

Etude hydrodynamique d'une unité pilote de Gazéification de biomasse en Lit Fluidisé Circulant d'olivine

Sébastien PECATE^{1*}, Mathieu MORIN¹, Mehrdji HEMATI¹, Yilmaz KARA², Sylvie VALIN³

¹Université de Toulouse, INPT, Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse
4, allée Emile Monso – 31432 Toulouse cedex 4 – BP 84234

²Centre de Recherche et d'Innovation Gaz et Energies Nouvelles (CRIGEN)
361, avenue du Président Wilson – BP33 – 93211 Saint Denis la Plaine Cedex Groupe ENGIE

³CEA Laboratoire d'Innovation pour les Technologies des Energies nouvelles et les Nanomatériaux (DRT/LITEN) 17, rue des Martyrs – 38054 Grenoble cedex 9

*(auteur correspondant : sebastien.pecate@ensiacet.fr)

Résumé - Ce travail, réalisé dans le cadre du projet européen « GAYA » et financé par l'ADEME, concerne l'étude hydrodynamique d'un pilote de lit fluidisé circulant de 60 kWth construit au Laboratoire de Génie Chimique à Toulouse pour la gazéification de la biomasse. L'étude réalisée entre 20 et 950 °C a conduit à la détermination de l'influence de la température et de la granulométrie de particules solides, ainsi que de la nature du gaz de fluidisation (air ou vapeur d'eau) sur la vitesse et le degré de vide au minimum de fluidisation et sur l'expansion moyenne du lit fluidisé. En outre, l'étude a permis de cerner les paramètres opératoires clés du procédé et de mettre en évidence leurs actions sur le débit de circulation de particules solides.

1. Introduction

Cette étude est réalisée dans le cadre du projet GAYA et soutenu par l'ADEME. Ce programme de recherche dont la coordination est assurée par le Centre de Recherche et Innovation Gaz et Énergies Nouvelles (CRIGEN) d'ENGIE associe onze centres de recherche universitaire et industriel. L'objectif général de ce projet est la construction d'un procédé de démonstration à l'échelle préindustrielle permettant de produire du biométhane aussi appelé **Gaz Naturel vert** à partir de la biomasse. La production du biométhane est assurée par la transformation thermochimique de cette biomasse par vapogazéification en un gaz de synthèse, composé majoritairement d'hydrogène, de monoxyde de carbone et de méthane, valorisable après une transformation ultime sous forme de bio-méthane par la méthanation. Le gaz de synthèse produit doit satisfaire les critères suivants : faible quantité de gaz inertes, faible teneur en soufre (< 0,1 ppm) et un rapport molaire H₂/CO proche du rapport stœchiométrique de la méthanation.

Le jeu de réactions de transformation thermochimique de la biomasse (pyrolyse et gazéification) est globalement endothermique. Il est donc nécessaire de fournir de la chaleur pour porter les agents gazéifiants et la biomasse à la température opératoire et entretenir les réactions.

Le procédé retenu est celui du lit fluidisé circulant où la combustion ex situ d'une certaine quantité du char produit par la pyrolyse de la biomasse permet de fournir l'énergie nécessaire à la gazéification. Il comprend deux réacteurs séparés [1-2]. La transformation de la biomasse se fait dans un premier réacteur appelé « gazéifieur ». Le comportement hydrodynamique de ce réacteur autorise le soutirage en continu de la phase solide constituée d'un mélange de particules de média caloporteur et du char non consommé par la vapogazéification vers un second réacteur à lit entraîné appelé "combusteur". Dans ce dernier, la combustion des particules de char par de

l'air permet l'échauffement des particules de média à une température comprise entre 880 et 950 °C. Le média ainsi préchauffé est recyclé au sein du réacteur de gazéification. Les deux réacteurs forment un Lit Fluidisé Circulant dans lequel circule en continu le média caloporteur.

La performance de ce procédé est fortement dépendante de l'équilibre thermique entre la gazéification et la combustion. Cet équilibre est conditionné par l'écart de températures mais surtout par le débit de média caloporteur solide circulant entre les deux pôles de réaction.

Les travaux antérieurs réalisés au sein de notre équipe [3], portant sur l'impact des paramètres du procédé sur le contrôle du débit de circulation de média caloporteur (sable, $d_p = 290 \mu\text{m}$) à température ambiante, ont montré que les paramètres prépondérants permettant de contrôler le débit de circulation du média sont : le débit et la position d'injection de l'air secondaire de combustion ainsi que la masse totale de solide (inventaire). Cette étude, complétant celle déjà réalisée, est divisée en deux parties. La première partie vise à déterminer l'influence de paramètres opératoires tels que la température du lit, la taille des particules et la nature du gaz de fluidisation sur les grandeurs caractéristiques de fluidisation du média (olivine) telles que : la vitesse et le degré de vide au minimum de fluidisation ainsi que l'expansion moyenne du lit. La seconde partie consiste à étudier l'influence de la température du lit, du débit d'air secondaire de combustion et de l'inventaire de média dans le pilote sur le débit de circulation de l'olivine.

2. Présentation du pilote expérimental

Un pilote de production de gaz de synthèse par vapogazéification de la biomasse en lit fluidisé circulant a été conçu et mis au point au Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse (Figure 1). Il comprend un réacteur contenant un lit dense de média caloporteur fluidisé par de la vapeur d'eau (particules d'olivine). La biomasse est introduite en continu dans ce réacteur, maintenu entre 800 et 850 °C. La transformation thermochimique de cette biomasse conduit à la production de gaz de synthèse, récupéré en tête du réacteur. Les particules solides du lit fluidisé, composé alors de média caloporteur et de char, sont soutirées en continu via une déverse vers un autre réacteur à lit transporté, appelé « Combusteur ». Dans ce deuxième réacteur, la combustion de char permet l'échauffement du média caloporteur. En sortie de ce réacteur, les particules de média sont séparées des produits de combustion, et recyclées grâce à un standpipe vers le gazéifieur. L'alimentation en air chaud du combusteur se fait par deux circuits. Le premier, dit « air primaire », permet de maintenir en fluidisation un lit de particules de média à la base du combusteur. Son rôle est d'éviter la ségrégation des particules de char à la base de combusteur. Le deuxième circuit, dit « air secondaire », est constitué d'une canne d'injection amovible dont la position du sommet, par rapport au distributeur, fixe la hauteur du lit fluidisé dense. Dans cette étude, la hauteur de cette canne d'injection est fixée à 15 cm. Cette canne, alimentée par de forts débits d'air, assure le transport des particules solides.

Par ailleurs, le gazéifieur et le combusteur sont entourés par deux coquilles chauffantes, ayant respectivement 15 et 5,7 kW de puissance électrique. Elles sont utilisées pour le démarrage de l'installation d'une part, et la réalisation d'essais hydrodynamiques à chaud d'autre part. Les températures du gazéifieur et du combusteur peuvent être régulées d'une manière indépendante grâce à deux régulateurs de type PID qui commandent la puissance de chauffe des fours. De plus, le pilote est équipé de capteurs de pressions différentielles et de température permettant de suivre les évolutions de ces paramètres à différents points de l'installation. Enfin, le débit de solide est mesuré grâce à une sonde à micro-ondes, installée sur le standpipe à 50 cm de la base du cyclone (Figure 1).

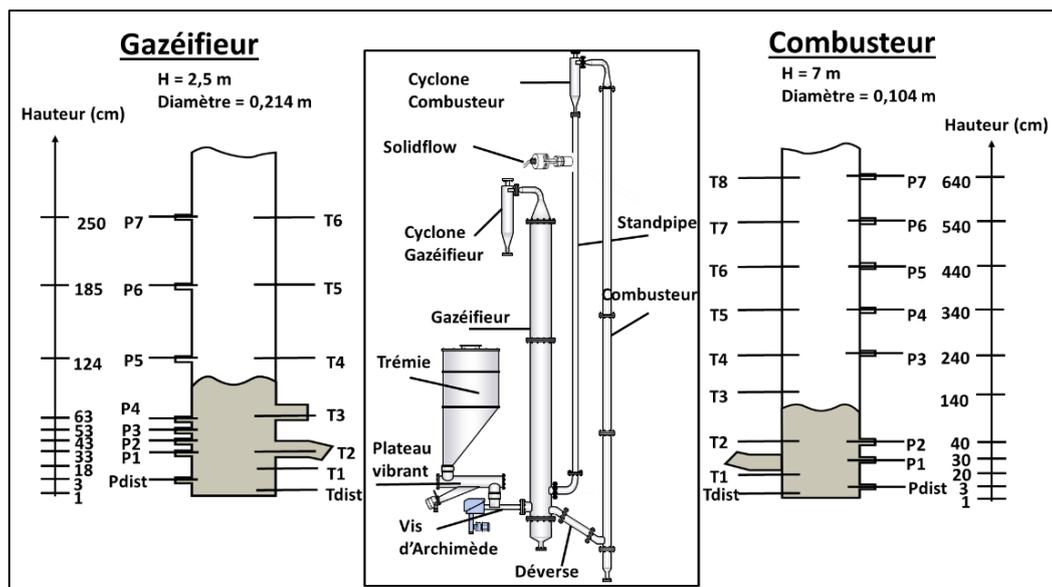


Figure 1 : Schémas du lit fluidisé circulant, du gazéifieur et du combusteur

3. Propriétés des particules solides employées

Les essais ont été réalisés avec trois lots de particules d'olivine fournies par la société autrichienne Magnolithe GmbH. Chacun de ces lots a préalablement subi une étape de définage en lit fluidisé, à température ambiante, pendant 20 h et une étape de calcination, à 850 °C, pendant 4 h. Au cours de ces étapes, réalisées dans le gazéifieur, la vitesse de gaz est maintenue à 8 fois la vitesse minimale de fluidisation (U_{mf}) à la température considérée. Par ailleurs, la distribution granulométrique, les différentes masses volumiques, la porosité interne et le facteur de forme de ces particules ont été déterminées respectivement avec un Granulomètre Laser MS2000, un Porosimètre à Mercure, un Pycnomètre à Hélium et un Morphomètre G3S. Les résultats de ces analyses sont regroupés dans le Tableau 1.

Lots d'olivine	d10	d50	d90	d3/2	d4/3
Lot [200-300 μm]	188 μm	300 μm	476 μm	282 μm	318 μm
Lot [300-400 μm]	337 μm	483 μm	689 μm	464 μm	501 μm
Lot [400-600 μm]	508 μm	709 μm	1015 μm	689 μm	741 μm
$\rho_P = 3000 \text{ kg/m}^3$ $\rho_S = 3265 \text{ kg/m}^3$ $\chi = 8 \%$ $\phi = 0,85$					

Tableau 1 : Propriétés physiques des particules d'olivine

4. Comportement hydrodynamique du gazéifieur à haute température

Cette partie de l'étude concerne l'influence de la température du lit, de la taille des particules et de la nature du gaz de fluidisation (air/vapeur d'eau) sur la vitesse et le degré de vide au minimum de fluidisation ainsi que sur l'expansion moyenne du lit fluidisé dense de particules d'olivine.

4.1. Détermination de la vitesse minimale de fluidisation et du degré de vide du lit fluidisé dense

Plusieurs méthodes ont été utilisées pour la détermination de la vitesse et du degré de vide au minimum de fluidisation ainsi que de l'expansion d'un lit de particules. Celles-ci sont

largement décrites dans les travaux de Tannous [4]. La vitesse minimale de fluidisation est déterminée par :

- l'établissement du diagramme de fluidisation ;
- l'évolution du gradient de perte de charge partielle en fonction de la vitesse de gaz ;
- l'évolution des fluctuations de la chute de pression en régime établi en fonction de la vitesse de gaz.

Notons que ces méthodes conduisent à des résultats comparables avec un écart relatif ne dépassant jamais 10 %. En ce qui concerne le degré de vide du lit, il est obtenu par le suivi du profil de pressions pariétales le long du réacteur. Celui-ci permet d'accéder à l'évolution de la hauteur du lit fluidisé dense en fonction de la vitesse. Connaissant la masse totale d'olivine présente dans le lit, il est alors possible de calculer le degré de vide :

$$\varepsilon = 1 - \frac{m_P}{A_c \cdot H \cdot \rho_P} \quad (1)$$

4.2. Influence des paramètres opératoires sur la vitesse minimale de fluidisation

La Figure 2a représente l'influence de la température du lit sur la vitesse minimale de fluidisation de trois lots d'olivine testés. Elle montre que pour une même taille de particule, la vitesse minimale de fluidisation diminue pour une température croissante. De plus, pour une même température, la vitesse minimale de fluidisation diminue pour des tailles de particules décroissantes.

En ce qui concerne la nature de l'agent de fluidisation (air et vapeur d'eau), les résultats ont montré que la vitesse minimale de fluidisation dépend fortement des propriétés physiques de celui-ci (masse volumique et viscosité). Une réduction de ces paramètres augmente la vitesse minimale de fluidisation : la vitesse minimale de fluidisation obtenue avec de la vapeur d'eau est supérieure à celle obtenue avec de l'air.

Les valeurs d' U_{mf} déterminées expérimentalement sur la quarantaine d'essais réalisés ont été comparées aux valeurs prédites par une vingtaine de corrélations de la littérature. Le principal résultat de cette comparaison est qu'aucune corrélation ne permet d'estimer exactement les valeurs des vitesses minimales de fluidisation déterminées expérimentalement. Les corrélations qui s'en approchent le plus présentent un écart relatif compris entre - 29 et 25 %. C'est pourquoi une corrélation est proposée afin d'estimer la vitesse minimale de fluidisation de particules d'olivine en fonction de la température, de la taille des particules et de la nature du gaz de fluidisation.

$$Re_{mf} = (20,32^2 + 0,031 \cdot Ar)^{0,5} - 20,32 \quad (2)$$

$$\text{avec : } Re_{mf} = \frac{\rho_f \cdot U_{mf} \cdot d_p}{\mu_f} \quad \text{et : } Ar = \frac{g \cdot d_p^3 \cdot \rho_f \cdot (\rho_p - \rho_f)}{\mu_f^2} \quad (3)$$

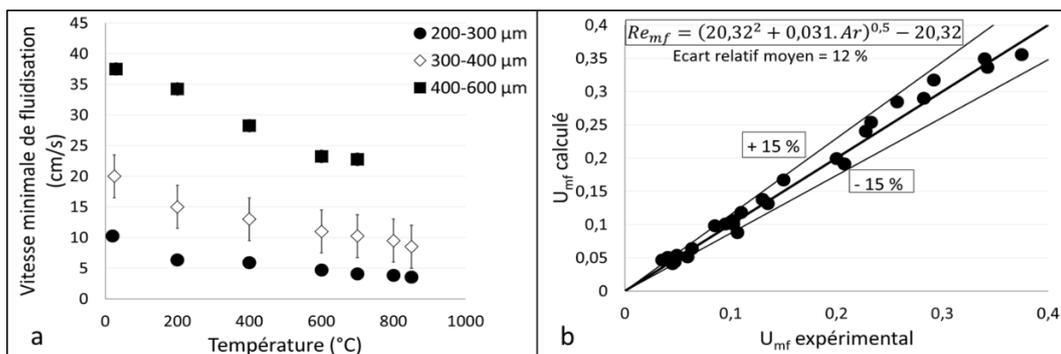


Figure 2 : Effet des paramètres opératoires sur l' U_{mf} et proposition d'une corrélation

où Re_{mf} , Ar , ρ_f , μ_f , d_p , et ρ_p sont respectivement le nombre de Reynolds au minimum de fluidisation, le nombre d'Archimède, la masse volumique et la viscosité du fluide ainsi que le diamètre et la masse volumique des particules. Cette corrélation permet de prédire les résultats expérimentaux avec un écart relatif moyen de 12 % (Figure 2b).

4.3. Influence des paramètres opératoires sur le degré de vide

A partir de l'ensemble des essais réalisés entre 20 et 850 °C, et pour les trois lots d'olivine utilisés, les conclusions suivantes peuvent être tirées :

- le degré de vide au minimum de fluidisation est pratiquement indépendant dans les plages de variation de paramètres étudiées. Sa valeur moyenne est de 0,55 ;
- l'expansion moyenne du lit augmente avec l'excès de gaz par rapport au minimum de fluidisation, $U-U_{mf}$, et ce quel que soit le diamètre des particules employées et la température du lit ;
- l'expansion du lit est peu affectée par la température et le diamètre des particules, pour un même excès de gaz, $U-U_{mf}$.

Les valeurs de ε déterminées expérimentalement sur la quarantaine de série d'essais réalisées ont été comparées aux valeurs prédites par cinq corrélations de la littérature. Un écart relatif supérieur à 20 % est toujours constaté entre les valeurs prédites par ces corrélations et les valeurs expérimentales. C'est pourquoi une corrélation est proposée afin de calculer l'expansion moyenne d'un lit fluidisé dense d'olivine en fonction de la température, de la taille des particules et de la nature du gaz de fluidisation :

$$\frac{\varepsilon}{\varepsilon_{mf}} = 1,0394 \cdot \left(\frac{U - U_{mf}}{U_{mf}} \right)^{0,026} \cdot Ar^{0,006} \quad (5)$$

où ε_{mf} , ε , U , U_{mf} et Ar sont respectivement le degré de vide au minimum de fluidisation, le degré de vide du lit fluidisé, la vitesse du fluide, la vitesse du fluide au minimum de fluidisation et le nombre d'Archimède. L'écart relatif moyen entre les valeurs calculées et déterminées expérimentalement de ε est de 1 %, comme l'illustre la Figure 3.

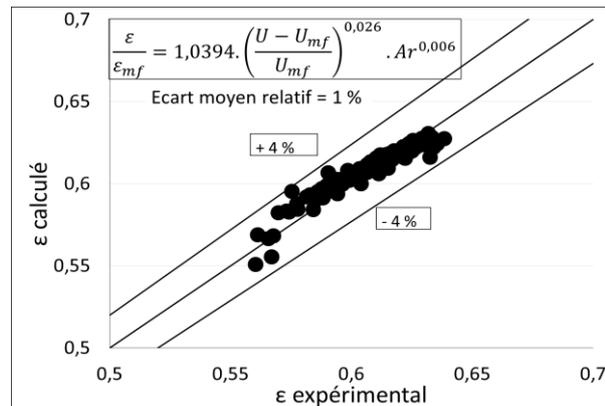


Figure 3 : *Ecart entre les valeurs expérimentales et calculées avec la corrélation proposée*

5. Etude hydrodynamique du lit fluidisé circulant à haute température

Comme précisé auparavant, l'efficacité du procédé dépend directement de l'équilibre thermique entre les deux réacteurs, c'est-à-dire de l'écart de température entre le gazéifieur et le combuteur. Or ce-dernier dépend principalement du débit de circulation de média caloporteur. Ainsi, il apparaît indispensable d'identifier les paramètres ayant une influence primordiale sur le débit de circulation. Les paramètres du procédé sont : l'inventaire de particules m_p , la température T° , la vitesse de gaz au gazéifieur U_G , les vitesses d'air primaire et secondaire U_I et U_{II} au combuteur, la position de la canne d'injection d'air secondaire H_{II} et la vitesse de gaz au standpipe U_S . L'objectif de ce travail est donc d'étudier l'influence de l'ensemble des paramètres de contrôle du procédé sur le débit de circulation de média. Les essais ont été réalisés avec le lot d'olivine [200 – 300 μm]. Dans le Tableau 2 est regroupée la plage de variation des paramètres retenus dans cette étude. Il est à préciser que la valeur de niveau d'injection d'air secondaire (hauteur de la canne d'injection H_{II}) est fixée à 15 cm, en se

basant sur les conclusions des travaux antérieurs. Par ailleurs, lors de chaque essai, grâce au système de régulation de température, la température au gazéifieur et au combusteur est maintenue à des valeurs quasi-identiques. Les vitesses caractéristiques mentionnées dans le Tableau 2 sont la vitesse minimale de fluidisation U_{mf} et la vitesse terminale de chute libre U_t .

	m_p (kg)	U_G (U/U_{mf})	U_I (U/U_{mf})	U_{II} (U/U_t)	H_{II} (cm)	U_s (U/U_{mf})	T (°C)
Référence	40	4	4	2,4	15	8	500
Gamme	40 – 60	1 – 8	1 – 8	0,5 – 3	15	1 – 9	20 - 500

Tableau 1 : Conditions opératoires des essais de circulation

5.1. Présentation des résultats expérimentaux

A partir de l'ensemble des résultats obtenus, il a été conclu que pour une température fixée :

- les débits de gaz au gazéifieur et au standpipe n'ont aucune influence sur le débit de circulation de solides ;
- l'augmentation du débit d'air primaire au combusteur conduit à un accroissement du débit de circulation de 30 %. Cependant, cette augmentation conduit à une augmentation notable de la perte de charge au combusteur (perte de charge du distributeur). Ainsi, la valeur de cette grandeur est fixée à $U_I = 4.U_{mf}$.
- les paramètres clés sont le débit d'air secondaire et l'inventaire de solides.

5.2. Influence de la vitesse d'air secondaire au combusteur U_{II}

Dans ce paragraphe sont présentés les résultats d'un essai type réalisé à 500 °C, pour un inventaire total de 40 kg. La vitesse d'air secondaire U_{II} , calculée à la température du combusteur, a été faite variée entre 1,5 et 4,7 m/s. Les Figures 4a et 4b représentent l'influence de ce paramètre sur le débit massique de solide circulant ainsi que sur la répartition de l'inventaire solide dans le gazéifieur et le combusteur. A partir des fluctuations temporelles du débit de solide, son écart-type normé a été calculé pour les différentes vitesses U_{II} . Ces résultats sont aussi présentés sur la Figure 4a. Les résultats montrent que :

- pour des vitesses inférieures à 2,6 m/s (zone 1), les inventaires solides au gazéifieur et au combusteur restent constants. Par ailleurs, un très faible débit de circulation de solides est noté. Dans cette plage de vitesse, le combusteur est constitué d'un « lit fluidisé dense » de grande hauteur. Les faibles valeurs de débits enregistrées sont attribuées à l'élutriation des fines particules présentes dans le lot de solides ;
- pour des vitesses comprises entre 2,6 et 3,4 m/s (zone 2), une augmentation du débit de circulation de solides de 50 à 200 kg/h et une élévation brutale de ses fluctuations normées sont observées. Sachant que la force motrice de la circulation des solides est directement liée à la différence de pression de part et d'autre de la déverse, ce phénomène doit conduire à une augmentation de la différence d'inventaires entre les deux réacteurs, comme le montre la Figure 5b. Dans cette zone, le transport de solides se fait de manière irrégulière et le comportement hydrodynamique du combusteur est un état intermédiaire entre « lit fluidisé dense » et « lit transporté » ;
- pour des vitesses supérieures à 3,4 m/s (zone 3), une augmentation brutale du débit de solides pour atteindre une valeur palier est constatée. Concernant la différence d'inventaires entre les deux réacteurs, elle suit la même allure. Quant aux fluctuations de débit de circulation de solides, elles diminuent rapidement puis se stabilisent. Cette troisième zone est considérée comme une zone de fonctionnement stable. La

stabilisation du débit de solide et de la différence d'inventaires entre les deux réacteurs indique que pour les conditions opératoires retenues, la hauteur de lit dense dans le combustible atteint sa valeur limite (hauteur de la canne d'injection d'air secondaire). Il est à noter que pour de très fortes vitesses U_{II} , une faible diminution du débit de solides est observée, dont l'origine est attribuée à l'augmentation de la perte de charge du cyclone qui diminue la force motrice entre les deux réacteurs.

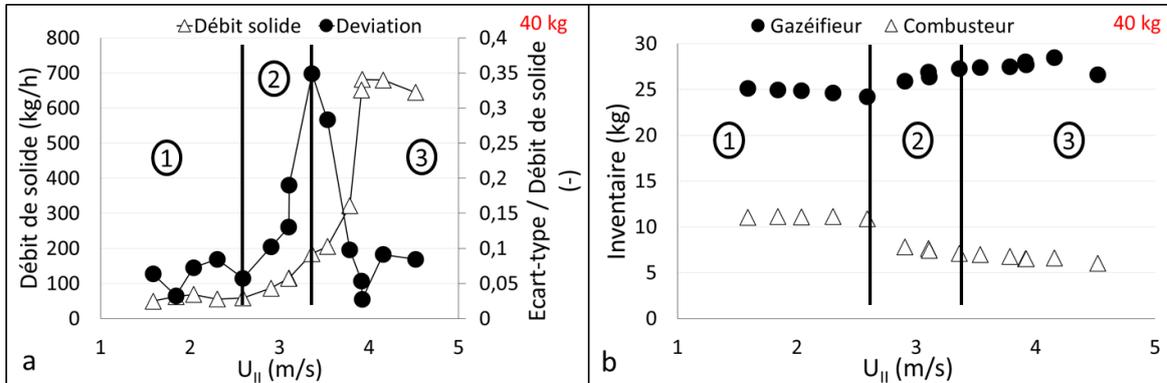


Figure 4 : Effet de la vitesse d'air secondaire sur le débit et les fluctuations normées de débit de circulation de solides (a), ainsi que sur les inventaires de solides dans le gazéifieur et le combustible (b) ($m_p = 40$ kg, $T = 500$ °C)

5.3. Influence de l'inventaire sur la circulation des solides

L'influence de ce paramètre est étudiée à travers des essais réalisés à 500 °C, pour des inventaires totaux de 40 et 60 kg. Sur les Figures 5a et 5b est représenté l'effet de l'inventaire total sur les évolutions de débit de circulation de solides et des différences d'inventaires entre les deux réacteurs en fonction de la vitesse U_{II} . Les mêmes évolutions déjà décrites dans le paragraphe précédent sont remarquées. L'augmentation du débit de solides avec l'inventaire total peut être directement liée à l'accroissement de la différence d'inventaires, $m_{pG} - m_{pC}$, entre les deux réacteurs, agissant comme force motrice de la circulation.

5.4. Influence de la température sur la circulation des solides

La Figure 6 illustre l'évolution du débit de circulation de solides en fonction de la consommation d'air au combustible (définie comme étant le débit d'air total au combustible, primaire + secondaire, rapporté à la section du réacteur), pour un inventaire de 60 kg à 20, 300 et 500 °C. Il apparaît que l'augmentation de la température permet de réduire la consommation d'air au combustible pour un même débit solide.

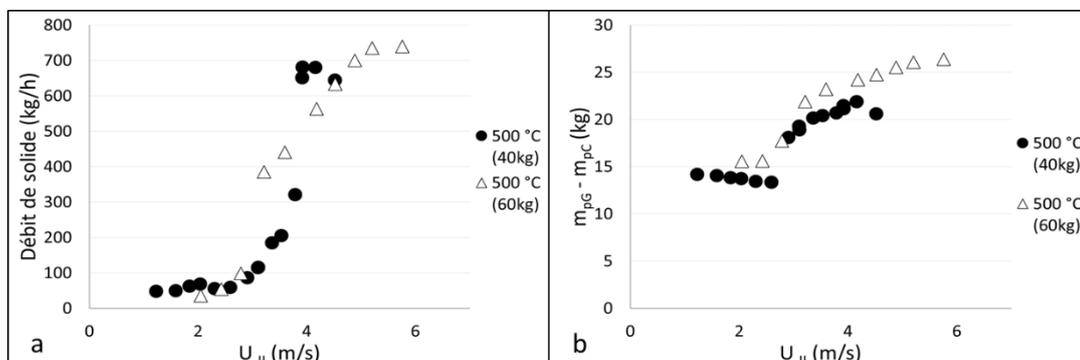


Figure 5 : Effet de l'inventaire total sur le débit et les fluctuations normées de débit de circulation de solides (a), ainsi que sur la différence d'inventaire entre les deux réacteurs (b) ($m_p = 40$ et 60 kg, $T = 500$ °C)

6. Conclusion

A partir de l'ensemble des données expérimentales obtenues entre 20 et 850 °C, des corrélations adimensionnelles ont été proposées pour l'estimation de la vitesse minimale de fluidisation de l'olivine et l'expansion de lit fluidisé de ces particules. Ces lois peuvent être utiles pour le dimensionnement de gazéfieurs industriels. De plus, les essais hydrodynamiques réalisés en lit fluidisé circulant entre 20 et 500 °C ont montré que les paramètres clés permettant le contrôle du débit de circulation de solides sont l'inventaire total, la vitesse d'air secondaire au combusteur et la température des lits fluidisés dans chacun des réacteurs. Une augmentation de ces paramètres conduit à un débit de circulation plus grand. Par ailleurs, à partir des fluctuations normées de débit de solides, les différents régimes hydrodynamiques dans le combusteur ont été identifiés.

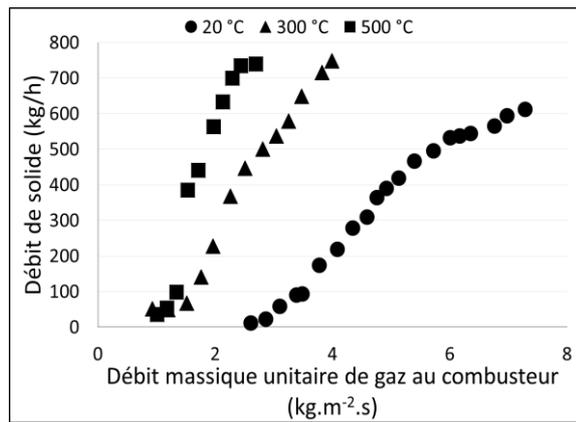


Figure 6 : Effet de la température sur le débit de circulation de solides ($m_p = 60$ kg)

Références

(La liste des références bibliographiques étant limité par le nombre de pages, les auteurs tiennent à préciser qu'une bibliographie complète sur les lits fluidisés denses, ainsi que sur les lits fluidisés circulant, est disponible dans les travaux de thèse anciennement réalisés au sein de notre équipe [3-6].)

- [1] C. M. van der Meijden, H. J. Veringa, B. J. Vreugdenhil, B. van der Drift, Bioenergy ii : scale-up of the milena biomass gasification process, *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, 7-1 (2009)
- [2] F. Kirnbauer, H. Hofbauer, Investigations on bed material changes in a dual fluidized bed steam gasification plant in Gussing, Austria, *Energy and Fuels*, 25-8 (2011), 3793-3798
- [3] M. Detournay, « Vapogazéification de la biomasse en Lit Fluidisé Circulant : Elaboration des outils théoriques et expérimentaux », Thèse de doctorat en Génie des Procédés, INPT, 2011
- [4] K. Tannous, « Contribution à l'étude hydrodynamique des lits fluidisés de grosses particules », Thèse de doctorat en Génie des Procédés, INPT, 1993.
- [5] N. Fatah, « Fluidisation de grosses particules à haute température hydrodynamique et transferts thermiques », Thèse de doctorat en Génie des Procédés, INPT, 1991.
- [6] G. Petit, « Contribution à l'étude expérimentale et numérique du comportement des phases gaz et solide dans un lit fluidisé circulant: application au procédé FCC », Thèse de doctorat en Génie des Procédés, INPT, 2005.