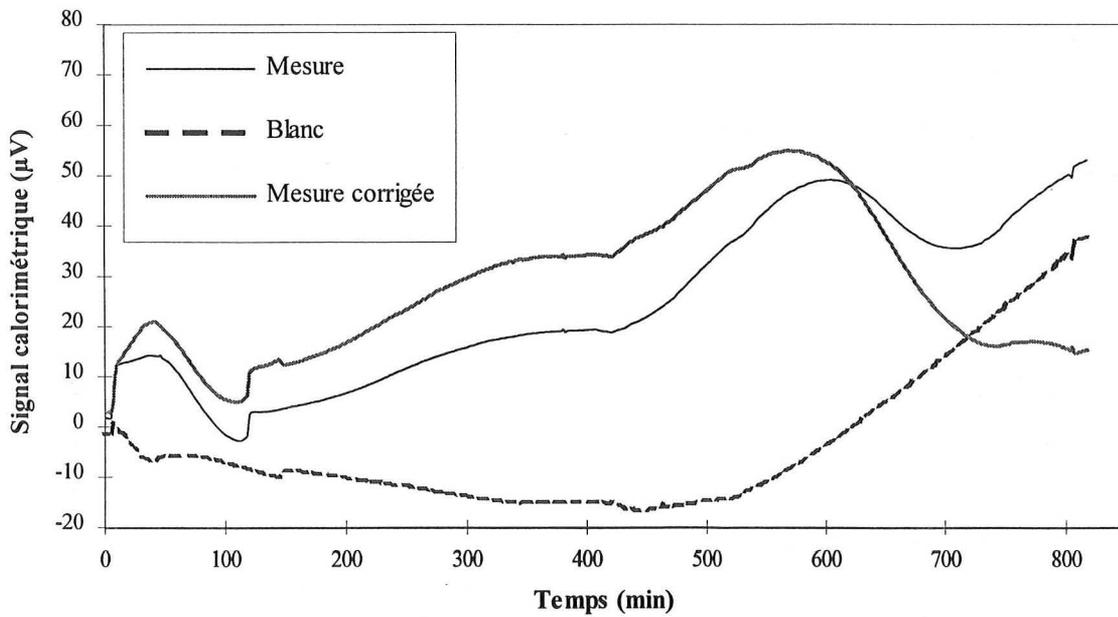


Figure AII.3 : Signal calorimétrique en fonction du temps

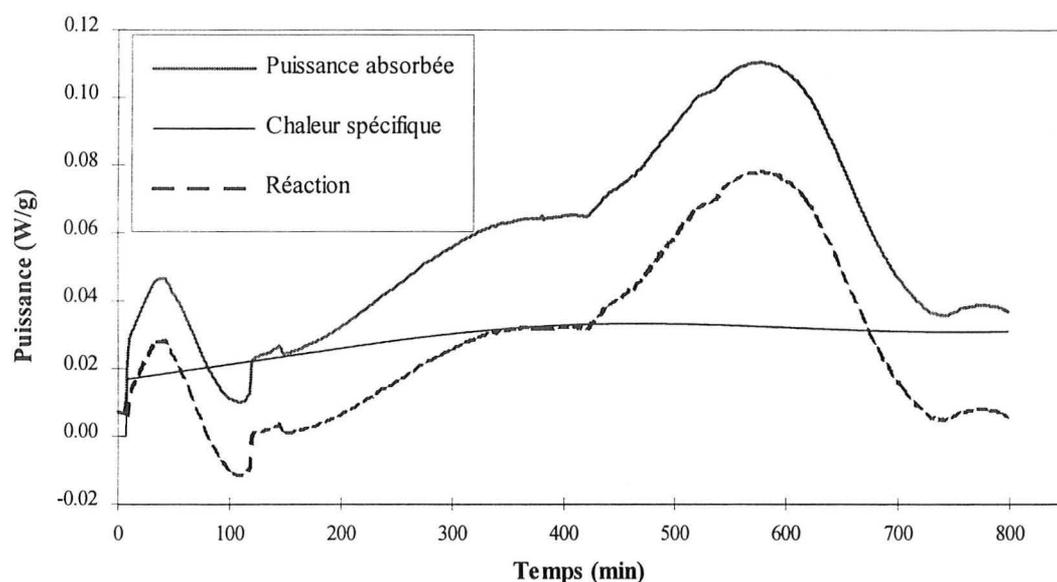


Figure AII.4 : Calcul de l'enthalpie de réaction

Le premier pic de ΔH_r correspond à l'enthalpie de désorption-vaporisation de l'eau d'humidité contenue dans le charbon. Il est suivi sur cet exemple d'un pic exothermique qui est certainement dû à une anomalie du signal de mesure. Ensuite le pic dû à la réaction de pyrolyse du charbon indique clairement un effet endothermique jusqu'à la température de 750°C. L'intégration de ce pic donne une valeur de 1280 J/g si l'on se réfère à la masse initiale de charbon ou de 3550 J/g si l'on se base sur la perte de masse du charbon.

Trois expériences ont été effectuées pour tester la reproductibilité de ce résultat. Les courbes obtenues sont présentées figure AII.5. Les courbes présentent des différences sensibles d'une expérience à l'autre, mais le pic endothermique à 600°C est toujours assez bien reproduit. Les valeurs intégrales de ce pic sont données dans le tableau AII.1. Le caractère fortement endothermique de la réaction dans les conditions de la mesure reste indiscutable, l'enthalpie de réaction mesurée variant de 980 à 1280 J/g de charbon.

La dispersion des résultats obtenus peut être attribuée, d'une part à la difficulté de faire la mesure avec des échantillons de charbon rigoureusement identiques, d'autre part à la dérive du signal calorimétrique constatée sur deux des trois courbes de mesure.

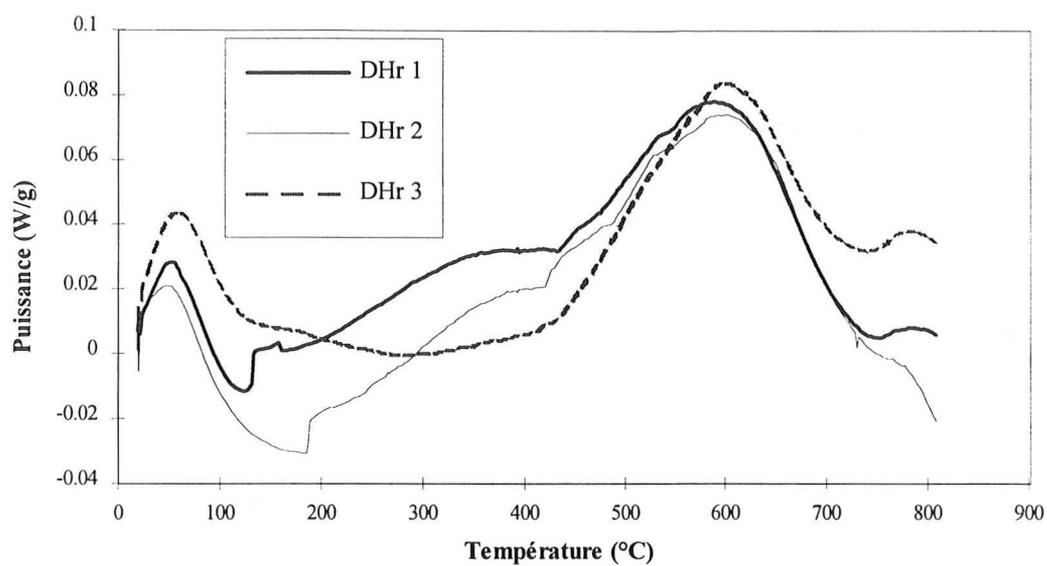


Figure AII.5 : Puissance absorbée par la réaction de pyrolyse en fonction de la température

	J/g de charbon	J/g de MV
$\Delta H_r 1$	1280	3550
$\Delta H_r 2$	980	2730
$\Delta H_r 3$	1210	3360

Tableau AII.1 : Résultats des mesures d'enthalpie de réaction de la pyrolyse du charbon La Houve

Annexe III

Résultats de l'étude expérimentale du mouvement de la charge en four tournant

Le dispositif expérimental ainsi que les méthodes de mesure utilisées pour cette étude sont présentées dans le chapitre III.

AIII.1 Courbes de distribution des temps de séjour

AIII.1.1 Influence du taux de remplissage

Ces essais ont été réalisés avec un taux de remplissage uniforme dans le four, l'alimentation s'effectuant par débordement. Le traceur coloré était constitué d'un échantillon de 100 grains de charbon colorés de 14 à 16 mm de diamètre.

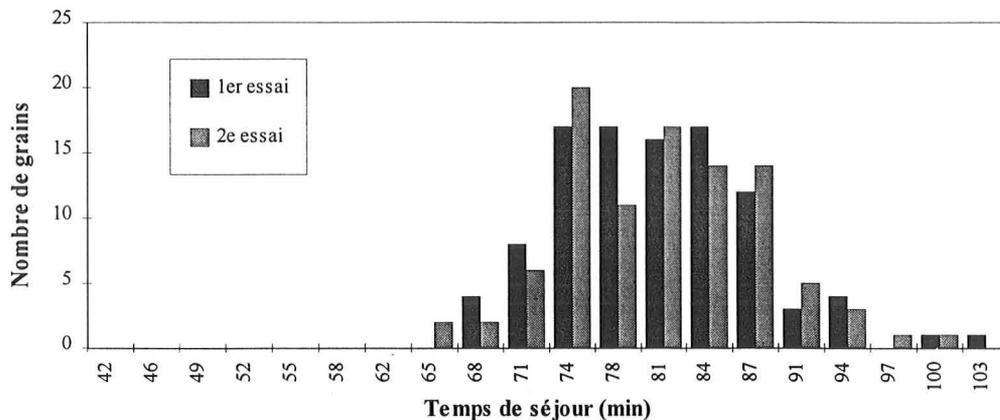


Figure AIII.1 : Distribution des temps de séjour pour un taux de remplissage de 23 %

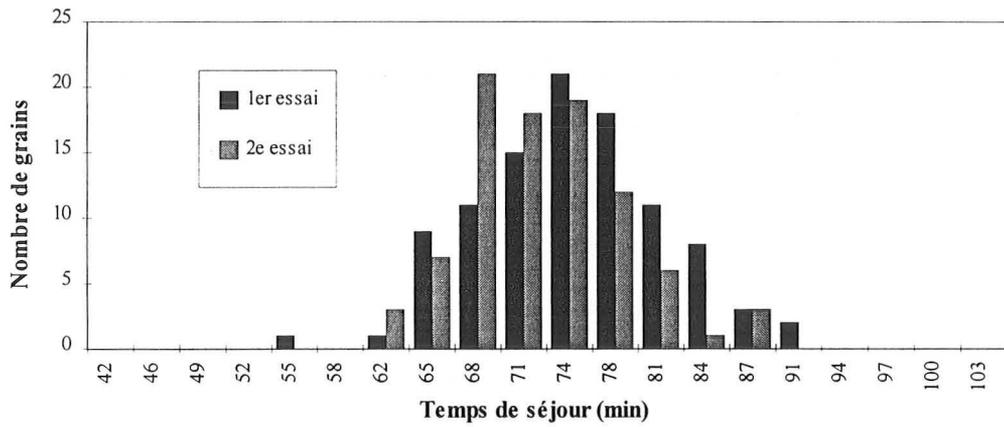


Figure AIII.2 : Distribution des temps de séjour pour un taux de remplissage de 18 %

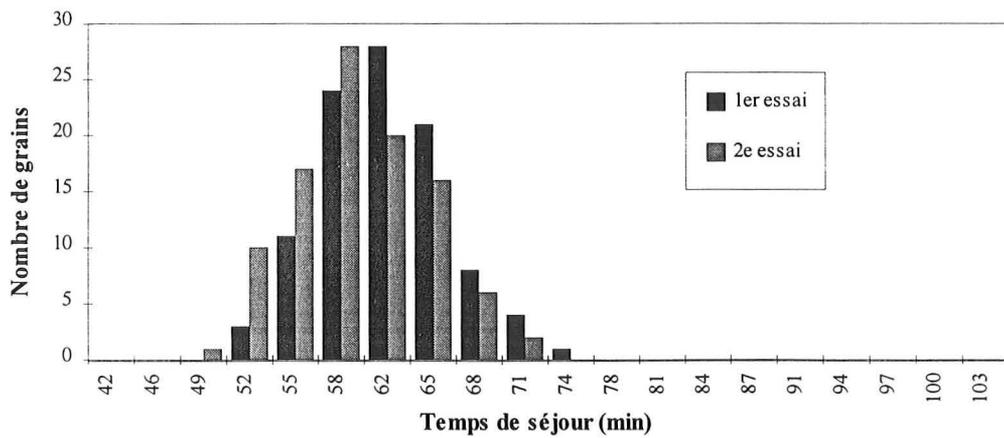


Figure AIII.3 : Distribution des temps de séjour pour un taux de remplissage de 13 %

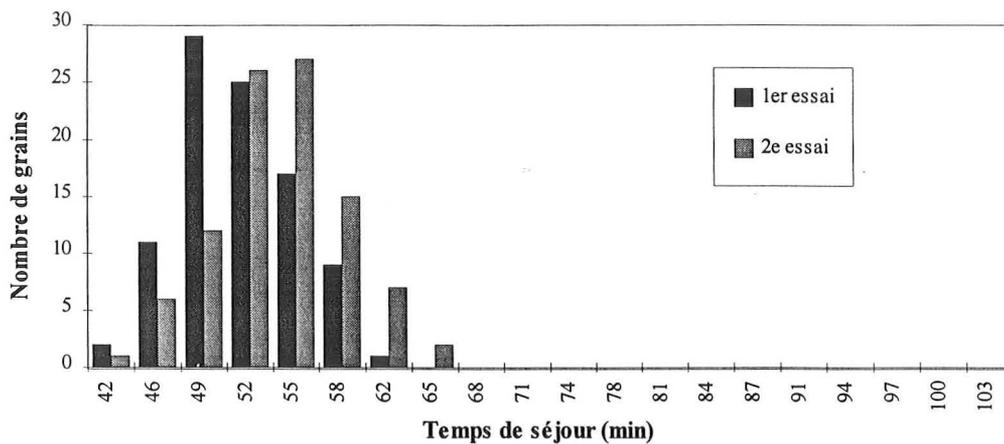


Figure AIII.4 : Distribution des temps de séjour pour un taux de remplissage de 8 %

Taux de remplissage (%)	1 ^{er} essai		2 ^e essai		Moyenne	
	τ (min)	écart type	τ (min)	écart type	τ (min)	écart type
23	80.4	6.8	80.7	6.9	80.6	6.9
18	75.0	6.5	72.4	5.6	73.7	6.1
13	61.4	4.5	59.7	4.7	60.6	4.6
8	51.3	4.0	53.8	4.4	52.6	4.2

Tableau AIII.1 : Influence du taux de remplissage sur le temps de séjour moyen (τ)

AIII.1.2 Influence de la vitesse de rotation

Ces mesures ont été réalisées avec un taux de remplissage de 23 % à l'entrée du four et sans diaphragme de sortie, l'alimentation s'effectuant par débordement.

Vitesse de rotation (rpm)	1 ^{er} essai		2 ^e essai		Moyenne	
	τ (min)	écart type	τ (min)	écart type	τ (min)	écart type
2	38.2	1.6	38.4	1.2	38.3	1.4
3	24.7	0.8	24.6	0.8	24.7	0.8
4	19.3	0.4	19.2	0.5	19.3	0.4

Tableau AIII.2 : Influence de la vitesse de rotation sur le temps de séjour moyen (τ)

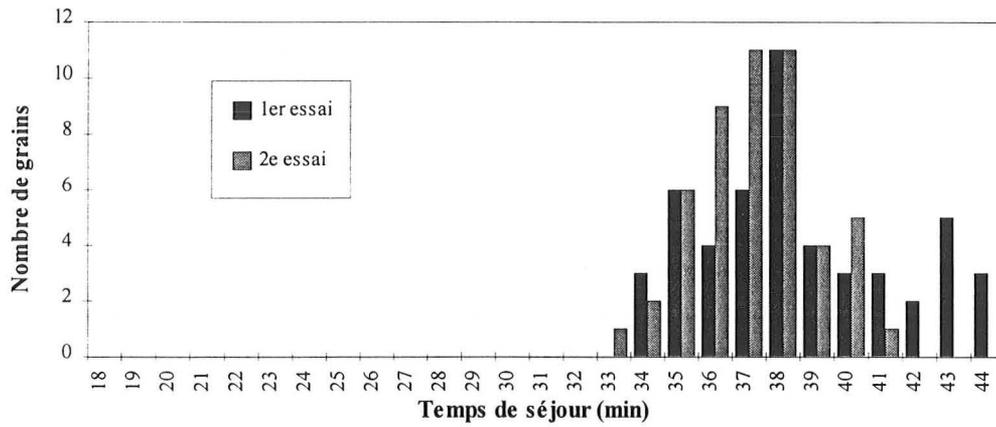


Figure AIII.5 : Distribution des temps de séjour pour une vitesse de rotation de 2 tr/min

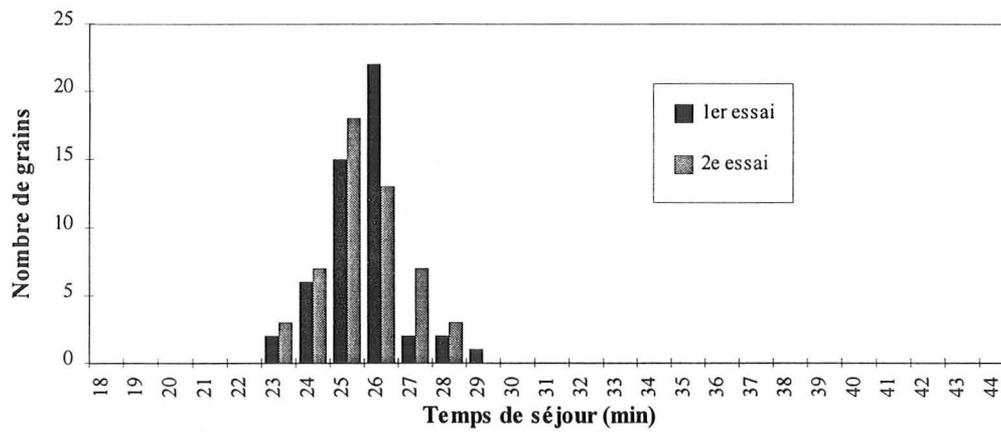


Figure AIII.6 : Distribution des temps de séjour pour une vitesse de rotation de 3 tr/min

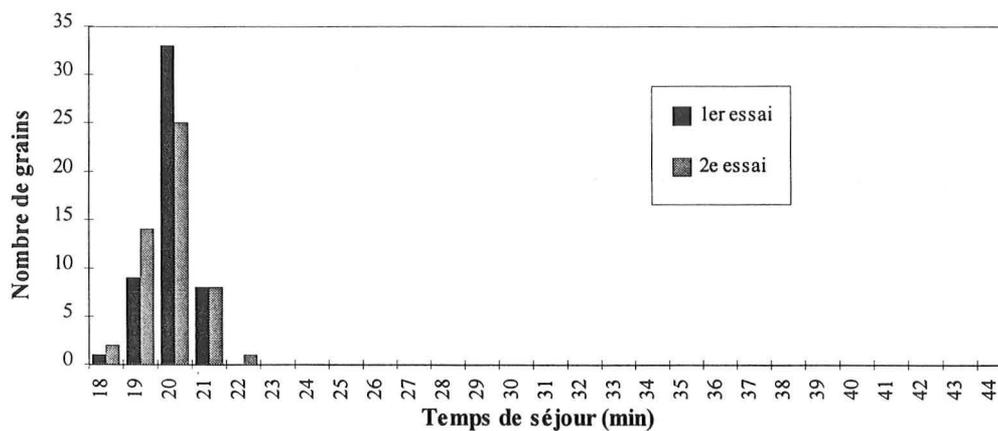


Figure AIII.7 : Distribution des temps de séjour pour une vitesse de rotation de 4 tr/min

AIII.2 Profils de chargement

AIII.2.1 Alimentation par débordement

x (m)	n = 2 rpm Q _s = 318 kg/h			n = 3 rpm Q _s = 480 kg/h				n = 4 rpm Q _s = 626 kg/h		
	1 ^{er} essai	2 ^e essai	Moyenne	1 ^{er} essai	2 ^e essai	3 ^e essai	Moyenne	1 ^{er} essai	2 ^e essai	Moyenne
6	0.023	0.023	0.02	0.033	0.031	0.033	0.032	0.031	0.028	0.030
5.8	0.054	0.059	0.06	0.059	0.061	0.061	0.060	0.054	0.053	0.054
5.6	0.074	0.069	0.07	0.071	0.068	0.072	0.070	0.071	0.069	0.070
5.4	0.078	0.080	0.08	0.077	0.077	0.080	0.078	0.080	0.075	0.077
5.2	0.084	0.081	0.08	0.086	0.091	0.087	0.088	0.086	0.081	0.083
5	0.092	0.092	0.09	0.091	0.099	0.092	0.094	0.092	0.089	0.091
4.8	0.099	0.101	0.10	0.096	0.102	0.097	0.098	0.099	0.096	0.097
4.6	0.105	0.104	0.10	0.102	0.109	0.107	0.106	0.105	0.102	0.104
4.4	0.112	0.112	0.11	0.107	0.119	0.112	0.113	0.115	0.110	0.113
4.2	0.119	0.117	0.12	0.112	0.124	0.117	0.118	0.115	0.114	0.115
4	0.119	0.119	0.12	0.120	0.125	0.122	0.122	0.119	0.122	0.120
3.8	0.127	0.122	0.12	0.124	0.132	0.124	0.126	0.129	0.125	0.127
3.6	0.132	0.130	0.13	0.130	0.140	0.133	0.135	0.132	0.132	0.132
3.4	0.135	0.143	0.14	0.133	0.143	0.137	0.138	0.133	0.140	0.137
3.2	0.142	0.142	0.14	0.140	0.145	0.142	0.142	0.145	0.145	0.145
3	0.147	0.149	0.15	0.144	0.146	0.151	0.147	0.144	0.147	0.146
2.8	0.152	0.150	0.15	0.142	0.145	0.143	0.143	0.152	0.147	0.149
2.6	0.150	0.152	0.15	0.143	0.143	0.145	0.144	0.147	0.148	0.147
2.4	0.147	0.148	0.15	0.148	0.152	0.148	0.149	0.148	0.147	0.147
2.2	0.151	0.152	0.15	0.147	0.152	0.152	0.151	0.151	0.149	0.150
2	0.155	0.155	0.15	0.153	0.161	0.155	0.157	0.155	0.155	0.155
1.8	0.158	0.157	0.16	0.158	0.161	0.158	0.159	0.163	0.163	0.163
1.6	0.159	0.166	0.16	0.157	0.161	0.161	0.160	0.166	0.166	0.166
1.4	0.161	0.163	0.16	0.163	0.163	0.160	0.162	0.163	0.165	0.164
1.2	0.164	0.169	0.17	0.162	0.164	0.166	0.164	0.166	0.171	0.168
1	0.166	0.168	0.17	0.166	0.168	0.168	0.168	0.168	0.168	0.168
0.8	0.170	0.170	0.17	0.171	0.168	0.168	0.169	0.170	0.170	0.170
0.6	0.170	0.170	0.17	0.166	0.166	0.168	0.167	0.173	0.170	0.171
0.4	0.173	0.168	0.17	0.173	0.173	0.170	0.172	0.173	0.170	0.171
0.2	0.176	0.176	0.18	0.173	0.176	0.176	0.175	0.176	0.176	0.176
0	0.176	0.175	0.18	0.175	0.176	0.176	0.176	0.176	0.176	0.176

Tableau AIII.3 : Profils de chargements obtenus avec une alimentation par débordement
(hauteur de la charge au milieu du lit en mètre)

AIII.2.2 Alimentation sans débordement

x (m)	n = 3 tr/min		Qs = 290 kg/h		
	Qs = 246 kg/h	Qs = 350 kg/h	n = 2 tr/min	n = 3 tr/min	n = 4 tr/min
6	0.026	0.030	0.031	0.031	0.031
5.8	0.046	0.051	0.054	0.048	0.041
5.6	0.049	0.059	0.072	0.059	0.049
5.4	0.057	0.070	0.073	0.060	0.058
5.2	0.064	0.076	0.077	0.066	0.063
5	0.069	0.074	0.086	0.071	0.068
4.8	0.072	0.077	0.086	0.076	0.071
4.6	0.072	0.084	0.092	0.081	0.074
4.4	0.074	0.082	0.101	0.084	0.077
4.2	0.074	0.091	0.107	0.091	0.081
4	0.077	0.092	0.114	0.092	0.081
3.8	0.079	0.096	0.117	0.096	0.086
3.6	0.082	0.101	0.119	0.097	0.087
3.4	0.087	0.102	0.125	0.104	0.094
3.2	0.092	0.112	0.133	0.107	0.094
3	0.093	0.116	0.136	0.108	0.095
2.8	0.096	0.115	0.138	0.109	0.092
2.6	0.096	0.115	0.140	0.107	0.092
2.4	0.094	0.114	0.138	0.109	0.096
2.2	0.100	0.121	0.144	0.113	0.096
2	0.101	0.124	0.147	0.115	0.102
1.8	0.101	0.129	0.150	0.120	0.104
1.6	0.103	0.128	0.152	0.123	0.103
1.4	0.102	0.132	0.153	0.120	0.105
1.2	0.105	0.129	0.156	0.124	0.106
1	0.107	0.135	0.158	0.122	0.107
0.8	0.107	0.135	0.157	0.120	0.105
0.6	0.107	0.130	0.158	0.125	0.105
0.4	0.107	0.138	0.160	0.125	0.107
0.2	0.112	0.142	0.163	0.129	0.110
0	0.112	0.142	0.163	0.129	0.110

Tableau AIII.4 : Profils de chargements obtenus avec une alimentation sans débordement
(hauteur de la charge au milieu du lit en mètre)

AIII.3 Etude du mouvement d'un grain au sein de la charge

AIII.3.1 Taux de remplissage uniforme dans le four (23 %)

Ces mesures ont été effectuées à l'aide d'un endoscope, sur 100 passages d'un grain coloré en surface du lit de charbon. Lorsque le grain passe dans la partie inférieure du lit, son mouvement est solidaire de la paroi du tube et il décrit un arc de cercle. Le rayon de cet arc de cercle a été calculé en fonction de la position du grain sur le talus au moment de son apparition en surface du lit. La vitesse du grain en surface du lit ainsi que sa vitesse de progression axiale ont également été déterminées par une étude de l'enregistrement vidéo.

	Vitesse de rotation (tr/min)		
	2	3	4
rayon moyen (cm)	27,5	26,6	26,1
écart type (cm)	2,0	2,3	2,7
u moyen (cm/s)	0,17	0,24	0,36
écart type (cm/s)	0,21	0,37	0,39
v moyen (cm/s)	25,9	34,4	41,7
écart type (cm/s)	8,3	8,6	7,4

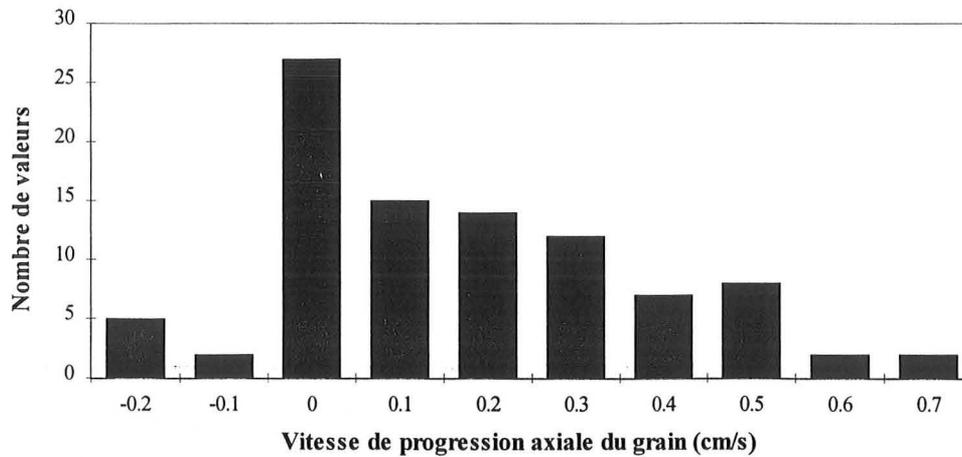
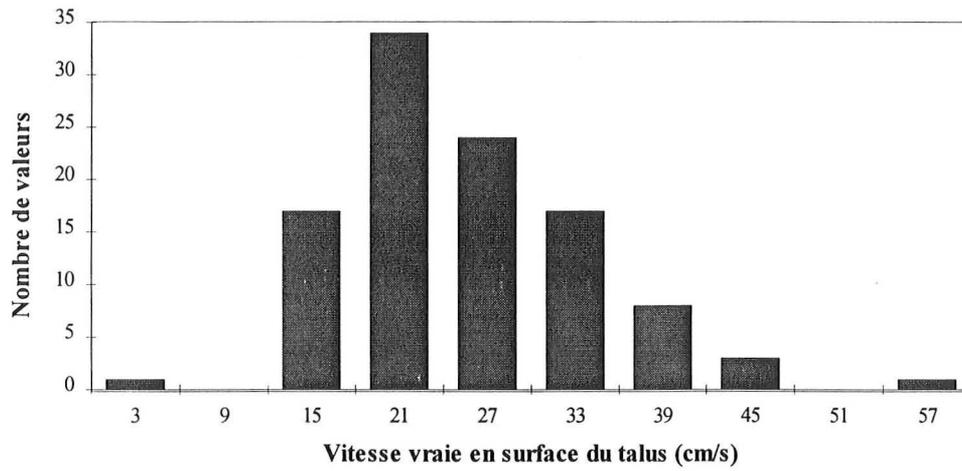
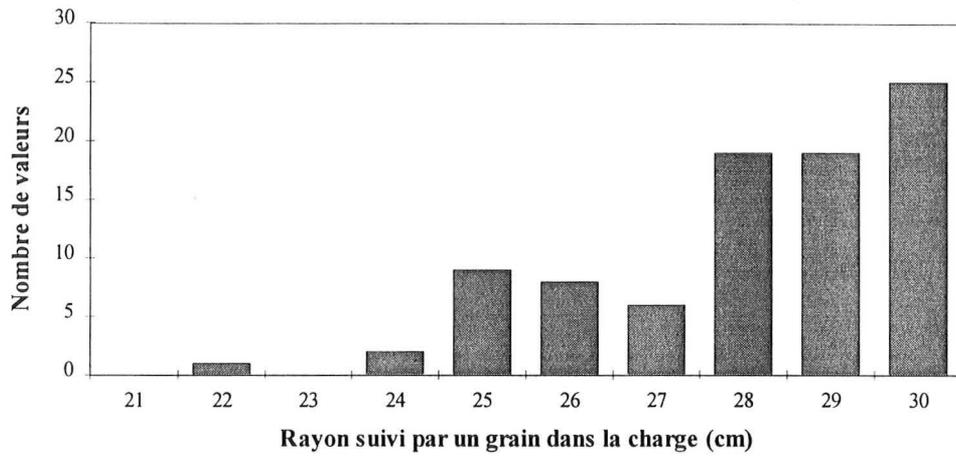
Tableau AIII.5 : Récapitulatif des résultats

(u : vitesse de progression axiale du grain, v : vitesse vraie du grain sur le talus)

Les histogrammes correspondants à ces résultats sont présentés pages 160 à 162.

AIII.3.2 Taux de remplissage non-uniforme dans le four

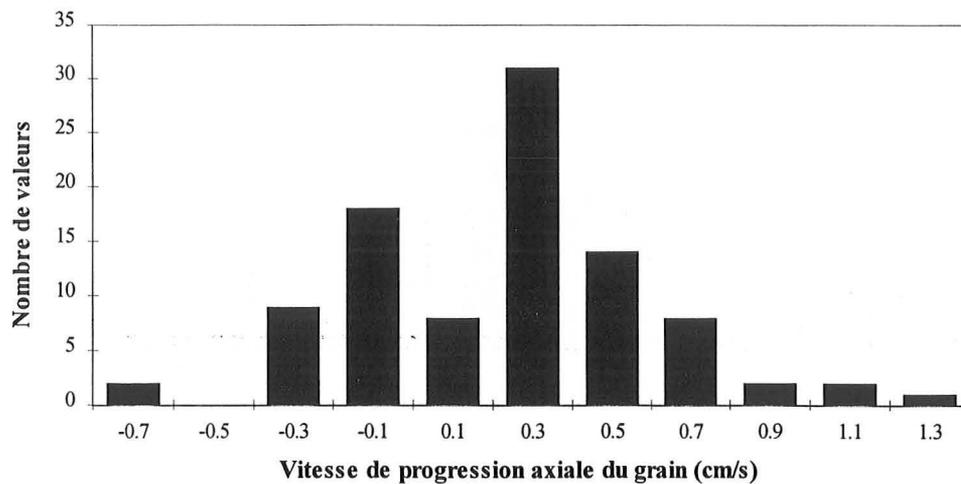
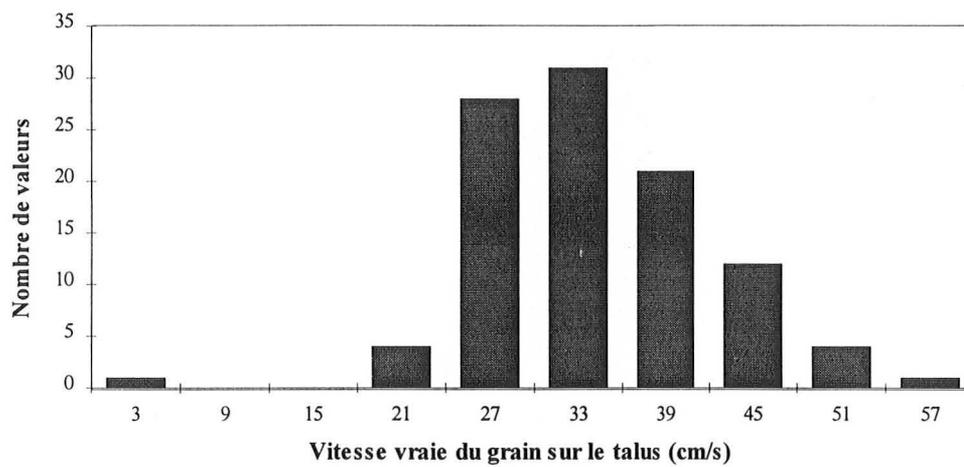
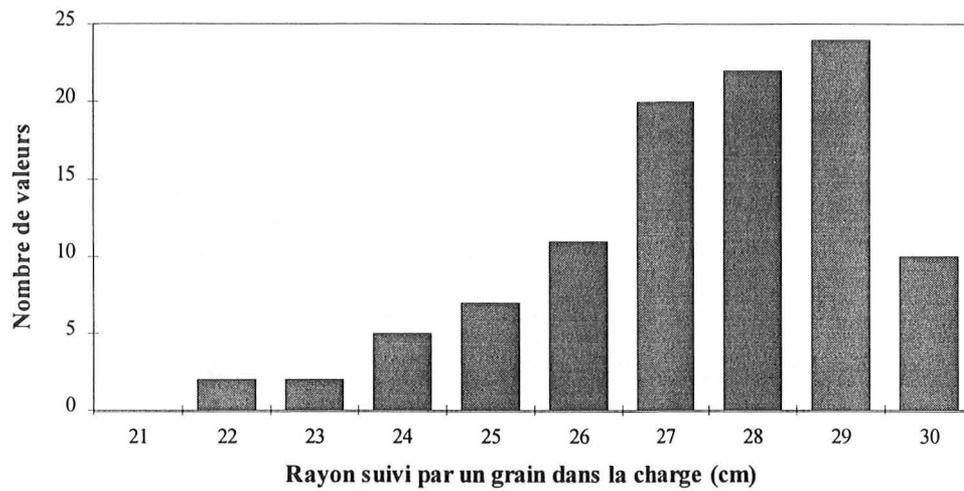
Ces mesures ont été réalisées avec un taux de remplissage de 23 % à l'entrée du four et sans diaphragme de sortie, l'alimentation s'effectuant par débordement. La hauteur de chargement étant variable le long du four, la vitesse de progression axiale du grain, sa vitesse vraie sur le talus et la fraction du temps de séjour passée en surface du lit sont évaluées en fonction de la distance axiale dans le four. Les courbes correspondantes sont présentées pages 163 et 164. Chaque point de mesure représente une valeur moyenne sur cinq passages successifs du grain coloré en surface du talus.



Figures AIII.8 à AIII.10 : Taux de remplissage uniforme (23 %)

Etude sur 100 passages du grain en surface du talus

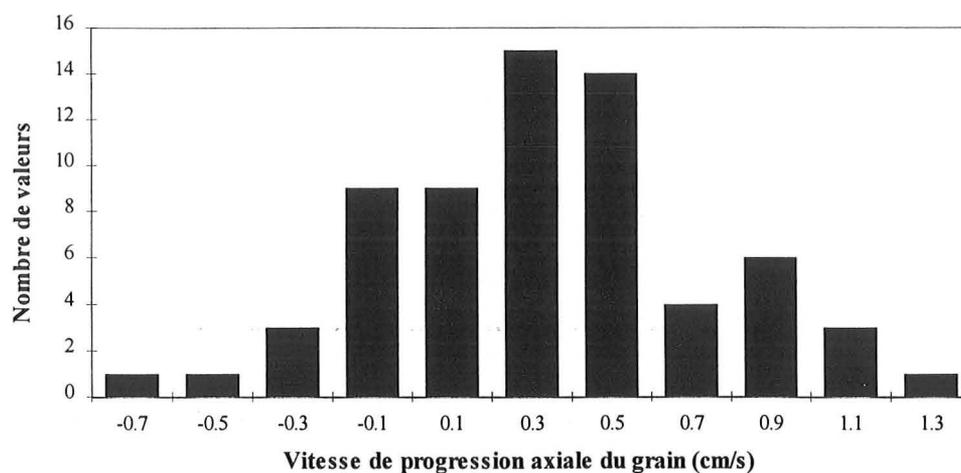
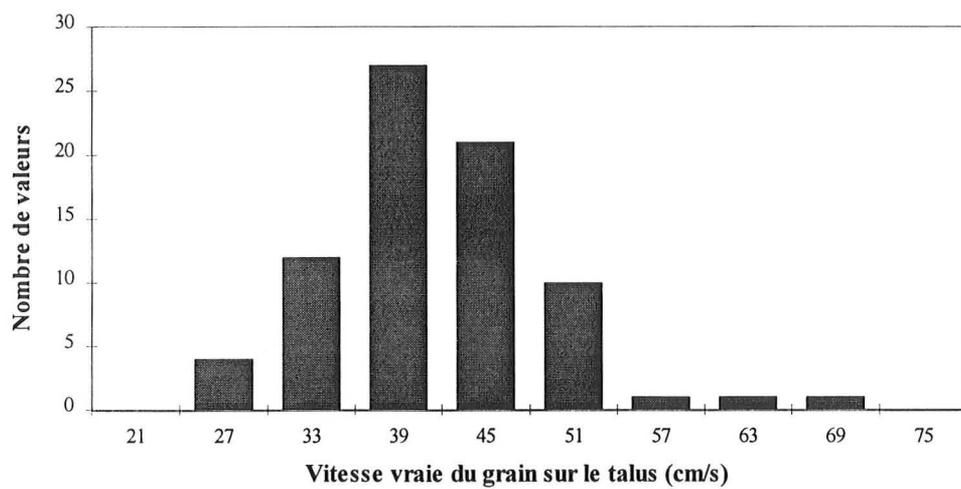
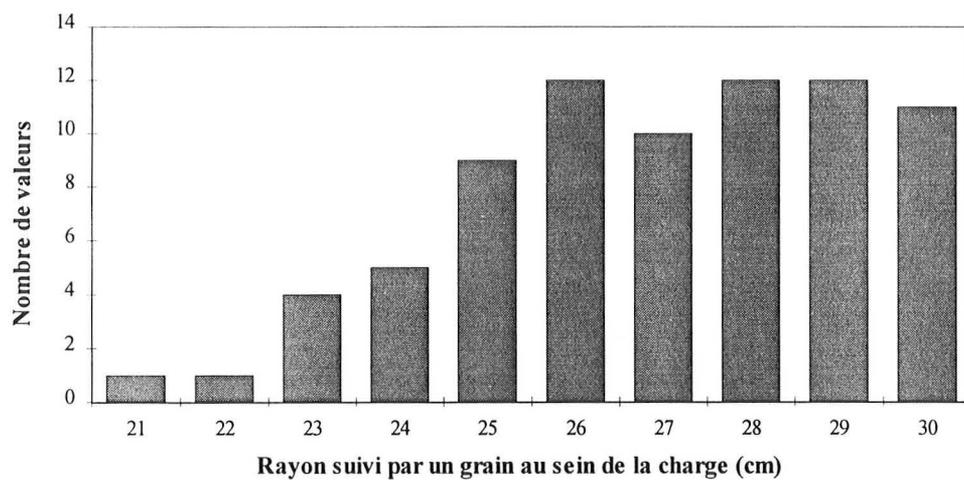
Vitesse de rotation : 2 tr/min



Figures AIII.11 à AIII.13 : Taux de remplissage uniforme (23 %)

Etude sur 100 passages du grain en surface du talus

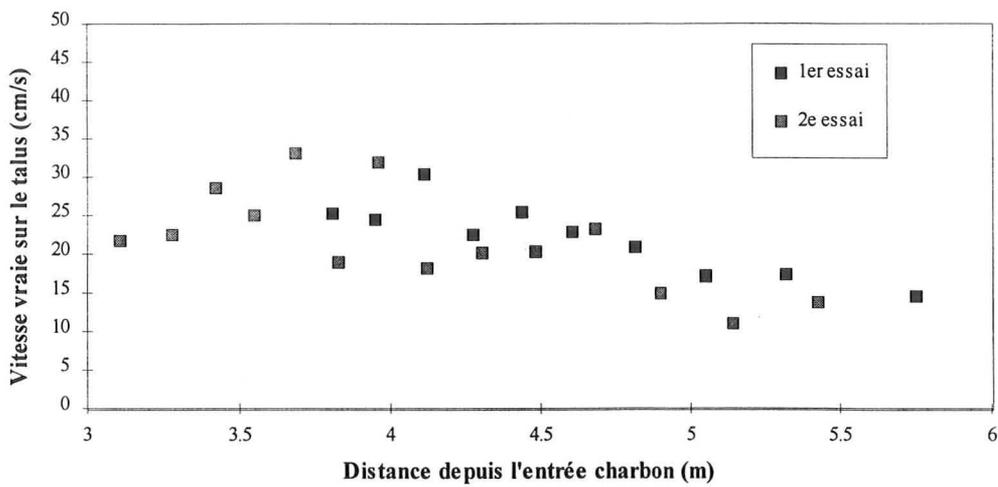
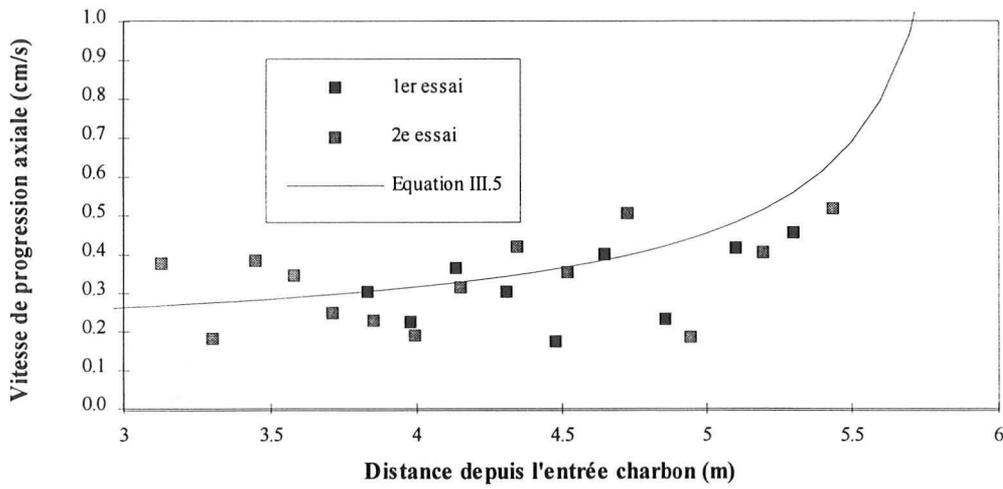
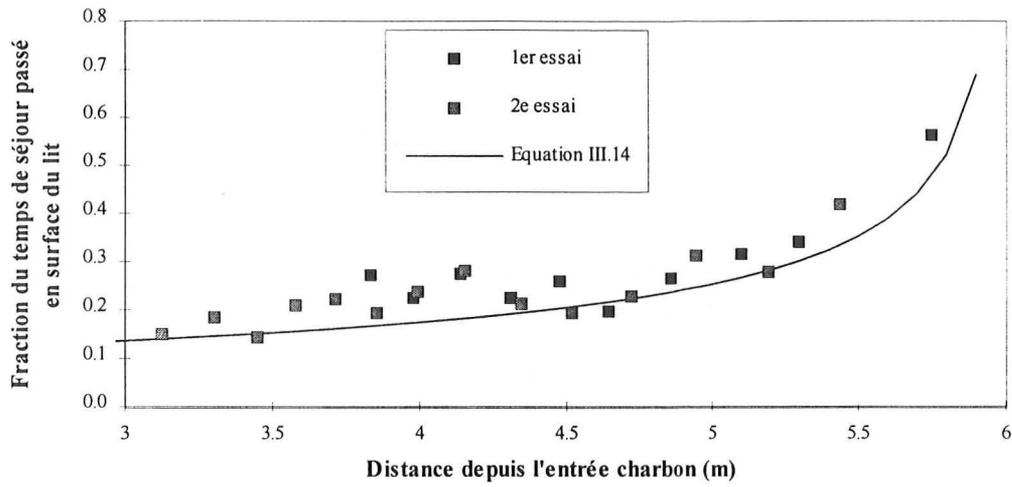
Vitesse de rotation : 3 tr/min



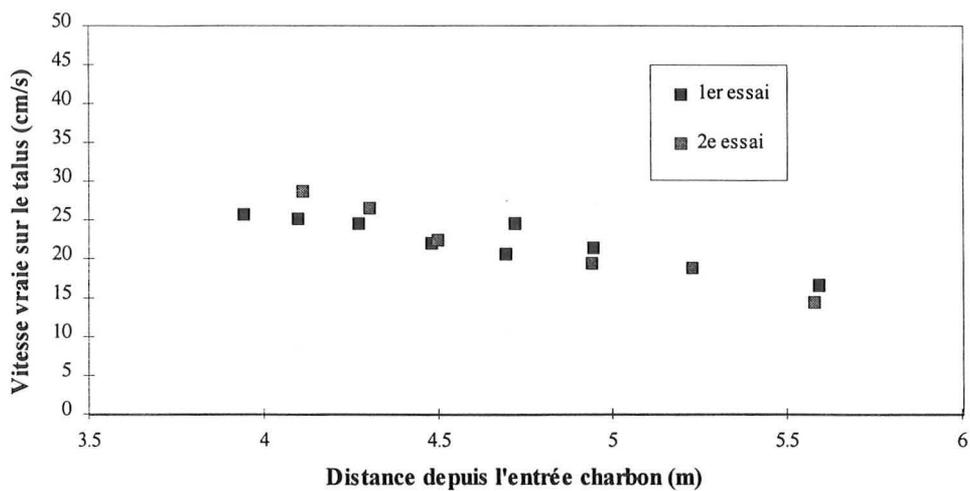
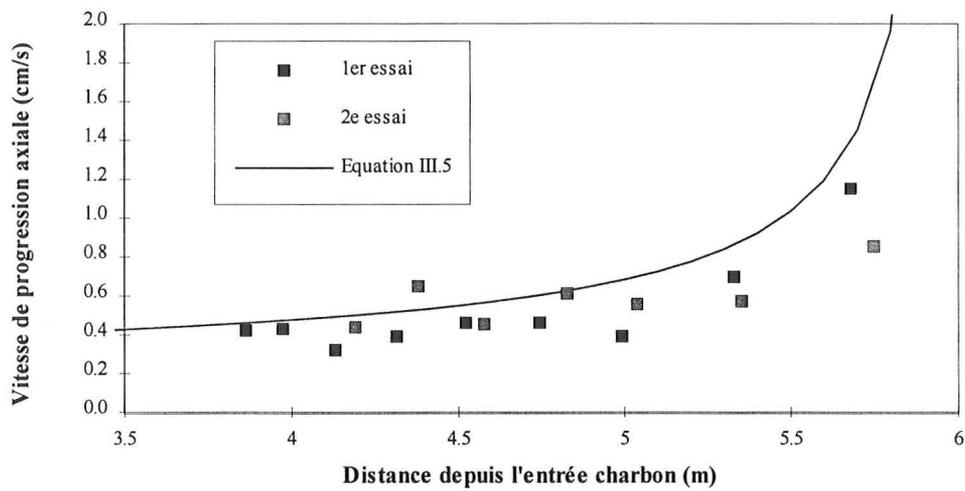
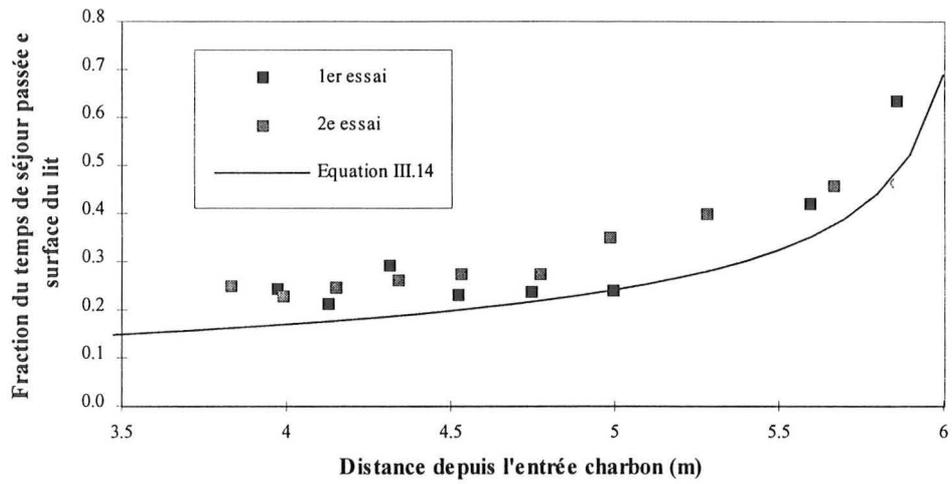
Figures AIII.14 à AIII.16 : Taux de remplissage uniforme (23 %)

Etude sur 100 passages du grain en surface du talus

Vitesse de rotation : 4 tr/min



Figures AIII.17 à AIII.19 : Taux de remplissage non-uniforme le long du four
 Moyennes sur 5 passages du grain en surface du talus
 Vitesse de rotation : 2 tr/min



Figures AIII.20 à AIII.22 : Taux de remplissage non-uniforme le long du four
Moyennes sur 5 passages du grain en surface du talus
Vitesse de rotation : 3 tr/min

Annexe IV

Mise en équation du modèle de grain

Le problème à résoudre est celui du transport de chaleur par conduction en coordonnées sphériques. Le bilan différentiel de chaleur selon r , en présence d'un terme source σ_q , s'écrit :

$$\rho C_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} \right)_{r,t} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \lambda \frac{\partial T}{\partial r} \right)_{r,t} + \sigma_q$$

Les conditions aux limites ($r = R_g$) sont les suivantes (cf. § VI.1) :

- si le grain est sur le talus :

$$\lambda \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{R_g,t} = h_{gs} (T(R_g,t) - T_g) + h_{rps} (T(R_g,t) - T_{pi}) \quad \text{où } h_{gs} = h_{cgs} + h_{rgs}$$

- si le grain est contre la paroi :

$$\lambda \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{R_g,t} = h_{cps} (T(R_g,t) - T_{pi})$$

- si le grain est au coeur de la charge :

$$\lambda \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{R_g,t} = 0$$

La résolution numérique de cette équation s'effectue à l'aide de la méthode des volumes de contrôle dans un schéma implicite. Chaque volume possède une même épaisseur Δr (figure AIV.1). Les paramètres thermophysiques du charbon (ρ , C_p , λ) sont calculés en fonction de la température du volume de contrôle considéré.

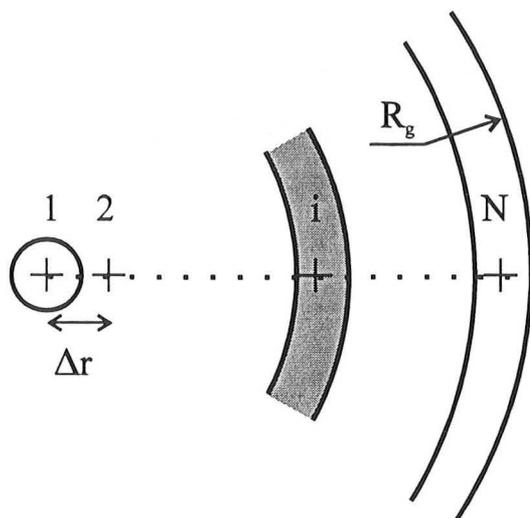


Figure AIV.1 : Discrétisation du grain en volumes de contrôle

AIV.1 Cinétique des réactions de pyrolyse :

Chaque constituant j des matières volatiles possède sa propre cinétique de dévolatilisation. On peut donc définir un taux de conversion par constituant. Ainsi, le taux de conversion $X_j(t)$ du constituant j est défini par :

$$X_j(t) = 1 - \frac{m_{vol_j}(t)}{m_{vol_j}(t=0)}$$

où $m_{vol_j}(t)$ est la masse du constituant j susceptible de se volatiliser à l'instant t .

Le taux de conversion global est défini par :

$$X(t) = 1 - \frac{m_{vol}(t)}{m_{vol}(t=0)} \quad \text{avec} \quad m_{vol}(t) = \sum_j m_{vol_j}(t)$$

On définit ω_j comme étant la fraction massique du constituant j dans les matières volatiles à l'instant $t = 0$: $m_{vol_j}(t = 0) = \omega_j m_{vol}(t = 0)$

d'où :
$$X(t) = 1 - \sum_j \omega_j (1 - X_j)$$

La loi cinétique étant d'ordre 1, elle se traduit, dans un schéma implicite, par :

$$\frac{m_{vol_j}(t + \Delta t) - m_{vol_j}(t)}{\Delta t} = -k_j' m_{vol_j}(t + \Delta t)$$

Le symbole ' signifie que la variable est prise en $t + \Delta t$.

k_j est la constante cinétique de la réaction de dévolatilisation du constituant j :

$$k_j = k_{0j} \exp - (E_j/RT)$$

$$\text{donc : } m_{\text{vol}_j}(t + \Delta t) = \frac{m_{\text{vol}_j}(t)}{1 + k_{o_j} \Delta t \exp - (E_j / RT')}$$

$$\text{d'où : } \boxed{X_j' = 1 - \frac{1 - X_j}{1 + k_{o_j} \Delta t \exp - (E_j / RT')}}$$

AIV.2 Terme source :

Le terme source a plusieurs composantes. Il comprend l'énergie consommée par le séchage (δQ_s), les réactions de pyrolyse (δQ_p) et l'énergie utilisée pour chauffer les matières volatiles s'échappant du grain (δQ_g). En fonction des conditions environnantes, il faut également prendre en compte la chaleur apportée par une combustion partielle du grain (δQ_c) ou l'énergie dégagée lors de l'extinction (δQ_e). Le terme source σ_{qi} du volume v_i (en W/m^3) s'écrit ainsi :

$$\sigma_{qi} = (\delta Q_{s_i} + \delta Q_{p_i} + \delta Q_{g_i} + \delta Q_{c_i} + \delta Q_{e_i}) / \Delta t / v_i \quad (\delta Q \text{ en J})$$

AIV.2.1 Chaleur consommée par le séchage :

En considérant une cinétique du premier ordre (cf. § II.3), l'enthalpie consommée par le séchage, dans le volume v_i , entre t et $t + \Delta t$ s'écrit :

$$\begin{aligned} \delta Q_{s_i} &= - \rho_s v_i (Y_i' - Y_i) \Delta H_s \\ &= - \rho_s v_i Y_i' k_{o_s} \Delta t \exp - (E_s / RT_i') \Delta H_s \\ &= - k_{o_s} \rho_s v_i \Delta t \frac{Y_i}{k_{o_s} \Delta t + \exp - (E_s / RT_i')} \Delta H_s \end{aligned}$$

où Y_i désigne l'humidité à l'instant t dans le volume i , ΔH_s la somme des enthalpies de désorption et de vaporisation de l'eau, ρ_s la masse volumique apparente du charbon sec, k_{o_s} le facteur de fréquence de la réaction de désorption et E_s son énergie d'activation.

AIV.2.2 Chaleur consommée par les réactions de pyrolyse :

L'enthalpie consommée par les réactions de pyrolyse, dans le volume v_i , entre t et $t + \Delta t$ s'écrit :

$$\delta Q_{p_i} = \sum_j (m_{\text{vol}_j}' - m_{\text{vol}_j}) \Delta H_p$$

$$\begin{aligned}
&= - \sum_j (m_{\text{vol}j}' k_{0j} \Delta t \exp - (E_j / RT_i')) \Delta H_p \\
&= - \sum_j k_{0j} \Delta t \frac{m_{\text{vol}j}}{k_{0j} \Delta t + \exp - (E_j / RT_i')} \Delta H_p \\
\delta Q_{p_i} &= - \sum_j k_{0j} \Delta t \frac{\omega_j (1 - X_j)}{k_{0j} \Delta t + \exp - (E_j / RT_i')} \Delta H_p \rho_{\text{vol}} v_i
\end{aligned}$$

ΔH_p désigne l'enthalpie de réaction de la pyrolyse (en J/kg de matières volatiles) et ρ_{vol} la concentration massique initiale en matières volatiles :

$$\rho_{\text{vol}} = \frac{m_{\text{vol}}(t=0)}{\frac{4}{3} \pi R_g^3}$$

AIV.2.3 Chaleur perdue par échange avec les matières volatiles :

- Pour le volume v_2 :

La masse de gaz se dégagant du volume v_1 pendant Δt est :

$$\delta m_1 = \rho_{\text{vol}} v_1 \sum_j \Delta X_{j,1} \omega_j \text{ avec } \Delta X_{j,1} = X_{j,1}' - X_{j,1}$$

La quantité de chaleur consommée pour porter ces gaz à la température T_2 est :

$$\delta Q_{g_2} = \rho_{\text{vol}} v_1 \sum_j \Delta X_{j,1} \omega_j \int_{T_1}^{T_2} C_{p_j} dT$$

où C_{p_j} désigne la chaleur spécifique du constituant j à la température T .

- Pour un volume v_{i-1} :

La masse des gaz se dégagant du volume v_{i-1} pendant Δt est :

$$\delta m_{i-1} = \sum_{k=1}^{i-1} \left(\rho_{\text{vol}} v_k \sum_j \Delta X_{j,k} \omega_j \right)$$

La quantité de chaleur consommée pour porter ces gaz à la température T_1 est :

$$\delta Q_{g_i} = \sum_{k=1}^{i-1} \left(\rho_{\text{vol}} v_k \sum_j \Delta X_{j,k} \omega_j \int_{T_{i-1}}^{T_i} C_{p_j} dT \right)$$

AIV.2.4 Chaleur apportée par la combustion du grain :

L'expression de la vitesse apparente de combustion du grain (\bar{r}_c , en mol/m³/s) est donnée au § V.2.1. L'enthalpie dégagée par cette réaction, dans le volume v_i , entre t et $t + \Delta t$ s'écrit :

$$\delta Q_{c_i} = - v_i \bar{r}_c \Delta H_c \Delta t$$

où ΔH_c est l'enthalpie de combustion du carbone (en J/mol).

AIV.2.5 Chaleur cédée lors de l'extinction :

L'énergie nécessaire à la vaporisation de l'eau d'extinction (débit Q_e) est supposée provenir exclusivement de la charge. Elle est répartie de façon uniforme sur le grain, lorsque celui-ci se trouve à la surface du talus.

Le débit d'eau reçu par un grain (q_e) dépend de la surface qu'il couvre sur le talus (D_{app}^2) par rapport à la surface arrosée ($L_e A_s$), L_e correspondant à la longueur de four sur laquelle est effectuée l'extinction.

$$q_e = Q_e \frac{D_{app}^2}{L_e A_s} \quad (\text{en kg/s})$$

L'enthalpie nécessaire à la vaporisation de cette eau, dans le volume v_i , entre t et $t + \Delta t$ s'écrit :

$$\delta Q_{e_i} = - \frac{q_e \Delta H_s \Delta t v_i}{\frac{4}{3} \pi R_g^3}$$

AIV.3 Bilan thermique sur le volume v_i (i compris entre 2 et N-1)

La surface S_i est la frontière entre les volumes v_i et v_{i+1} .

$$S_i = 4\pi [(i-0,5) \Delta r]^2 \quad \text{et} \quad S_{i-1} = 4\pi [(i-1,5) \Delta r]^2$$

$$v_i = \frac{4}{3} \pi [(i-0,5)^3 - (i-1,5)^3] \Delta r^3 = 4\pi [(i-1)^2 + 1/12] \Delta r^3$$

Les paramètres ρ , C_p et λ varient avec la température. On désigne par ρ_i , C_{p_i} et λ_i les propriétés du volume v_i à la température T_i . Sur la surface S_i , λ a une valeur intermédiaire entre λ_i et λ_{i+1} , il s'agit de la moyenne harmonique de ces deux valeurs. On pose :

$$\lambda_e = \frac{2}{1/\lambda_i + 1/\lambda_{i+1}} \quad \text{valeur de } \lambda \text{ sur } S_i, \text{ surface coté est}$$

$$\lambda_w = \frac{2}{1/\lambda_{i-1} + 1/\lambda_i} \quad \text{valeur de } \lambda \text{ sur } S_{i-1}, \text{ surface coté ouest}$$

La chaleur entrant dans v_i à travers S_i entre t et $t + \Delta t$ s'écrit :

$$-\lambda_e' S_i \frac{T_{i+1}' - T_i'}{\Delta r} \Delta t = \lambda_e' (T_{i+1}' - T_i') 4\pi (i-0,5)^2 \Delta r \Delta t$$

La chaleur sortant de v_i à travers S_{i-1} est :

$$-\lambda_w' S_{i-1} \frac{T_{i-1}' - T_i'}{\Delta r_p} \Delta t = \lambda_w' (T_i' - T_{i-1}') 4\pi (i-1,5)^2 \Delta r \Delta t$$

Le terme d'accumulation dans v_i est :

$$\rho_i' Cp_i' v_i (T_i' - T_i) = \rho_i' Cp_i' (T_i' - T_i) 4\pi [(i-1)^2 + 1/12] \Delta r^3$$

On définit les nombres de Fourier coté est et ouest par:

$$Fo_e = \frac{\lambda_e}{\rho_i' Cp_i'} \frac{\Delta t}{\Delta r^2} \quad \text{et} \quad Fo_w = \frac{\lambda_w}{\rho_i' Cp_i'} \frac{\Delta t}{\Delta r^2}$$

Le bilan thermique dans v_i s'écrit, après division par $4\pi \Delta r^3 \rho_i' Cp_i'$:

$$Fo_e' (1 - 0,5)^2 (T_{i+1}' - T_i') + (\delta Qs_i + \delta Qp_i + \delta Qg_i + \delta Qc_i + \delta Qe_i) / (4\pi \Delta r^3 \rho_i' Cp_i') \\ = Fo_w' (1 - 1,5)^2 (T_i' - T_{i-1}') + (T_i' - T_i)(1 - 0,5)^2$$

Le regroupement des termes en T_i donne :

$$-T_{i-1}' Fo_w' (1 - 1,5)^2 + T_i' [Fo_w' (1 - 1,5)^2 + Fo_e' (1 - 0,5)^2 + (i-1)^2 + 1/12] - T_{i+1}' Fo_e' (1 - 0,5)^2 \\ = T_i [(i-1)^2 + 1/12] + \frac{\delta Qs_i + \delta Qp_i + \delta Qg_i + \delta Qc_i + \delta Qe_i}{4\pi \Delta r^3 \rho_i' Cp_i'}$$

$$\bullet \frac{\delta Qs_i}{4\pi \rho_i' Cp_i' \Delta r^3} = [(i-1)^2 + 1/12] \theta s_i Fs_i$$

$$\text{avec : } \theta s_i = -\frac{\rho_s \Delta H_s}{\rho_i' Cp_i'} \quad \text{et} \quad Fs_i = \Delta t k_{o_s} \frac{Y_i}{k_{o_s} \Delta t + \exp - (E_s / RT_i')}$$

$$\bullet \frac{\delta Qp_i}{4\pi \rho_i' Cp_i' \Delta r^3} = [(i-1)^2 + 1/12] \theta p_i Fp_i$$

$$\text{avec : } \theta p_i = -\frac{\rho_{vol} \Delta H_p}{\rho_i' Cp_i'} \quad \text{et} \quad Fp_i = \Delta t \sum_j k_{o_j} \frac{\omega_j (1 - X_j)}{k_{o_j} \Delta t + \exp - (E_j / RT_i')}$$

$$\bullet \frac{\delta Qg_i}{4\pi \rho_i' Cp_i' \Delta r^3}$$

$$= -\frac{\rho_{vol}}{\rho_i' Cp_i'} \sum_{k=1}^{i-1} \left(\sum_j \frac{k_{o_j} \Delta t}{k_{o_j} \Delta t + \exp (E_j / RT_i')} (1 - X_{j,k}) \omega_j [(k-1)^2 + 1/12] \int_{T_{i-1}}^{T_i} Cp_j dT \right)$$

$$\bullet \frac{\delta Qc_i}{4\pi \rho_i' Cp_i' \Delta r^3} = [(i-1)^2 + 1/12] \theta c_i Fc_i$$

$$\text{avec : } \theta c_i = -\frac{\rho_s \Delta H_c}{\rho_i' Cp_i'} \quad \text{et} \quad Fc_i = \Delta t \bar{r}_c / \rho_s$$

$$\bullet \frac{\delta Q_{e_i}}{4\pi \rho_i' C_{p_i}' \Delta r^3} = [(i-1)^2 + 1/12] \theta_{e_i} F_{e_i}$$

$$\text{avec : } \theta_{e_i} = -\frac{\rho_s \Delta H_s}{\rho_i' C_{p_i}'} \quad \text{et} \quad F_{e_i} = \frac{q_e \Delta t}{\frac{4}{3} \pi R_g^3 \rho_s}$$

L'équation du bilan thermique dans le volume i s'écrit ainsi :

$$\begin{aligned} & -T_{i-1}' Fo_w'(1 - 1,5)^2 + T_i' [Fo_w'(1 - 1,5)^2 + Fo_e'(1 - 0,5)^2 + (i-1)^2 + 1/12] - T_{i+1}' Fo_e'(1 - 0,5)^2 \\ & = [(i-1)^2 + 1/12] [T_i + \theta_{s_i} F_{s_i} + \theta_{p_i} F_{p_i} + \theta_{c_i} F_{c_i} + \theta_{e_i} F_{e_i}] + \frac{\delta Q_{g_i}}{4\pi \Delta r^3 \rho_i' C_{p_i}'} \end{aligned}$$

AIV.4 Bilan thermique sur le volume v_N

Les conditions limites en surface du grain varient en fonction de sa position au sein de la charge. On distingue trois cas : le grain se situe sur le talus, contre la paroi ou au coeur de la charge.

1^{er} cas : grain sur le talus

Les transferts thermiques en surface du grain comprennent les échanges par rayonnement avec la paroi (coefficient de transfert h_{rps}) et les échanges par rayonnement et convection avec le gaz (coefficient de transfert $h_{gs} = h_{cgs} + h_{rgs}$).

$$\text{avec : } h_{rps} = \sigma \varepsilon_p \varepsilon_s (T_{pi}^4 - T_s^4)/(T_{pi} - T_s)$$

$$h_{rgs} = \sigma \varepsilon_g \varepsilon_s (T_g^4 - T_s^4)/(T_g - T_s)$$

où T_{pi} , T_g et T_s désignent respectivement la température moyenne de la paroi découverte, la température du gaz et la température en surface du grain ($T_s \neq T_N$).

Le flux de chaleur entrant en surface à $t + \Delta t$ est : $[h_{rps}'(T_{pi}' - T_s') + h_{gs}'(T_g' - T_s')] 4\pi R_g^2$

alors que le flux de conduction à travers la surface est donné par : $\lambda_N' \frac{T_s' - T_N'}{\Delta r/2} 4\pi R_g^2$

L'égalité de ces deux flux impose donc : $T_s' = \frac{B_{rps}' T_{pi}' + B_{gs}' T_g' + T_N'}{1 + B_{rps}' + B_{gs}'}$

où B désigne le nombre de Biot : $B = \frac{h \Delta r}{2 \lambda_N}$,

ce qui permet d'exprimer le flux entrant en surface en fonction de T_N :

$$\frac{1}{1 + B_{rps}' + B_{gs}'} [h_{rps}' (T_{pi}' - T_N') + h_{gs}' (T_g' - T_N')] 4\pi R_g^2$$

Le flux quittant le volume v_N à travers S_{N-1} à $t + \Delta t$ est :

$$\lambda_w' S_{N-1} \frac{T_N' - T_{N-1}'}{\Delta r} = \lambda_w' (T_N' - T_{N-1}') 4\pi (N-1,5)^2 \Delta r^2$$

Le terme d'accumulation s'écrit :

$$\rho_N' C_{pN}' v_N (T_N' - T_N) / \Delta t = \rho_N' C_{pN}' (T_N' - T_N) 4\pi [(i-1)^2 + 1/12] \Delta r^3 / \Delta t$$

Les termes sources δQ_{sN} , δQ_{pN} , δQ_{gN} , δQ_{cN} et δQ_{eN} se calculent comme pour le volume v_i .

En posant : $St = \frac{1}{1 + B} \frac{h}{\rho_N C_{pN}} \frac{\Delta t}{\Delta r}$ (nombre de Stanton corrigé par B),

le bilan thermique sur le volume v_N s'écrit, après division par $4\pi \Delta r^3 \rho_N' C_{pN}'$ et regroupement des termes en T_i :

$$\begin{aligned} & -T_{N-1}' Fo_w (N-1,5)^2 + T_N' [Fo_w (N-1,5)^2 + (St_{rps} + St_{gs}) (N-0,5)^2 + (N-1)^2 + 1/12] \\ & = (St_{rps} T_{pi} + St_{gs} T_g) (N-0,5)^2 \\ & + [(N-1)^2 + 1/12] [T_N + \theta_{sN} F_{sN} + \theta_{pN} F_{pN} + \theta_{cN} F_{cN} + \theta_{eN} F_{eN}] + \frac{\delta Q_{gN}}{4\pi \Delta r^3 \rho_N' C_{pN}'} \end{aligned}$$

2^e cas : grain contre la paroi

Les échanges thermiques en surface du grain se limitent à la conduction paroi/solide (coefficient de transfert h_{cps}).

Le flux de chaleur entrant en surface à $t + \Delta t$ devient : $h_{cps}' (T_{pi}' - T_s') 4\pi R_g^2$

On définit : $St_{rps} = \frac{1}{1 + B_{cps}} \frac{h_{cps}}{\rho_N C_{pN}} \frac{\Delta t}{\Delta r}$ avec : $B_{cps} = \frac{h_{cps} \Delta r}{2 \lambda_N}$

On démontre de la même manière que précédemment que le bilan thermique sur le volume v_N s'écrit, après division par $4\pi \Delta r^3 \rho_N' C_{pN}'$ et regroupement des termes en T_N :

$$\begin{aligned}
& -T_{N-1}' Fo_w (N-1,5)^2 + T_N' [Fo_w (N-1,5)^2 + St_{cps} (N-0,5)^2 + (N-1)^2 + 1/12] \\
& = St_{cps} T_{pi} (N-0,5)^2 \\
& + [(N-1)^2 + 1/12] [T_N + \theta_{s_N} F_{s_N} + \theta_{p_N} F_{p_N} + \theta_{c_N} F_{c_N} + \theta_{e_N} F_{e_N}] + \frac{\delta Q_{g_N}}{4\pi \Delta r^3 \rho_N Cp_N}
\end{aligned}$$

3^e cas : grain au coeur de la charge

La température de la charge étant supposée uniforme, un grain n'échange pas de chaleur avec l'extérieur lorsqu'il se situe au coeur de la charge. Le bilan thermique sur le volume N correspondant à cette situation s'obtient en écrivant $St_{cps} = 0$ dans l'équation ci-dessus.

AIV.5 Bilan thermique sur le volume v_1

Le flux entrant à travers S_1 est :

$$\lambda_e S_1 \frac{T_2' - T_1'}{\Delta r} = \lambda_e (T_2' - T_1') \pi \Delta r$$

Le terme d'accumulation est :

$$\rho_1' Cp_1' v_1 \frac{(T_1' - T_1)}{\Delta t} = \rho_1' Cp_1' \frac{(T_1' - T_1)}{\Delta t} \frac{4}{3} \pi \left(\frac{\Delta r}{2}\right)^3$$

Les termes sources δQ_{s_1} , δQ_{p_1} , δQ_{c_1} et δQ_{e_1} se calculent comme pour le volume v_1 et le terme δQ_{g_1} n'existe pas.

Le bilan thermique sur le volume v_1 s'écrit, après division par $4\pi \Delta r^3 \rho_1' Cp_1'$ et regroupement des termes en T_1 :

$$T_1' (6 Fo_e' + 1) - 6 Fo_e' T_2' = T_1 + \theta_{s_1} F_{s_1} + \theta_{p_1} F_{p_1} + \theta_{c_1} F_{c_1} + \theta_{e_1} F_{e_1}$$

AIV.6 Résolution

L'écriture des bilans thermiques dans chaque volume de contrôle conduit au système d'équations suivant, où le vecteur $[T]$ des températures au temps $t + \Delta t$ est inconnu :

$$\begin{bmatrix} b_1 & c_1 \\ a_2 & b_2 & c_2 \\ & a_i & b_i & c_i \\ & & & a_N & b_N \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T_1 \\ T_2 \\ \vdots \\ T_N \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_1 \\ d_2 \\ \vdots \\ d_N \end{bmatrix}$$

avec :

$$b_1 = 1 + 6 \text{Fo}_e^{(1)}$$

$$c_1 = -6 \text{Fo}_e^{(1)}$$

$$d_1 = T_1 + \theta s_1 F_{s1} + \theta p_1 F_{p1} + \theta c_1 F_{c1} + \theta e_1 F_{e1}$$

$$a_i = -\text{Fo}_w^{(i)} (i - 1,5)^2$$

$$b_i = \text{Fo}_w^{(i)} (i - 1,5)^2 + \text{Fo}_e^{(i)} (1 - 0,5)^2 + (i-1)^2 + 1/12$$

$$c_i = -\text{Fo}_e^{(i)} (i - 0,5)^2$$

$$d_i = [(i-1)^2 + 1/12] [T_i + \theta s_i F_{s_i} + \theta p_i F_{p_i} + \theta c_i F_{c_i} + \theta e_i F_{e_i}] + \frac{\delta Q_{g_i}}{4\pi \Delta r^3 \rho_i' C_{p_i}'}$$

$$a_N = -\text{Fo}_w^{(N)} (N - 1,5)^2$$

$$b_N = \text{Fo}_w^{(N)} (N-1,5)^2 + \text{St}_s (N-0,5)^2 + (N-1)^2 + 1/12 \quad (\text{St}_s = \text{St}_{\text{tps}} + \text{St}_{\text{gs}} \text{ ou } \text{St}_{\text{cps}} \text{ ou } 0)$$

$$d_N = \text{TSt}_s (N-0,5)^2 + [(N-1)^2 + 1/12] [T_N + \theta s_N F_{s_N} + \theta p_N F_{p_N} + \theta c_N F_{c_N} + \theta e_N F_{e_N}] + \frac{\delta Q_{g_N}}{4\pi \Delta r^3 \rho_N' C_{p_N}'}$$

($\text{TSt}_s = T_{pi} \text{St}_{\text{tps}} + T_g \text{St}_{\text{gs}} \text{ ou } T_{pi} \text{St}_{\text{cps}} \text{ ou } 0$)

Ce système est résolu par itérations successives. Le vecteur [d] est calculé dans un premier temps en remplaçant les T_i' par les valeurs de T_i : le système ainsi rendu linéaire est résolu par l'algorithme TDMA (tri-diagonal matrix algorithm). Ensuite, les valeurs de T_i' obtenues à chaque itération permettent de renouveler ce calcul jusqu'à ce que l'écart entre deux itérations devienne inférieur à une valeur limite (fixée à 1 %).

Annexe V

Mise en équation du modèle de transfert thermique dans la paroi

L'équation à résoudre est celle du transport de la chaleur par conduction en coordonnées cylindriques. En considérant que la conduction de la chaleur se fait uniquement dans le sens radial et en l'absence de terme source, cette équation s'écrit de la façon suivante :

$$\rho_p C_{p_p} \left(\frac{\partial T}{\partial t} \right)_{r,t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \lambda_p \frac{\partial T}{\partial r} \right)_{r,t}$$

Les conditions limites sont les suivantes :

- pour $r = R_{pi}$ (paroi interne) :

- si la paroi est en contact avec la charge :

$$\lambda_p \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{R_{pi},t} = h_{cpc} (T(R_{pi},t) - T_s)$$

- si la paroi est en contact avec le gaz :

$$\lambda_p \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{R_{pi},t} = h_{pg} (T(R_{pi},t) - T_g) + h_{rpc} (T(R_{pi},t) - T_s) \quad \text{où } h_{pg} = h_{cpg} + h_{rpg}$$

- pour $r = R_{pe}$ (paroi externe) :

$$\lambda_p \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{R_{pe},t} = h_{pa} (T(R_{pe},t) - T_a) \quad \text{où } h_{pa} = h_{cpa} + h_{rpa}$$

La résolution numérique de cette équation s'effectue à l'aide de la méthode des volumes de contrôle dans un schéma implicite. La paroi est divisée en N_θ secteurs angulaires de N_p mailles chacun. Chaque volume possède la longueur d'une tranche de four Δx et une même épaisseur Δr_p (figure AV.1). Les paramètres thermophysiques du béton réfractaire sont considérés comme indépendants de la température et proviennent de mesures effectuées en laboratoire :

conductivité thermique :	$\lambda_p = 1,6 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$
masse volumique :	$\rho_p = 2230 \text{ kg.m}^{-3}$
chaleur spécifique :	$C_{p_p} = 1150 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$

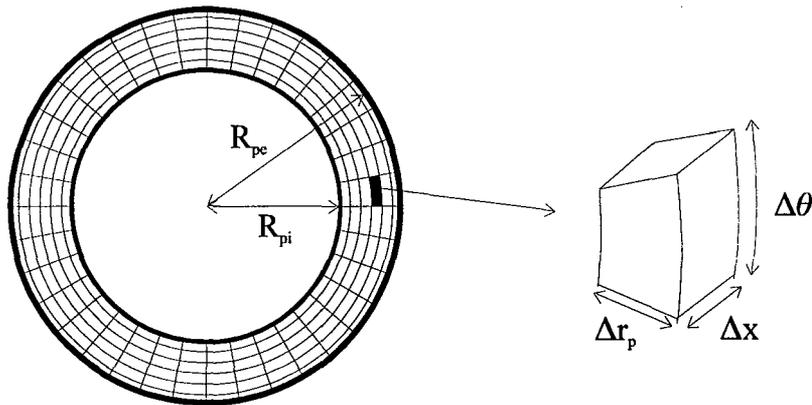


Figure AV.1 : Discretisation de la paroi en volumes de contrôle

AV.1 Bilan thermique sur le volume v_i (i compris entre 2 et N_p-1)

La surface S_i est la frontière entre les volumes v_i et v_{i+1} .

On pose : $R_i = R_{pi} + (i-0,5)\Delta r_p$

alors : $S_i = \Delta\theta \Delta x (R_i + \Delta r_p/2)$ et $S_{i-1} = \Delta\theta \Delta x (R_i - \Delta r_p/2)$

$$v_i = \Delta\theta \Delta x [(R_i + \Delta r_p/2)^2 - (R_i - \Delta r_p/2)^2] / 2 = \Delta\theta \Delta x \Delta r_p R_i$$

La chaleur entrant dans v_i à travers S_{i-1} entre t et $t + \Delta t$ s'écrit (en J) :

$$-\lambda_p S_{i-1} \frac{T_{i-1}' - T_{i-1}}{\Delta r_p} \Delta t = \lambda_p (T_{i-1}' - T_i) \Delta\theta \Delta x (R_i - \Delta r_p/2) \Delta t / \Delta r_p$$

L'apostrophe signifie que la variable est prise à l'instant $t + \Delta t$.

La chaleur sortant de v_i à travers S_i est :

$$-\lambda_p S_i \frac{T_{i+1}' - T_i'}{\Delta r_p} \Delta t = \lambda_p (T_i' - T_{i+1}') \Delta\theta \Delta x (R_i + \Delta r_p/2) \Delta t / \Delta r_p$$

Le terme d'accumulation dans v_i est :

$$\rho_p C_{p_p} v_i (T_i' - T_i) = \rho_p C_{p_p} (T_i' - T_i) \Delta\theta \Delta x \Delta r_p R_i$$

On définit le nombre de Fourier dans la paroi par : $Fo_p = \frac{\lambda_p}{\rho_p C_{p_p}} \frac{\Delta t}{\Delta r_p^2}$

Le bilan thermique dans v_i s'écrit, après division par $\rho_p C_{p_p} \Delta\theta \Delta x \Delta r_p R_i$:

$$Fo_p \left(1 - \frac{\Delta r_p}{2 R_i}\right) (T_{i-1}' - T_i') = Fo_p \left(1 + \frac{\Delta r_p}{2 R_i}\right) (T_i' - T_{i+1}') + (T_i' - T_i)$$

Le regroupement des termes en T_i donne :

$$T_{i-1}' Fo_p \left(\frac{\Delta r_p}{2 R_i} - 1\right) + T_i' (2 Fo_p + 1) - T_{i+1}' Fo_p \left(\frac{\Delta r_p}{2 R_i} + 1\right) = T_i$$

AV.2 Bilan thermique sur le volume v_{Np}

Les pertes thermiques au contact de l'air ambiant sont traduites par le coefficient de transfert h_{pa} , somme du terme de transfert par convection h_{cpa} et du terme de transfert par rayonnement h_{rpa} , avec :

$$h_{rpa} = \sigma \epsilon_{pe} (T_a^4 - T_{pe}^4) / (T_a - T_{pe})$$

où T_a est la température de l'air ambiant et T_{pe} la température en surface de la paroi ($T_{pe} \neq T_{Np}$).

Le flux de chaleur sortant en surface à $t + \Delta t$ est : $h_{pa}' (T_{pe}' - T_a) \Delta \theta \Delta x R_{pe}$

alors que le flux de conduction à travers la surface est donné par : $\lambda_p \frac{T_{Np}' - T_{pe}'}{\Delta r_p / 2} \Delta \theta \Delta x R_{pe}$.

L'égalité de ces deux flux impose : $T_{pe}' = \frac{B_{pa}' T_a + T_{Np}'}{1 + B_{pa}'}$

où B_{pa} désigne le nombre de Biot : $B_{pa} = \frac{h_{pa} \Delta r_p}{2 \lambda_p}$,

ce qui permet d'exprimer le flux sortant en surface en fonction de T_{Np} :

$$\frac{h_{pa}'}{1 + B_{pa}'} (T_{Np}' - T_a) \Delta \theta \Delta x R_{pe}$$

Le flux entrant dans le volume v_{Np} à travers S_{Np-1} à $t + \Delta t$ est :

$$-\lambda_p S_{Np-1} \frac{T_{Np}' - T_{Np-1}'}{\Delta r_p} = \lambda_p (T_{Np-1}' - T_{Np}') \Delta \theta \Delta x (R_{pe} - \Delta r_p) / \Delta r_p$$

Le terme d'accumulation s'écrit :

$$\rho_p C_{p_p} v_{Np} (T_{Np}' - T_{Np}) / \Delta t = \rho_p C_{p_p} (T_{Np}' - T_{Np}) \Delta \theta \Delta x \Delta r_p (R_{pe} - \Delta r_p / 2) / \Delta t$$

En posant : $St_{pa} = \frac{1}{1 + B_{pa}} \frac{h_{pa}}{\rho_p C_p} \frac{\Delta t}{\Delta r_p}$ (nombre de Stanton corrigé par B_{pa}),

le bilan thermique sur le volume v_{Np} s'écrit, après division par $\rho_p C_p \Delta \theta \Delta x \Delta r_p (R_{pe} - \Delta r_p / 2) / \Delta t$ et regroupement des termes en T_i :

$$\begin{aligned} -T_{Np-1} \left(FO_p \frac{R_{pe} - \Delta r_p}{R_{pe} - \Delta r_p / 2} + T_{Np} \left(FO_p \frac{R_{pe} - \Delta r_p}{R_{pe} - \Delta r_p / 2} + St_{pa} \frac{R_{pe}}{R_{pe} - \Delta r_p / 2} + 1 \right) \right) \\ = T_a St_{pa} \frac{R_{pe}}{R_{pe} - \Delta r_p / 2} + T_{Np} \end{aligned}$$

AV.3 Bilan thermique sur le volume v_1

1^{er} cas : l'élément de paroi considéré est au contact de la charge

Le flux de chaleur reçu par la paroi s'exprime par : $h_{cpc}' (T_s' - T_{pi}') \Delta \theta \Delta x R_{pi}$
où h_{cpc} désigne le coefficient de transfert par conduction entre un grain de température T_s et la surface de la paroi à la température T_{pi} .

On définit : $St_{cpc} = \frac{1}{1 + B_{cpc}} \frac{h_{cpc}}{\rho_p C_p} \frac{\Delta t}{\Delta r_p}$ avec : $B_{cpc} = \frac{h_{cpc} \Delta r_p}{2 \lambda_p}$

On démontre de la même façon qu'au § AV.2 que le flux de chaleur reçu par le volume v_1 s'écrit :

$$\frac{h_{cpc}'}{1 + B_{cpc}'} (T_s' - T_1') \Delta \theta \Delta x R_{pi}$$

Le flux sortant à travers S_2 est :

$$-\lambda_p S_2 \frac{T_2' - T_1'}{\Delta r_p} = \lambda_p (T_1' - T_2') \Delta \theta \Delta x (R_{pi} + \Delta r_p) / \Delta r_p$$

Le terme d'accumulation est :

$$\rho_p C_p v_1 (T_1' - T_1) / \Delta t = \rho_p C_p (T_1' - T_1) \Delta \theta \Delta x \Delta r_p (R_{pi} + \Delta r_p / 2) / \Delta t$$

Le bilan thermique sur le volume v_1 s'écrit, après division par $\rho_p C_p \Delta \theta \Delta x \Delta r_p (R_{pi} + \Delta r_p / 2) / \Delta t$ et regroupement des termes en T_i :

$$T_1' \left(Fo_p \frac{R_{pi} + \Delta r_p}{R_{pi} + \Delta r_p / 2} + St_{cpc} \frac{R_{pi}}{R_{pi} + \Delta r_p / 2} + 1 \right) + T_2' Fo_p \frac{R_{pi} + \Delta r_p}{R_{pi} + \Delta r_p / 2} = T_s St_{cpc} \frac{R_{pi}}{R_{pi} + \Delta r_p / 2} + T_1$$

2^e cas : l'élément de paroi considéré est au contact du gaz

Le flux de chaleur reçu par la paroi s'exprime par :

$$[h_{pg}' (T_g' - T_{pi}') + h_{rpc}' (T_s' - T_{pi}')] \Delta \theta \Delta x R_{pi}$$

où : h_{pg} désigne le coefficient de transfert de la chaleur entre le gaz à la température T_g et la surface de la paroi à la température T_{pi} : $h_{pg} = h_{cpg} + h_{rpg}$

avec h_{cpg} : coefficient de transfert par convection

h_{rpg} : coefficient de transfert par rayonnement

h_{rpc} désigne le coefficient de transfert par rayonnement entre la charge à la température T_s et la surface de la paroi.

$$\text{On définit : } St_{pg} = \frac{1}{1 + B_{pg}} \frac{h_{pg}}{\rho_p C_{pp}} \frac{\Delta t}{\Delta r_p} \quad \text{avec : } B_{pg} = \frac{h_{pg} \Delta r_p}{2 \lambda_p}$$

$$\text{et : } St_{rpc} = \frac{1}{1 + B_{rpc}} \frac{h_{rpc}}{\rho_p C_{pp}} \frac{\Delta t}{\Delta r_p} \quad \text{avec : } B_{rpc} = \frac{h_{rpc} \Delta r_p}{2 \lambda_p}$$

Le flux de conduction à travers la surface S_1 est donné par : $\lambda_p \frac{T_{pi}' - T_1'}{\Delta r_p / 2} \Delta \theta \Delta x R_{pi}$.

$$\text{L'égalité de ces deux flux impose : } T_{pi}' = \frac{B_{pg}' T_g' + B_{rpc}' T_s' + T_1'}{1 + B_{pg}' + B_{rpc}'}$$

d'où l'expression du flux à travers la surface S_1 en fonction de T_1 :

$$\frac{1}{1 + B_{pg}' + B_{rpc}'} [h_{pg}' (T_g' - T_{pi}') + h_{rpc}' (T_s' - T_{pi}')] \Delta \theta \Delta x R_{pi}$$

Le flux sortant à travers S_2 et le terme d'accumulation sont identiques au 1^{er} cas.

Le bilan thermique sur le volume v_1 s'écrit alors :

$$T_1' \left(Fo_p \frac{R_{pi} + \Delta r_p}{R_{pi} + \Delta r_p / 2} + (St_{pg} + St_{rpc}) \frac{R_{pi}}{R_{pi} + \Delta r_p / 2} + 1 \right) + T_2' Fo_p \frac{R_{pi} + \Delta r_p}{R_{pi} + \Delta r_p / 2} = (T_g St_{pg} + T_s St_{rpc}) \frac{R_{pi}}{R_{pi} + \Delta r_p / 2} + T_1$$

Le contact successif de la surface interne avec la charge puis avec la gaz provoque des oscillations en température dans la paroi. D'après les calculs, ces oscillations deviennent infimes au delà d'une épaisseur de 15 mm dans la paroi (rayon R_{pa}). Aussi, une méthode pour accélérer la convergence des calculs dans une tranche consiste à considérer que l'épaisseur de paroi comprise entre les rayons R_{pa} et R_{pe} est en régime permanent. Cela revient à répercuter instantanément entre R_{pa} et R_{pe} les changements de régime qui ont lieu entre R_{pi} et R_{pa} . Lorsque l'écart entre deux tours devient faible (inférieur à $0,5^\circ\text{C}$), le calcul complet en régime transitoire reprend.

Calcul du profil thermique entre R_{pa} et R_{pe} en régime permanent :

Le flux de chaleur dans la paroi par unité de longueur est : $-\lambda_p \frac{dT}{dr} 2\pi r$

Ce flux étant indépendant de r , l'intégration donne : $T(r) = A \ln(r) + B$ avec A, B : constantes

ainsi : $A \ln(R_{pa}) + B = T_{pa}$ et $A \ln(R_{pe}) + B = T_{pe}$

d'où : $A = (T_{pe} - T_{pa}) / \ln(R_{pe}/R_{pa})$ et $B = 0,5 (T_{pe} + T_{pa} - A \ln(R_{pe} R_{pa}))$

Sur la face externe, le flux transmis par conduction est égal à la somme des flux de convection et de rayonnement dans l'air ambiant :

$$-\lambda_p \left(\frac{dT}{dr} \right)_{R_{pe}} = h_{pa} (T_{pe} - T_a) + \sigma \varepsilon (T_{pe}^4 - T_a^4)$$

$$\text{soit : } \frac{\lambda_p}{R_{pe}} \frac{T_{pe} - T_{pa}}{\ln(R_{pe}/R_{pa})} = h_{pa} (T_{pe} - T_a) + \sigma \varepsilon (T_{pe}^4 - T_a^4)$$

Cette équation de degré 4 en T_{pe} est résolue par la méthode de Newton. La valeur de T_{pe} ainsi déterminée permet de calculer les constantes A et B puis le profil $T(r)$ entre R_{pa} et R_{pe} .



Annexe VI

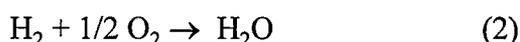
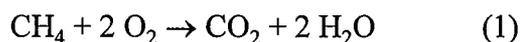
Simulation de la combustion simultanée du méthane et de l'hydrogène en réacteur parfaitement agité

Ce calcul est destiné à exprimer les avancements des réactions de combustion du méthane et de l'hydrogène, dans un réacteur parfaitement agité ayant un temps de passage τ , en fonction des concentrations d'entrée des réactifs et des paramètres cinétiques.

$$\tau = V/Q$$

où V est le volume du réacteur et Q le débit volumique des gaz en sortie du réacteur.

Réactions de combustion :



Vitesses de réaction (en mol/m³/s) :

$$r_1 = k_1 (\text{CH}_4)^{a1} (\text{O}_2)^{b1}$$

$$r_2 = k_2 (\text{H}_2)^{a2} (\text{O}_2)^{b2}$$

avec $k_i = k_{oi} \exp(-E_i/RT)$

Calcul du débit volumique des gaz en sortie (Q) :

On désigne par F_{j0} le flux molaire du constituant j à l'entrée du réacteur et par F_j le flux molaire de sortie.

Flux molaire total à l'entrée : F_{T0}

Flux molaire d'actifs à l'entrée : F_o

Rapport des inertes sur les actifs : $I = (F_{N20} + F_{CO0}) / F_o$

$$\text{d'où : } F_{T0} = F_{\text{CH4}0} + F_{\text{H2}0} + F_{\text{O2}0} + F_{\text{CO2}0} + F_{\text{H2O}0} + F_{\text{CO}0} + F_{\text{N2}0} = F_o (1 + I)$$

Titres molaires à l'entrée : $x_{\text{CH4}0} = F_{\text{CH4}0} / F_{T0}$, $x_{\text{CO}0} = F_{\text{CO}0} / F_{T0}, \dots$

On désigne par X_i l'avancement généralisé de la réaction i .

Aux avancements généralisés X_1 et X_2 les flux molaires s'écrivent :

$$F_{\text{CH4}} = F_{\text{CH4}0} - F_o X_1$$

$$F_{\text{H2}} = F_{\text{H2}0} - F_o X_2$$

$$F_{O_2} = F_{O_{2o}} - F_o [2 X_1 + 1/2 X_2]$$

$$F_{CO_2} = F_{CO_{2o}} + F_o X_1$$

$$F_{H_2O} = F_{H_{2Oo}} + F_o [2 X_1 + X_2]$$

$$F_{CO} = F_{COo}$$

$$F_{N_2} = F_{N_{2o}}$$

d'où l'expression du flux molaire total :

$$F_T = F_{N_{2o}} + F_{COo} + F_o [1 - 1/2 X_2]$$

$$F_T = F_o [1 + I - 1/2 X_2]$$

$$F_T = F_{T_o} [1 - X_2 / (1 + I) / 2]$$

Loi des gaz parfaits : $PQ = F_T R T$

$$P_o Q_o = F_{T_o} R T_o$$

$$Q / Q_o = \beta F_T / F_{T_o} \quad \text{avec} \quad \beta = \frac{T P_o}{T_o P}$$

$$\text{d'où : } Q = \beta Q_o [1 - X_2 / (1 + I) / 2]$$

Bilan en réacteur parfaitement agité :

Bilan sur CH_4 :

$$F_{CH_{4o}} - r_1 V = F_{CH_4} \quad \text{soit} \quad k_1 C_{CH_4}^{a1} C_{O_2}^{b1} V = F_o X_1$$

Bilan sur H_2 :

$$F_{H_{2o}} - r_2 V = F_{H_2} \quad \text{soit} \quad k_2 C_{H_2}^{a2} C_{O_2}^{b2} V = F_o X_2$$

d'où le système non linéaire de deux équations à deux inconnues :

$$\frac{X_1}{\tau} = \frac{k_1 \left(\frac{F_o}{\beta Q_o} \right)^{a1+b1-1} (x_{CH_{4o}} (1+I) - X_1)^{a1} \left(x_{O_{2o}} (1+I) - 2 X_1 - \frac{1}{2} X_2 \right)^{b1}}{\left(1 - \frac{X_2}{2(1+I)} \right)^{a1+b1-1}}$$

$$\frac{X_2}{\tau} = \frac{k_2 \left(\frac{F_o}{\beta Q_o} \right)^{a2+b2-1} (x_{H_{2o}} (1+I) - X_2)^{a2} \left(x_{O_{2o}} (1+I) - 2 X_1 - \frac{1}{2} X_2 \right)^{b2}}{\left(1 - \frac{X_2}{2(1+I)} \right)^{a2+b2-1}}$$

Annexe VII

Données du modèle de four tournant

Géométrie du four

56	Longueur du four (m)	(FL)
1,4	Rayon intérieur du four (m)	(Ri)
1,6	Rayon extérieur du four (m)	(Ro)
0,6	Hauteur du diaphragme coté charbon (m)	(DIAe)
0,12	Hauteur du diaphragme coté coke (m)	(DIAs)
2,29	Pente du four (deg)	(alphaD)

Paramètres de fonctionnement

1,0	Vitesse de rotation (tr/min)	(W)
-6	Température ambiante (C)	(To)
5	Température initiale des grains (C)	(TINI)
4,3 10 ⁻²	Humidité dans le charbon (-)	(pcmHUM)
2,5	Débit d'eau d'extinction (m ³ /h)	(Qveau)
52,8	Début de l'extinction (m)	(xdeb)
55,3	Fin de l'extinction (m)	(xfin)
9,86	Débit d'air (Nm ³ /s)	(Qair)

Propriétés du charbon

10,0 10 ⁻³	Rayon des particules (m)	(Rg)
37	Angle de repos dynamique du charbon (deg)	(betaD)
19,5 10 ⁻²	Titre massique en goudrons dans le charbon (-)	(pcmGOU)
5,8 10 ⁻²	Titre massique en eau de constitution dans le charbon (-)	(pcmH2O)
7,3 10 ⁻²	Titre massique de gaz (CH ₄ ,CO,CO ₂ ,H ₂) dans le charbon	(pcmGaz)
12,8 10 ⁻²	Titre molaire en CH ₄ du gaz des matières volatiles (-)	(pcCH ₄)
6,5 10 ⁻²	Titre molaire en CO du gaz des matières volatiles (-)	(pcCO)
1,8 10 ⁻²	Titre molaire en CO ₂ du gaz des matières volatiles (-)	(pcCO ₂)
70,2 10 ⁻²	Titre molaire en H ₂ du gaz des matières volatiles (-)	(pcH ₂)

La chaleur spécifique, la conductivité thermique et la masse volumique du charbon interviennent sous forme de fonctions de la température.

Transferts de chaleur

0,05	Contribution des suies à l'émissivité des gaz (-)	(epsi)
0,9	Emissivité du charbon (-)	(epss)
0,9	Emissivité de la paroi intérieure (-)	(epsp)
$1,25 \cdot 10^3$	Masse volumique du charbon sec (kg/m ³)	(ROcha)
$7,5 \cdot 10^2$	Masse volumique apparente du charbon sec (kg/m ³)	(ROapp)
$3,0 \cdot 10^5$	Enthalpie des réactions de pyrolyse (J/kg de charbon)	(DHp)
$2,27 \cdot 10^6$	Enthalpie de vaporisation de l'eau (J/kg)	(DHs)
$2,4 \cdot 10^6$	Enthalpie de craquage des goudrons (J/mol)	(DHc)
10	Coef de transfert par convection gaz/grain (W/m ² /K)	(Hcgs)
15	Coef de transfert par convection paroi/gaz (W/m ² /K)	(Hcgp)
30	Coef de transfert par convection paroi/grain (W/m ² /K)	(Hcps)
17	Coef de transfert par convection paroi/air ambiant	(Hcpa)
1,60	Conductivité thermique du béton (W/m/K)	(Dlamp)
$2,23 \cdot 10^3$	Masse volumique du béton (kg/m ³)	(RAUp)
$1,15 \cdot 10^3$	Capacité calorifique du béton (J/kg/K)	(Cpp)

Données cinétiques

3,110	Facteur de fréquence réaction de séchage (s-1)	(dk0S)
$2,770 \cdot 10^4$	Energie d'activation réaction de séchage (J/mol)	(ES)
$8,850 \cdot 10^5$	Facteur de fréquence dégazage goudrons (s-1)	(dk0(1))
$1,238 \cdot 10^5$	Energie d'activation dégazage goudrons (J/mol)	(E(1))
1,100	Facteur de fréquence dégazage H ₂ O (s-1)	(dk0(2))
$5,030 \cdot 10^4$	Energie d'activation dégazage H ₂ O (J/mol)	(E(2))
$2,787 \cdot 10^1$	Facteur de fréquence dégazage CH ₄ (s-1)	(dk0(3))
$7,243 \cdot 10^4$	Energie d'activation dégazage CH ₄ (J/mol)	(E(3))
$3,259 \cdot 10^1$	Facteur de fréquence dégazage CO (s-1)	(dk0(4))
$7,867 \cdot 10^4$	Energie d'activation dégazage CO (J/mol)	(E(4))
1,120	Facteur de fréquence dégazage CO ₂ (s-1)	(dk0(5))
$4,935 \cdot 10^4$	Energie d'activation dégazage CO ₂ (J/mol)	(E(5))
$3,164 \cdot 10^2$	Facteur de fréquence dégazage H ₂ (s-1)	(dk0(6))
$1,080 \cdot 10^5$	Energie d'activation dégazage H ₂ (J/mol)	(E(6))

La cinétique de combustion du coke intervient sous la forme d'un sous-programme.

Discrétisation, Précision du calcul

200	Nombre de mailles dans le grain	(NRg)
-----	---------------------------------	-------

200	Nombre de pas sur la circonférence de la paroi	(Nteta)
250	Nombre de mailles dans la paroi	(NRp)
0,2	Longueur d'une tranche (m)	(DL)
0,02	Pas de temps pour la première phase (sur le talus) (s)	(Dt1)
1,432	Rayon de la couche "active " de la paroi (m)	(Ra)
0,05	Précision du calcul pour la périodicité dans la paroi (°C)	(preci)

Initialisation

13	Débit volumique de gaz côté charbon (Nm ³ /s)	(Deb)
890	Température sortie gaz (C)	(Tgaz(1))
740	Température paroi interne initiale (C)	(Tp1ini)
166	Température paroi externe initiale (C)	(TpNini)
22	Débit de charbon approximatif (t/h)	(Qsini)
2,5	Estimation de la combustion du lit (%)	(Comblit)

Annexe VIII

Caractéristiques du charbon La Houve

Taux de matières volatiles :	35 à 37 % s/sec
Taux de cendres:	4,5 à 5,5 % s/sec
Pouvoir calorifique supérieur :	33320 kJ/kg s/sec
Pouvoir calorifique inférieur :	32150 kJ/kg s/sec

Composition élémentaire :

C	80,4 % s/sec
H	5,2 % s/sec
O	7,3 % s/sec
S	0,90 % s/sec
N	1,07 % s/sec
Cl	0,40 % s/sec

Indice de gonflement :	1
Indice d'agglutination ROGA :	67
P.R.V. en % :	0,82
écart type	0,08

Classification internationale :	633
---------------------------------	-----

**AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE
DE LORRAINE**

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Monsieur FLAMANT Gilles, Directeur de Recherche CNRS, Institut
de Science et Génie des Matériaux et Procédés, Font Romeu,
Monsieur MARTIN Gérard, Ingénieur de Recherche, Institut Français
du Pétrole, Rueil Malmaison.**

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur LEBAS Etienne

à soutenir devant l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

"Etude et modélisation de la pyrolyse du charbon en four tournant".

en vue de l'obtention du titre de :

**DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE
LORRAINE**

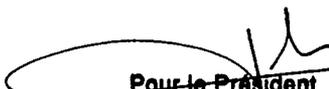
Spécialité : **"GENIE des PROCÉDES"**

**Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois**

Fait à Vandoeuvre le, 7 Novembre 1995

Le Président de l'INPL.,

M. LUCIUS


Pour le Président
Le Vice-Président



J. Ch. CHEVRIER



