



HAL
open science

GAZEIFICATION DE CHARBON AVEC DE LA VAPEUR D'EAU A L'AIDE DE CHALEUR DE SOURCE NUCLEAIRE

Abdelhamid Belghit, Ervin D. Gordillo, S. El Issami

► **To cite this version:**

Abdelhamid Belghit, Ervin D. Gordillo, S. El Issami. GAZEIFICATION DE CHARBON AVEC DE LA VAPEUR D'EAU A L'AIDE DE CHALEUR DE SOURCE NUCLEAIRE. IX ème colloque inter-universitaire franco-québécois sur la thermique des systèmes, May 2009, Lille, France. pp.CIFQ2009 / ART-108. hal-00429101

HAL Id: hal-00429101

<https://hal.science/hal-00429101>

Submitted on 31 Oct 2009

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.

GAZEIFICATION DE CHARBON AVEC DE LA VAPEUR D'EAU A L'AIDE DE CHALEUR DE SOURCE NUCLEAIRE

Abdelhamid **BELGHIT***, Ervin **GORDILLO**, Sabah **EL ISAMMI**

LEPTIAB Université de La Rochelle, Av. Michel CREPEAU, 17042 La Rochelle, France

RÉSUMÉ

Un modèle de gazéification du charbon avec de la vapeur d'eau au sein d'un réacteur à lit mobile en état transitoire et permanent est présenté ici. Les trois résistances de transfert de chaleur ont été prises en compte (la conductivité effective, la convection et les effets radiatifs). Le transfert de matière du processus a été présenté en régime chimique. Les résultats ont montré que les avancements de la réaction de « shift » hétérogène sont considérablement plus petits en régime chimique qu'en régime diffusionnel. La vitesse du gaz peut influencer sensiblement le taux d'avancement de la réaction pour des vitesses au-dessous de 0.06 m/s, au-delà les variations sont négligeables. La productivité spécifique présente une augmentation faible avec ce paramètre. Une augmentation de la température des gaz à l'entrée amène à une augmentation de l'avancement de réaction, une élévation de la température de 800 K à 1300 K peut entraîner une élévation de rendement de 40%.

Mots Clés : Gazéification, production d'hydrogène, modélisation.

NOMENCLATURE

A surface des particule/unité de volume du lit (m^{-1})
C fraction molaire d'eau dans la phase gazeuse (mol/m^3)
C₀ fraction molaire d'eau dans la phase gazeuse à l'entrée du réacteur (mol/m^3)
C_p capacité calorifique (J/kg K)
d diamètre de la particule ($d=2r_C$) (m)
D coefficient de diffusion (m^2/s)
h coefficient de convection (W / m² K)
ΔH enthalpie molaire de réaction (J/gmol)
K_e coefficient d'extinction (m⁻¹)
L longueur du réacteur (m)
M poids moléculaire (kg/kmol)
P_s Productivité spécifique (kg/m² h)
Q_r Densité de flux radiatif (W / m²)
r_C rayon de la particule de charbon (m)
T_g température du gaz (K)

T_s température du solide (K)
t temps (s)
X taux d'avancement de la réaction
x_i fraction molaire du gaz i

Symboles grecs

ε porosité du lit
ε_p émissivité
σ constante de Boltzmann
λ^{eff} conductivité effective du charbon (W/m K)
ρ densité (kg/m³)
v_g vitesse du gaz à l'entrée du réacteur (m/s)
v_g vitesse du gaz dans le réacteur (m/s)
v_s vitesse du solide (m/s)

1. Introduction

Ces dernières années, l'approche vers une « économie de l'hydrogène » a mené à des recherches sur sa production, sa consommation et son stockage. Différents travaux sont surtout dirigés aux EUA, Japon et UE pour citer quelques exemples [1,2].

La gazéification de composés carbonés (charbon, biomasse, etc.) est une technique très largement étudiée. La possibilité de produire de l'hydrogène à partir de ce processus est bien connue (e.g. [3-7]). Depuis le début du dernier siècle, il y avait déjà quelques approches pour l'utilisation d'un gaz combustible obtenu à partir

* auteur correspondant : . Tel.: +33 546 45 70 64 Fax: +33 546 45 82 41
Adresse électronique : abelghit@univ-lr.fr

des composés carbonés (charbon, bois, déchets organiques, etc.) [8].

Compte tenu de la vaste variabilité (composition, structure, porosité, propriétés physiques, etc.) des matériaux et une large gamme de possibilités des conditions de gazéification (température, pression, temps de résidence, vitesse de chauffage, etc.), la concordance entre les résultats expérimentaux et ceux des modèles « théoriques » n'a pas été faite avec une précision complètement satisfaisante.

Yoshida et al. (2008) [9] ont proposé une solution à ce problème. Ils ont trouvé qu'une bonne estimation de la conversion du carbone dans le composé carboné peut donner des résultats très précis lors d'une modélisation. Il est donc nécessaire d'amplifier la connaissance des mécanismes qui font passer le carbone de la matrice solide aux composés gazeux.

Un modèle robuste de la gazéification en état transitoire et permanent a été mis en place par Sadaka et al. (2002) [10]. Il prédit les concentrations des gaz en sortie du réacteur. Ce gaz quitte le réacteur en équilibre thermodynamique. Ce modèle a un problème implicite, parce qu'au moment de supposer que l'équilibre est atteint, une surestimation des concentrations de gaz à la sortie du réacteur par rapport aux cas réels est toujours présente.

Lors d'une gazéification, différentes résistances physiques et chimiques sont présentes. Puisque ces résistances sont en série, celle qui a la plus petite vitesse sera celle qui contrôlera globalement le processus.

En dépendant des différentes conditions, par rapport au transfert de matière, on peut être en régime de diffusion ou bien en régime chimique. Dupont et al. (2007) [11] ont fait une analyse à partir des temps caractéristiques et il est mis en évidence que le régime chimique contrôle le processus pour des particules au-dessous de 1 mm pour des températures entre 1023-1273 K, avec des différences de l'ordre de 10^3 s entre le temps de diffusion et celui de la réaction chimique proprement dite.

Etant donné que le processus de gazéification est endothermique, plusieurs sources ont été proposées, comme par exemple : une combustion simultanée à la gazéification, une radiation solaire concentrée, ou des réacteurs nucléaires à haute température [12].

Puisque les températures du processus sont considérables, les effets radiatifs de transfert de chaleur doivent être sommés à ceux de la convection et de la conduction.

Sauf certain cas très concrets, la plupart des modèles développés jusqu'à présent ne rendent pas compte de la gazéification en état transitoire, ni des effets radiatifs dans le transfert de chaleur.

Le présent travail développe une modélisation de la gazéification du carbone avec la vapeur d'eau en régime chimique, dans un réacteur à couche mobile en état

transitoire et permanent, où les effets radiatifs sont pris en compte. Ce modèle est une base afin de bien comprendre le comportement du carbone contenu dans une matrice carbonée lors d'une gazéification.

2. Présentation du modèle

Le réacteur envisagé est un gazéificateur à couche mobile, contenant un empilement de particules sphériques consommables de charbon et parcouru par un courant principal d'hélium à haute température auquel on ajoute de la vapeur d'eau.

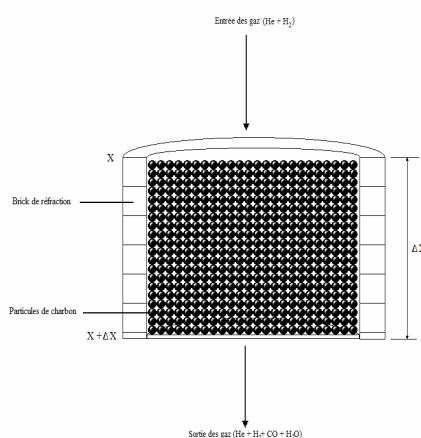


Figure 1 : Volume de contrôle au sein du gazéificateur

Pour le développement du modèle, une abstraction a été faite. Etant donné que la connaissance de la conversion du carbone de la phase solide à la phase gazeuse est le paramètre qui contrôle la gazéification, et envisageant une simplification du nombre de variables, on a supposé des particules ne contenant que du carbone pur (c'est le cas du « charcoal coconut »).

La seule réaction chimique endothermique suivante a donc lieu :



La chaleur nécessaire pour cette réaction de « vapogazéification » est fournie par le courant d'hélium chaud qui permet de chauffer les particules solides et par la suite d'enclencher la réaction.

Les équations de transfert sont établies en considérant un volume de contrôle (cf. Fig. 1) où il existe deux phases :

- Une phase gazeuse contenant : H_2O , H_2 , CO et He .
- Une phase solide contenant le carbone pur.

2.1 Bilans de chaleur et de matière

Les équations de transfert de chaleur et de masse sont présentées à une macro-échelle. Donc, sa géométrie est caractérisée par la porosité ε et la surface de contact entre les solides et les gaz $A = 6(1 - \varepsilon)/d$ bien entendu pour particules sphériques.

Pour les équations de transfert la conversion du carbone est définie par la suite :

$$X = \frac{(C_0 - C)}{C_0}$$

Qui représente l'avancement de la réaction ou autrement dit le taux de consommation de molécules de H_2O (voire carbone) par rapport au nombre de molécules à l'entrée.

2.1.1 Bilans dans la phase solide

$$\frac{\rho_s}{M_c} \frac{\partial r_c}{\partial t} + \frac{\rho_s}{M_c} \vartheta_s \frac{\partial r_c}{\partial x} = -V_{réac} \quad (1)$$

$$\rho_s \frac{\partial \vartheta_s}{\partial x} = -\frac{\varepsilon}{d} M_{H_2O} V_{réac} \quad (2)$$

$$\rho_s C_{ps} \frac{\partial T_s}{\partial t} + \rho_s C_{ps} \vartheta_s \frac{\partial T_s}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x} \left[\lambda^* \frac{\partial T_s}{\partial x} + Q_r \right] - \frac{\varepsilon}{d} h (T_s - T_g) - \frac{\varepsilon}{d} \Delta H V_{réac} \quad (3)$$

Les équations (1), (2) et (3) représentent les bilans de matière, de continuité et d'énergie respectivement.

Le premier terme à droite de l'équation (3) est la conductivité thermique effective du lit poreux et Q_r représente le transfert radiatif dans la phase solide calculé à partir de l'équation donnée par Rosseland [13] :

$$Q_r(x) = -\frac{16\sigma T^3 \partial T}{3K_e \partial x} \quad (4)$$

Où σ est la constante de Boltzmann et K_e est le coefficient d'extinction égal à 2000 m^{-1} .

La vitesse de réaction est très bien dessinée par le mécanisme proposé par Gadsby [14] :

$$V_{réac} = -\frac{1}{A} \frac{dn_c}{dt} = \frac{K_A P_{H_2O}}{1 + K_B P_{H_2} + K_C P_{H_2O}} \quad (5)$$

Où les constantes K_A , K_B et K_C sont calculées à partir de l'équation d'Arrhenius, leur valeur est montrée dans [3].

2.1.2 Bilans dans la phase gazeuse

Les bilans de transfert de matière et de chaleur pour la phase gazeuse sont :

$$\frac{\partial X}{\partial t} + \vartheta \frac{\partial X}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial X}{\partial x} \right) + \frac{\varepsilon(1-\varepsilon)}{\varepsilon d} V_{réac} \quad (6)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho C_p T_g) + \vartheta \frac{\partial}{\partial x} (\rho C_p T_g) = \frac{\partial}{\partial x} \left[\lambda (T_g) \frac{\partial T_g}{\partial x} \right] + \frac{\varepsilon(1-\varepsilon)}{\varepsilon d} h (T_s - T_g) \quad (7)$$

La densité volumique peut être calculée à partir de l'équation des gaz idéaux :

$$\rho = \frac{P}{R T_g} \sum x_i M_i$$

Le coefficient de transfert convectif h est déterminé à l'aide des équations empiriques applicables au réacteur ici étudié. Les C_p sont recensés avec les polynômes de NASA (cf. [3]).

2.1.3 Conditions aux limites et initiales

À l'instant initial, on suppose que la température des particules est égale à la température ambiante (300 K), que la température du gaz est T_{g0} et que l'avancement de la réaction est nul. On a alors :

$$\text{à } t = 0 \quad \begin{cases} T_s = T_{amb} \\ T_g = T_{g0} \\ X = 0 \\ r_c = r_L \\ \vartheta_s = 0 \end{cases}$$

À l'entrée du milieu poreux, le choix des conditions aux limites est simple pour toutes les équations à l'exception de l'équation de l'énergie du solide. Les conditions aux limites correspondant aux équations (2), (6) et (7) sont :

$$\text{en } x = 0 \quad \begin{cases} T_g = T_{g0} \\ X = 0 \\ \vartheta_s = 0 \end{cases}$$

Pour la condition sur la température du solide à l'entrée du réacteur, il est commode de la présenter sous forme de bilan thermique. Le bilan s'écrit comme suit :

$$\rho_s C_{ps} \frac{\Delta x \partial T_s}{2 \partial t} + \rho_s C_{ps} \vartheta_s \frac{\Delta x \partial T_s}{2 \partial x} = \lambda \vartheta_s \frac{\partial T_s}{\partial x} - h (T_s - T_g) - \Delta H V_{réac} - \varepsilon_g \sigma (T_s^4 - T_g^4)$$

Où ε_g est l'émissivité totale et est calculé à partir de la corrélation suivante :

$$\varepsilon_g = \varepsilon_p^{0.495}$$

Qui est valide pour une porosité de du lit de 0,4. Les conditions à la sortie du réacteur sont :

$$\text{en } x = L \quad \begin{cases} \frac{\partial X}{\partial x} = \frac{\partial T_g}{\partial x} = \frac{\partial T_s}{\partial x} = 0 \\ r_c = r_L \end{cases}$$

3. Méthode numérique

Les équations du modèle se présentent sous une forme complexe à cause de leur couplage et de leur caractère non linéaire. La méthode de Pantakar [15] a été donc mise en place pour la solution des équations de bilan. Cette méthode est basée sur celle dite aux différences finies et est très utile car, elle représente une parfaite adaptation à la résolution des systèmes d'équations différentielles couplées et fortement non linéaires. Pour les équations en état permanent, la solution s'obtient à l'aide de la discrétisation des équations en régime transitoire. Celles-ci peuvent être soumises à un processus de relaxation afin de les simplifier. L'intégration des équations donne des équations algébriques avec une matrice tri-diagonale que, enfin, peuvent être résolus à partir de la méthode TDMA [15].

4. Résultats et discussion

Pour la présentation des résultats, on a considéré les variables adimensionnelles suivantes : $X^+ = x/d_L$; $r_C^+ = 2r_C/d_L$; $T_s^+ = T_s/T_{g0}$
 Les résultats présentés sont relatifs aux paramètres de contrôle suivants : $T_{g0} = 1000$ K, $v_0 = 0,06$ m/s, $d_L = 3$ mm, $L = 10$ cm, $K_e = 2000$ m⁻¹ et $\epsilon = 0,45$.

4.1 Régime transitoire

On note sur la figure 2 une augmentation du taux d'avancement de la réaction en trois points différents du réacteur en fonction du temps. Il est évident que quand la réaction chimique est celle qui contrôle le processus de gazéification, les conversions de vapeur d'eau (voire de carbone) en hydrogène et monoxyde de carbone sont faibles ($\approx 6\%$ pour 1 h au lieu de 80% quand la diffusion est celle qui contrôle [16]).

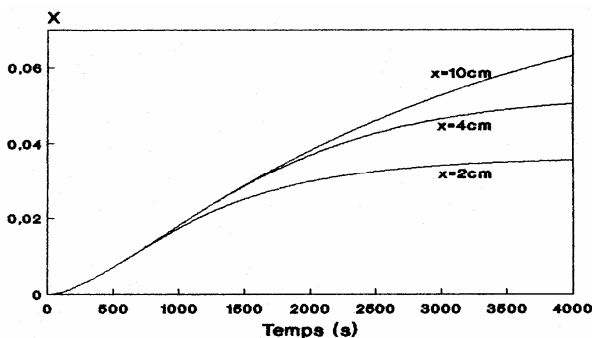


Figure 2 : Evolution au cours du temps du taux d'avancement de la réaction. ($T_{g0} = 1000$ K, $v_0 = 0,06$ m/s, $d_L = 3$ mm, $L = 10$ cm, $K_e = 2000$ m⁻¹ et $\epsilon = 0,45$)

Par rapport au profil de température, on constate d'après la figure 3 une élévation de la température du solide de 300 K à 950 K pendant une période de 50 mn pour la position $x=4$ cm.

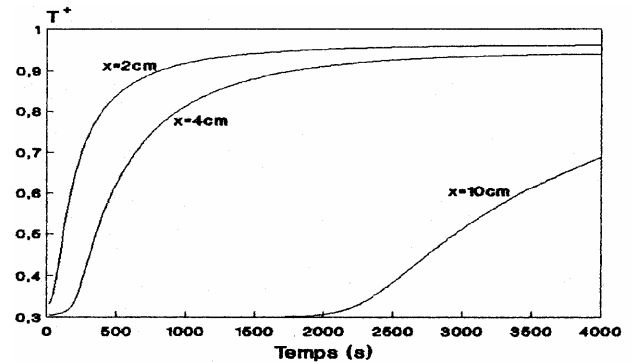


Figure 3 : Evolution au cours du temps de la température du solide. ($T_{g0} = 1000$ K, $v_0 = 0,06$ m/s, $d_L = 3$ mm, $L = 10$ cm, $K_e = 2000$ m⁻¹ et $\epsilon = 0,45$)

4.2 Régime permanent

Ces performances nécessitent la définition d'une grandeur caractéristique du réacteur : la productivité spécifique. Elle représente la quantité de charbon traité par unité de temps et par unité de surface. Elle est exprimé par :

$$R_s = A_s (1 - \epsilon) \theta_s$$

La figure 4 montre une diminution de la température dans le réacteur. Ceci est dû à la consommation d'une partie de la chaleur du solide par la réaction endothermique et au transfert depuis les zones les plus chaudes vers les zones de basses températures.

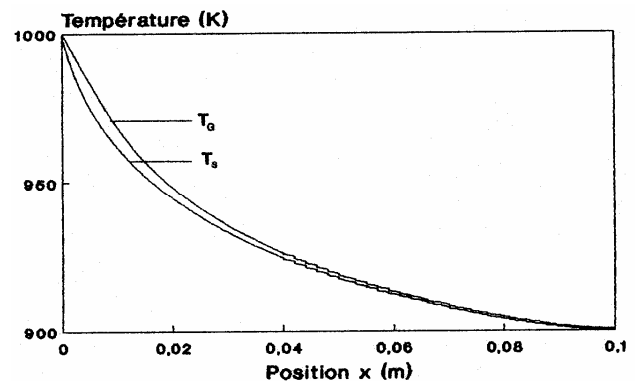


Figure 4 : Profils de température du gaz et du solide le long du réacteur. ($T_{g0} = 1000$ K, $v_0 = 0,06$ m/s, $d_L = 3$ mm, $L = 10$ cm, $K_e = 2000$ m⁻¹ et $\epsilon = 0,45$)

Ceci a pour conséquence une augmentation du taux d'avancement de la réaction tout au long du réacteur, comme il est présenté sur la figure 5.

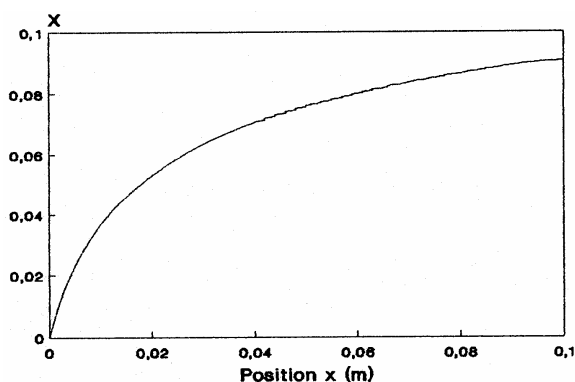


Figure 5 : Variation du taux d'avancement de la réaction le long du réacteur. ($T_{g0}=1000\text{ K}$, $v_0=0,06\text{ m/s}$, $d_L=3\text{ mm}$, $L=10\text{ cm}$, $K_e=2000\text{ m}^{-1}$ et $\varepsilon=0,45$)

Toutefois, dans le cas où le contrôle est chimique, on remarque que la valeur du taux d'avancement global est faible ($\approx 9\%$) en comparaison à celle que l'on aurait obtenu dans le cas où le contrôle est diffusionnel [3].

4.3 Sensibilité par rapport à la vitesse du gaz

Afin d'étudier l'influence de la vitesse d'entrée du gaz sur les profils de température et de concentration dans le milieu, nous avons considéré tous les autres paramètres comme étant constants et nous avons pris pour v_0 des valeurs comprises entre 0,006 et 0,08 m/s. Les résultats sont dessinés sur la figure 6.

On peut voir clairement une diminution du taux d'avancement de la réaction lorsque le débit du gaz augmente. Nous constatons également que la vitesse du gaz n'a pas une influence appréciable pour des valeurs supérieures à 0,06 m/s.

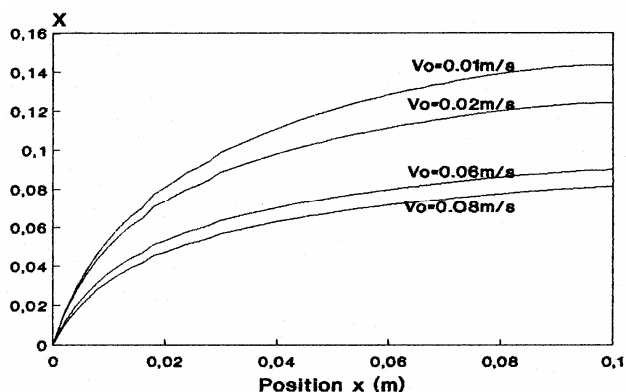


Figure 6 : Influence du débit du gaz à l'entrée du réacteur sur l'avancement de la réaction. ($T_{g0}=1000\text{ K}$, $d_L=3\text{ mm}$, $L=10\text{ cm}$, $K_e=2000\text{ m}^{-1}$ et $\varepsilon=0,45$)

On note aussi sur la figure 7 une faible augmentation de la productivité spécifique du réacteur avec ce facteur.

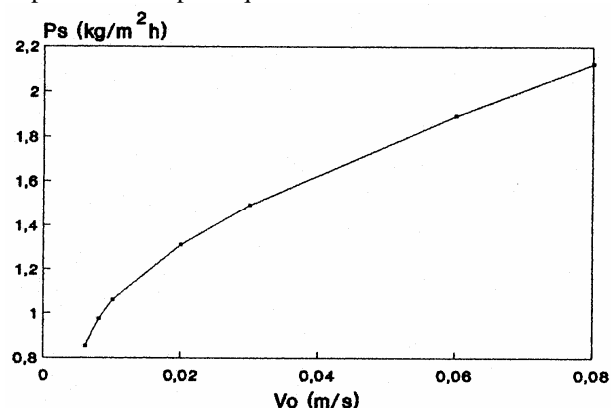


Figure 7 : Influence du débit du gaz à l'entrée du réacteur sur sa productivité spécifique. ($T_{g0}=1000\text{ K}$, $d_L=3\text{ mm}$, $L=10\text{ cm}$, $K_e=2000\text{ m}^{-1}$ et $\varepsilon=0,45$)

4.4 Influence de la relation H₂O/He à l'entrée du réacteur

La figure 8 met en évidence que le taux de conversion de la vapeur d'eau diminue lorsque la fraction molaire de H₂O dans le mélange augmente. La sensibilité de la réaction augmente pour des valeurs faibles de quantité de H₂O dans le mélange.

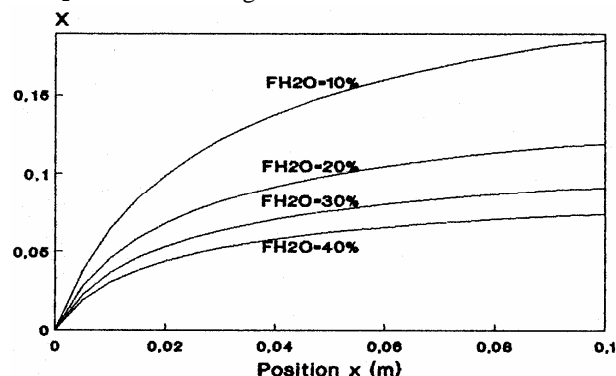


Figure 8 : Influence de la fraction molaire de H₂O dans le mélange sur le taux d'avancement de la réaction.

($T_{g0}=1000\text{ K}$, $v_0=0,06\text{ m/s}$, $d_L=3\text{ mm}$, $L=10\text{ cm}$, $K_e=2000\text{ m}^{-1}$ et $\varepsilon=0,45$)

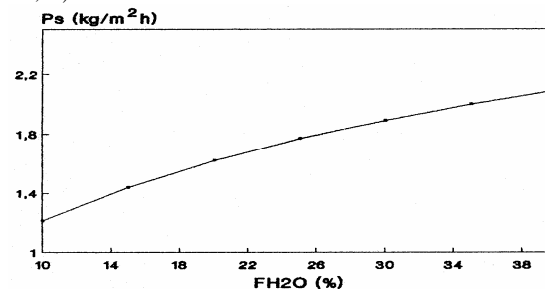


Figure 9 : Influence de la fraction molaire de H₂O dans le mélange sur la productivité spécifique du réacteur.

($T_{g0}=1000\text{ K}$, $v_0=0,06\text{ m/s}$, $d_L=3\text{ mm}$, $L=10\text{ cm}$, $K_e=2000\text{ m}^{-1}$ et $\varepsilon=0,45$)

La figure 9, quant à elle, montre une augmentation de la productivité spécifique avec ce facteur.

4.5 Influence de la température du gaz à l'entrée du réacteur

La figure 10 représente la variation du taux d'avancement global de la réaction en fonction de la température du gaz à l'entrée du réacteur. On y remarque une augmentation importante du taux d'avancement avec ce facteur.

En effet, une élévation de la température de 800 K à 1300 K entraîne une augmentation du taux d'avancement de 40%.

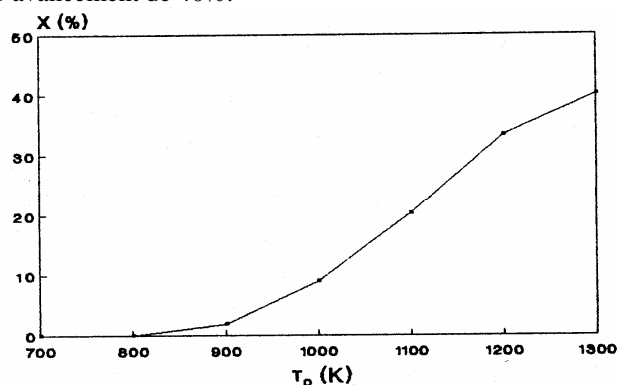


Figure 10 : Variation du taux d'avancement global de la réaction avec la température d'entrée du gaz.

($v_0 = 0,06 \text{ m/s}$, $d_i = 3 \text{ mm}$, $L = 10 \text{ cm}$, $K_c = 2000 \text{ m}^{-1}$ et $\varepsilon = 0,45$)

5. Conclusions

Un modèle théorique des transferts de masse et chaleur dans un réacteur à couche mobile lors de la gazéification du carbone avec de la vapeur d'eau a été mis en place.

La résolution numérique des équations du modèle en régime chimique a permis d'examiner l'influence de nombreux paramètres (température et débit du gaz à l'entrée, fraction molaire de H_2O dans le mélange gazeux, vitesse du gaz) sur le taux d'avancement de la réaction de gazéification du carbone.

L'influence de la conductivité effective et du coefficient d'extinction volumique sur les performances du réacteur lors d'une gazéification de charbon pure avec de la vapeur d'eau ont été pris en compte.

L'étude paramétrique permet d'aboutir aux conclusions suivantes :

- La conversion en régime chimique est notablement inférieure à celle du régime diffusionnel.
- La température du gaz à l'entrée du réacteur influence sensiblement le taux de conversion des réactifs.

- Le débit du gaz a une influence notable pour des valeurs inférieures à 0,06 m/s.
- L'augmentation de la fraction molaire d'eau dans le mélange gazeux entraîne une diminution du taux d'avancement de la réaction et une importante productivité spécifique du réacteur.

RÉFÉRENCES

- [1] Wietsche M., Seydel P., Economic impacts of hydrogen as an energy carrier in european countries. Int. J. Hydrogen energy. 2007; 32:3201-3211
- [2] Seymour E.H., Borges F.C., Fernandes R., Indicators of european public research in hydrogen and fuel cell – An input-output analysis. Int. J. Hydrogen energy. 2007; 32:3212-3222
- [3] Belghit A., S. El Issami., Hydrogen production by steam gasification of coal in gas-solid moving bed using nuclear heat. Energy conversion & management. 2001; 42:81-99.
- [4] Qiuhui Yan, Liejin Guo, Youjun Lu. Thermodynamics analysis of hydrogen production from biomass gasification in supercritical water. Energy conversion & Management. 2006; 46:1515-1528.
- [5] Madhukar R. Mahishi, D.Y. Goswami. Thermodynamic optimization of biomass for hydrogen production. International journal of Hydrogen energy. 2007; 32:3831-3840.
- [6] T. Pröll, H. Hofbauer. H_2 rich syngas by selective CO_2 removal from biomass gasification in a dual fluidized bed system – Process modeling approach. Fuel Process. Technol. 2008, doi:10.1016/j.fuproc.2008.05.020.
- [7] A. Haryanto, S. Fernando, S. Adhikari. Ultrahigh temperature water gas shift catalysts to increase hydrogen yield from biomass gasification. Catalysis today. 2007; 129: 269-274.
- [8] Nicolino F. "La faim, la bagnole, le blé et nous". Fayard.2007
- [9] Yoshida H., Kiyono F., Tajima H., Yamasaki A., Ogasawara K., Masuyama T., Two-stage equilibrium model for a coal gasifier to predict the accurate carbón conversion in hydrogen production. Fuel. 2008; 87:2186-2193.
- [10] [Samy S. Sadaka, A.E. Ghaly, M.A. Sabbah. Two phase biomass air-steam gasification model for fluidized bed reactors: Part I- Model development. Biomass & Bioenergy. 2002; 22:439-462.
- [11] C. Dupont, G. Boissonnet, J. Seiler, P. Gauthier, D. Schweich. Study about the kinetic processes of biomass steam gasification. Fuel. 2007; 86:32-40.
- [12] Belghit A., Daguene M., Reddy A., Heat and mass transfer in a high temperature packed moving bed subject to an external radiative source. Chemical engineering science. 2000; 55:3967-3978.
- [13] Rosseland, "Theoretical astrophysics". Oxford University Press. Clarendon.
- [14] Gadsby J., Hinshelwood C.N., Sykes K.W., Proc. Roy Soc. 1946;A:129-187.
- [15] Pantakar V.S., "Numerical heat and fluid flow". Mc Graw Hill, Lonon, 1980.
- [16] Bird RB, Stewart WE, Lightfoot EN. Transport phenomena. New York: Wiley, 1960.