Gazéification en lit fixe continu : caractérisation d'un nouveau réacteur expérimental

Laurent van de Steene, Eric Martin, Jean-Michel Commandre, Sylvain Salvador

▶ **To cite this version:**

Laurent van de Steene, Eric Martin, Jean-Michel Commandre, Sylvain Salvador. Gazéification en lit fixe continu : caractérisation d'un nouveau réacteur expérimental. Sud sciences et Technologies, 2010, 18, p.7-14. hal-01846921

HAL Id: hal-01846921
https://hal.science/hal-01846921

Submitted on 8 Nov 2019

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.

Gazéification en lit fixe continu : caractérisation d'un nouveau réacteur expérimental

Fixed bed gasification: characterization of a new experimental set-up

Van de Steene L.[1]; Martin E.[1]; Commandré JM.[1]; Salvador S.[2]

[1]CIRAD-PERSYST, TA B42/16, 73 rue JF Breton, 34398 MONTPELLIER Cedex 5, France,
Tél. : (+33) 4 67 61 65 22
Fax : (+33) 4 67 61 65 15
E-mail : steene@cirad.fr

[2]RAPSODEE, UMR 2392 CNRS, Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, Route de Teillet, 81013 ALBI CT Cedex 09, France,
Tél. : (+33) 5 63 49 30 26
Fax : (+33) 5 63 49 32 43
E-mail : salvador@enstimac.fr

Résumé

La gazéification étagée couplée à un moteur à gaz est une technologie prometteuse pour la production d'électricité décentralisée de petites et moyennes puissances.
L'objectif de ces travaux était de concevoir, dimensionner et construire un nouveau réacteur expérimental pour caractériser l'étape de gazéification des procédés à lit fixe et étagé. Le Réacteur à Lit Fixe Continu (RLFC) du Cirad simule la zone de gazéification isolée du reste du procédé. Des sondes de mesure et d'échantillonnage ont été placées dans le lit, tous les 10 cm, dans le but d'analyser en continu les températures, les pressions et la concentration des gaz produits. Des bilans précis de matières et d'énergie ont été réalisés pour valider les performances du réacteur et la pertinence des expérimentations. Enfin, pour illustrer le haut potentiel de cet outil de recherche, des profils de températures et concentrations de gaz dans le lit de charbon sont présentés et discutés.

Mots clés : gazéification étagée, réacteur à lit fixe continu, pyrolyse, charbons

Abstract

A staged gasification process coupled with a gas engine is one of the most promising technologies for small and medium sized electricity production. The purpose of this work was to design and build new experimental equipment to characterise the wood char gasification stage in fixed bed/staged reactors. The Continuous Fixed Bed reactor (CFiB) at CIRAD replicates the gasification zone separately from the rest of the process. Instrumentation is a key point of the equipment. Sampling and measuring probes are positioned all along the char bed, every 10 cm, enabling online analysis of temperature, pressure and gas composition, along with condensate tracking. Accurate heat and mass balances were carried out to validate reactor performance and the methodology. Lastly, to illustrate the high potential of this reactor, profiles for temperatures and gas concentrations along the bed are presented and discussed.

Keywords: *staged gasification, continuous fixed bed reactor, pyrolysis, char.*

1. Introduction

La gazéification suscite un intérêt croissant avec les premières démonstrations en production d'électricité à partir de biomasse [1]. Aujourd'hui, les enjeux visent d'autres marchés comme les biocarburants ou l'électricité par le couplage de gazéifieurs avec des technologies telles que les réacteurs de synthèse Fischer-Tropsch ou les piles à combustible. Le développement pertinent de la gazéification est encore conditionné par l'amélioration de l'efficacité énergétique et de la qualité des gaz et nécessite une meilleure connaissance scientifique et technique des transformations mises en jeu dans de tels réacteurs.

Avec le pilote Viking [2] et plus récemment la technologie Xylowatt, la gazéification étagée a démontrée son potentiel pour la production d'électricité de petite et moyenne puissance. Dans ce type de gazéifieur, la pyrolyse et la gazéification se produisent dans deux réacteurs distincts, permettant un contrôle indépendant des deux étapes du procédé.

Plusieurs interrogations existent toujours quant au comportement thermochimique du lit fixe continu de charbon de bois pendant sa gazéification. Cette étape du procédé est fondamentale car elle produit la majorité du gaz de synthèse (H_2, CO) à travers des réactions lentes et limitées vis-à-vis de la cinétique de conversion du carbone. La plupart des études sur les gazéifieurs étagés s'intéressent au comportement global du procédé [2-9] et peu d'attention est portée sur la zone de gazéification hétérogène. Seuls quelques auteurs ont cependant caractérisé spécifiquement cette zone. Bhattachaya [10] a mesuré les températures tous les 10 cm dans un lit fixe de char issu de charbon minéral mais dans des conditions non continues ("batch"). L'étude la plus pertinente revient à Gobel et al. [11] et leurs travaux sur le réacteur étagé Viking.

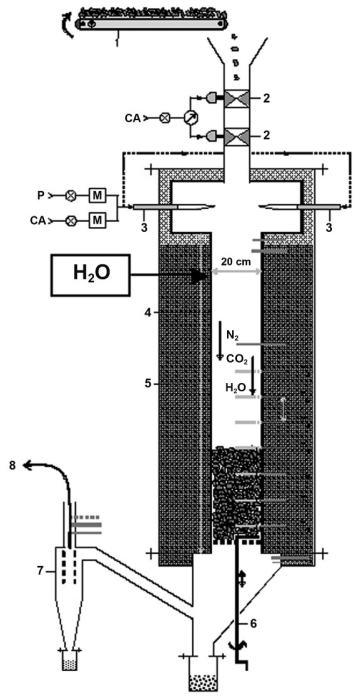
Nos travaux visent ici l'étude de la gazéification étagée et en particulier l'étape de gazéification du charbon. Cette zone réactive où le carbone est converti en CO et H_2 par la vapeur et le dioxyde de carbone a un impact majeur à la fois sur l'efficacité du procédé et sur la qualité des gaz en sortie. Dans ce but, nous avons conçu, dimensionné, construit et testé un réacteur original précisément instrumenté afin de caractériser au mieux les phénomènes mis en jeu. La compréhension des couplages des réactions chimiques, des transferts de chaleur et de matières et le comportement mécanique du lit constitue l'enjeu majeur des recherches entreprises.

2. Matériels et méthodes

2.1 Le réacteur

Le réacteur est un tube en acier inoxydable réfractaire (4) de 20 cm de diamètre et de 160 cm de hauteur. Il comporte des piquages disposés suivant une forme hélicoïdale le long du réacteur pour le prélèvement des gaz et les mesures de température et de pression. L'isolation thermique (5) du réacteur est réalisée à l'aide d'une couche de 20 cm d'épaisseur de laine céramique qui recouvre entièrement sa surface latérale.

L'atmosphère réactive (température et gaz) est simulée par les fumées de combustion de propane et un générateur de vapeur d'eau. La chambre de combustion (3) est constituée de deux brûleurs de 15 kW chacun. Les débits de gaz sont précisément contrôlés par des débitmètres massiques.



(1) : Convoyeur-doseur de char ; (2) : Vannes pneumatiques ; (3) : Brûleurs au propane ; (4) : Tube en inox réfractaire ; (5) : Isolation céramique ; (6) : Système de décendrage ; (7) : Cyclone ; (8) : Injecteur de vapeur d'eau ; (AC) : Air comprimé ; (P) : Propane (H2O) : Vapeur d'eau

M Débitmètre régulateur massique

Figure 1 : Le réacteur RLFC

Un convoyeur à bande (1) permet l'alimentation en charbon (jusqu'à 3 kg/h) par le haut du réacteur. Un sas constitué de deux vannes pneumatiques (2) assure l'étanchéité du réacteur pendant l'alimentation. Dans le réacteur, le charbon se dépose pour former un lit pouvant atteindre 80 cm.
En bas du réacteur, un dispositif de décendrage (6) constitué d'une grille perforée et d'un bras "racleur" actionné manuellement permet l'extraction des résidus de la gazéification.
A la sortie du réacteur, les gaz passent par un cyclone (7) où ils sont dépourvus de particules solides avant d'être envoyés dans un réacteur de post combustion.
L'instrumentation est un élément essentiel du réacteur. Des capteurs de mesure des températures et pressions et d'échantillonnage des gaz et condensats sont positionnés tous les 10 cm dans le lit.

2.2 Le charbon de référence (production et caractérisation)

Les analyses immédiates et élémentaires du bois initial, réalisées selon les normes en vigueur sont présentées dans le tableau 1.

Le charbon a été produit avec un réacteur de pyrolyse à vis sans fin. Ce dernier est le réacteur de pyrolyse du gazéifieur étagé du Cirad qui a été découplé du reste de l'installation pour les besoins de cette étude. Les conditions de pyrolyse sont connues pour influencer significativement la qualité du charbon produit. Ainsi, l'utilisation de ce réacteur de pyrolyse permet de produire un charbon dans des conditions de pyrolyse industrielles. Ce réacteur a été largement décrit par ailleurs [12]. Il s'agit d'un cylindre métallique tracé extérieurement par des résistances chauffantes électriques. Une vis sans fin permet le déplacement du solide le long des 3 mètres du réacteur. Les conditions opératoires de production étaient : 750°C, 1h, 20 kg/h. Les analyses immédiates et élémentaires du charbon produit sont présentées dans le tableau 1. Le taux de matières volatiles est très faible (<5 %). 200 kg de charbon ont été produits pour réaliser l'ensemble des expérimentations de mise au point et de caractérisation.

Tableau 1 : Analyses immédiates et élémentaires des plaquettes forestières et du charbon

Combustible	Analyses immédiates (%m)				Analyses élémentaires (%m)				
	Humidité	Matières volatiles	Cendres	Carbone fixe	C	H	O	N	S
Plaquettes forestières	12	82.6	0.2	17.2	45	5.7	42.8	<0.3	<0.1
Charbons	1.6	4.9	1.3	93.5	92.0	1.4	5.1	<0.3	<0.1

2.3 Instrumentation et mesures

La conduite du réacteur et la compréhension des phénomènes mis en jeu font appel à une instrumentation précise en ce qui concerne les températures, les pressions, la composition des gaz et les propriétés du solide. Les températures et les concentrations des gaz dans le lit sont mesurées par des sondes disposées tous les 10 cm. Elles sont positionnées en hélice pour limiter la perturbation de l'écoulement du charbon dans le même plan. Chaque sonde est constituée d'un tube d'échantillonnage en acier réfractaire de 4 mm de diamètre intérieur dans lequel est inséré un thermocouple (type K) de 1 mm. Les thermocouples dépassent de 5 mm les tubes d'échantillonnages. Ces sondes permettent la mesure de profils axiaux et radiaux de températures et de concentrations des gaz. Après prélèvement, les gaz traversent une ligne d'échantillonnage (figure 2). Ils sont dans un premier temps refroidis dans 4 bulleurs remplis d'isopropanol dans lesquels les condensables sont séparés. Les gaz secs traversent successivement un filtre, un piège à eau, un compteur volumique. Une partie de ces gaz est injectée dans un analyseur du

type CPG (Chromatographie Phase Gazeuse) muni de 2 colonnes permettant la quantification des concentrations de CO, N_2, O_2, H_2, CO_2, CH_4, C_2H_4, et C_2H_6. L'eau et les composés organiques piégés sont analysés en laboratoire.

La technique Karl Fisher est utilisée pour quantifier la teneur en eau et un analyseur CPG/MS (Spectrométrie de Masse) permet d'identifier et de quantifier les composés organiques condensés.

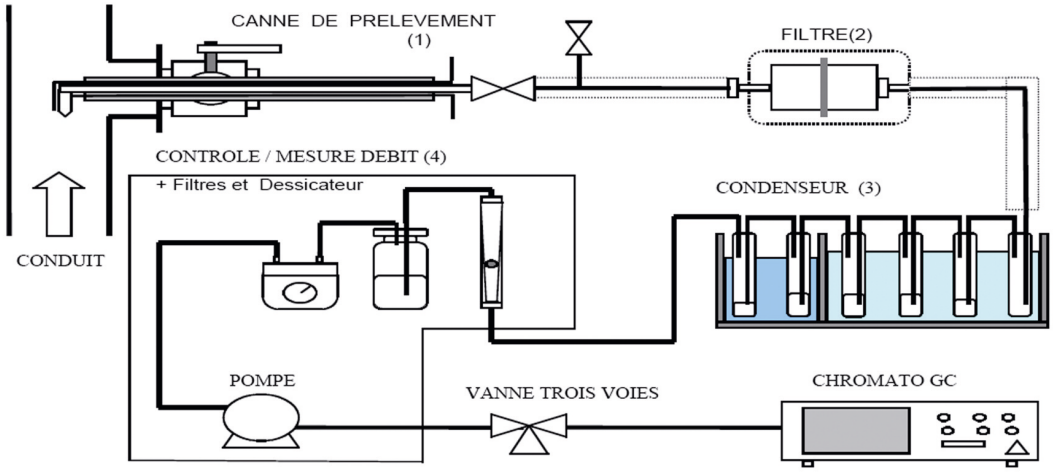


Figure 2 : La ligne d'échantillonnage

Les résidus carbonés issus de la gazéification sont échantillonnés toutes les 10 minutes en bas du réacteur quand le système de décendrage est activé. Ces résidus (ou cendres) sont pesés en continu pendant l'extraction.

Le taux de conversion du charbon est mesuré directement par pesée lors de l'extraction. Mais, il peut aussi être calculé en utilisant la méthode du traceur "cendres" qui compare la teneur en cendres dans le charbon initial à celle dans les résidus collectés. La corrélation suivante donne alors le taux de conversion $X = \frac{1 - C_{cen}^{char} / C_{cen}^{res}}{1 - C_{cen}^{char}}$

Où C_{cen}^{char} et C_{cen}^{res} sont respectivement les teneurs en cendres dans le charbon initial et dans le résidu carboné récupéré.

3. Résultats et discussions

Pour les essais, les brûleurs propane étaient ajustés à une puissance de 11 kW et un excès d'air de 20 %. Le débit d'eau liquide qui alimentait le générateur de vapeur était de 35 cm3/min et le doseur de charbon alimentait en continu 28 g/min (1.68 kg/h). La composition de l'atmosphère réactive générée par les brûleurs et le générateur de vapeur est présentée dans le tableau 2. Dans ces conditions de fonctionnement, la température des gaz à l'attaque du lit est de 1020 °C.

Après démarrage de l'installation, environ 6 heures sont nécessaires pour atteindre un régime stabilisé. En effet cette condition est atteinte lorsque l'on observe une stabilité dans le temps

Tableau 2 : Composition du gaz à l'entrée du lit

H_2O	CO_2	O_2	N_2
30%	8%	2,7%	59,3%

i. de la hauteur du lit de charbon
ii. des températures dans le réacteur
iii. des concentrations des gaz
iv. du débit et de la composition des cendres prélevées en bas du réacteur.

La figure 3 montre la stabilisation des températures et la hauteur du lit.

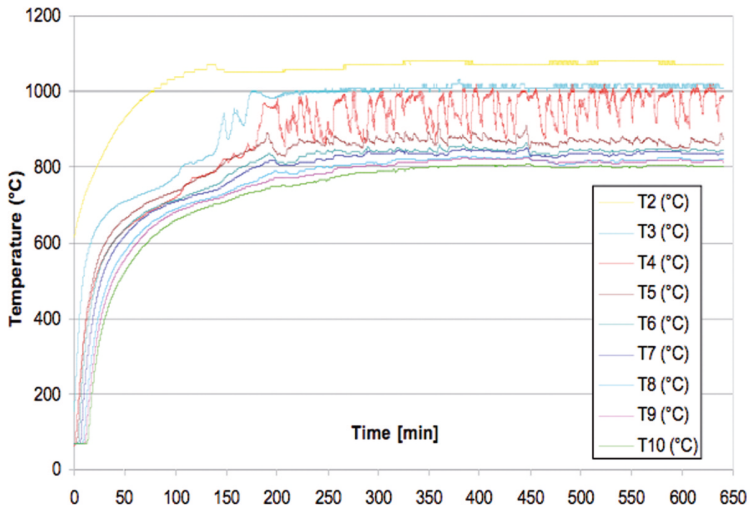


Figure 3 : Evolution des températures dans le réacteur pendant la gazéification

Le thermocouple T4 sert de détecteur du niveau du lit. Les fluctuations observées sont dues au fait qu'il est alternativement à l'intérieur et à l'extérieur du lit. Une baisse de la température à ce niveau témoigne du recouvrement du thermocouple par le charbon. Le décendrage réduit la hauteur du lit et se traduit par une augmentation de la température T5 jusqu'à la température du gaz entrant T3, situé à 10 cm au dessus. Ainsi en régime stabilisé et dans nos conditions opératoires, le débit de décendrage est maintenu à 2,8 g/min (soit 28 g toute les 10 min) afin de maintenir une hauteur de lit constante.

Quand le régime stabilisé est atteint, la conversion du charbon est supérieure à 90 %, les concentrations molaires des gaz produits sont présentées dans le tableau 3. A noter que ces concentrations sont constantes avec une fluctuation de l'ordre de 5 % et que seules les valeurs moyennes sont reportées dans ce tableau.

Tableau 3 : Concentrations des gaz en sortie dans les conditions de référence

Gaz	H_2	CO	O_2	CH_4	CO_2	H_2O	N_2
% (mol)	15.9%	9.8%	0.6%	0.2%	10.8%	9.8%	52.9%

Les concentrations de H_2 et CO sont plus faibles que celles rencontrées dans les gazéifieurs à lit fixe ou étagé industriels. Les pertes thermiques dans les réacteurs de faibles puissances sont plus importantes et nécessitent davantage d'énergie pour atteindre des températures de réaction satisfaisantes. Cette énergie provient de l'oxydation d'une partie du charbon qui se fait au détriment de la gazéification à la vapeur ou au dioxyde de carbone. Par ailleurs, le charbon est froid en entrant dans le réacteur contrairement aux procédés industriels où sa température est supérieure à 400 °C. En conséquent, davantage d'énergie par quantité de charbon est nécessaire pour atteindre la température de 1000°C à l'entrée du lit, entrainant une dilution des gaz produits et en particulier du CO et H_2.

A partir des concentrations mesurées et en considérant l'azote comme un traceur, nous avons calculé les débits massiques de chaque gaz afin de vérifier le bilan massique. Le tableau 4 montre que

Tableau 4 : Bilan matière

N2	CO2	O2	H20	charbon	
169.61	35.76	8.11	54.51	28	g/min

TOTAL ENTREE	295.9	g/min

LIT CHARBON

GAZ	(g/min)	Cendres	(g/min)
N_2	169.6	bas	3.2
H_2O	20.3	cyclone	0.13
O_2	1.9	total	3.33
CO_2	55.2		
H_2	3.7		
CO	31.8		
CH_4	0.3		
total gaz	282.74		

TOTAL SORTIE	286.0	g/min
Bilan matière	-3.35	%

Tableau 5 : Bilan énergie

N2	CO2	O2	H20	charbon	
3.42	0.77	0.14	2.25	0.87	kW

TOTAL ENTREE	7.44	KW	T gaz (°C)	1020
			T charbon (°C)	520

LIT CHARBON

Pertes thermiques	0,74	KW

T sortie (°C)	660

GAZ	(kW)	Cendres	(kW)
N_2	2.07	total	0.06
H_2O	8.29		
O_2	0.02		
CO_2	-2.18		
H_2	0.04		
CO	-1.70		
CH_4	-0.02		
total gaz	6,53		

TOTAL SORTIE	6.59	kw
Bilan énergie	1.49	%

ce dernier est tout à fait satisfaisant (erreur <3%) et confirme la pertinence et la précision du réacteur, de l'instrumentation et de la méthodologie développée.

A partir des mesures des températures et des débits massiques des gaz et du solide avant et après le lit, des bilans d'énergie ont été réalisés. Les énergies à l'entrée et à la sortie du lit ont été calculées à partir des enthalpies de chaque espèce selon l'équation

$$\underbrace{+\dot{m}_{char}h_{char}+\sum_j \dot{m}_j h_j}_{Inlet} \underbrace{-\dot{m}_{res}h_{res}-\dot{m}_{fines}h_{fines}-\sum_j \dot{m}_j h_j}_{Outlet} - Q_{losses} = 0$$

Où h_j est l'enthalpie spécifique de chaque composé.

$$h_j(T) = h_j^{(0)}(T_0) + \int_{T_0}^{T} C_{p(j)}(T)dT$$

Où $h_i^{(0)}$ est l'enthalpie standard et $C_{p(j)}$, la capacité calorifique.

L'estimation des pertes thermiques a été faite à partir de la mesure des températures des surfaces externes du réacteur et en considérant un coefficient d'échange par convection de 15 W/m².K. La température du charbon à l'entrée du lit a été supposée de 520°C, comme la moyenne entre la température du charbon au niveau du système d'alimentation et celle du gaz à l'attaque du lit. Le bilan d'énergie donne un résultat très satisfaisant, avec une différence inférieure à 2 % entre l'entrée et la sortie.

Un des atouts spécifiques de cette installation est de fournir des profils de température de concentrations des espèces et de conversion du charbon au sein du lit fixe. Un profil de température du haut (T2) au bas (T8) du lit est présenté sur la figure 4. La température du gaz au dessus du lit est relativement stable (entre 980 et 1010°C). En T4, la température fluctue entre 950 et 1000°C car ce thermocouple est successivement à l'intérieur et à l'extérieur du lit en raison du décendrage régulier.

A la surface du lit, la température peut atteindre une valeur supérieure à celle de l'atmosphère réactive. Cette légère surchauffe est vraisemblablement due à la combustion localisée d'une faible quantité du charbon avec l'oxygène résiduel des fumées de combustion du propane. La température dans le lit décroit rapidement pour atteindre 850°C à seulement 10 cm de la surface du lit. L'évolution est ensuite beaucoup plus lente dans les 55 cm restants. Ces observations montrent que les réactions se produisent en grande partie dans les premiers cm du lit. Des résultats comparables ont été rapportés par plusieurs auteurs lors de la gazéification en lit fixe de biomasse [6, 7], ou de charbon minéral [4, 13].

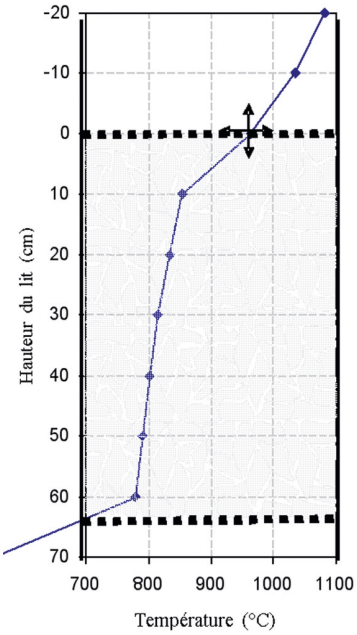


Figure 4 : Profil axial de température

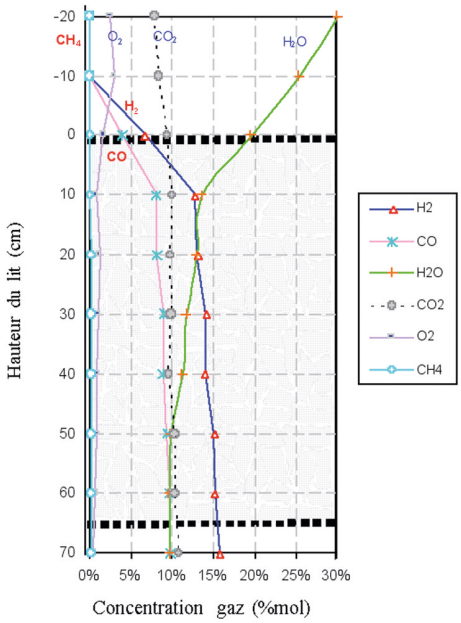


Figure 5 : Profil axial de composition des gaz

Ces commentaires sont confirmés par la figure 5, qui montre les profils axiaux des concentrations de chaque espèce gazeuse. H_2 et CO augmentent rapidement dans les 10 premiers centimètres du lit pour atteindre 80 % de leurs valeurs finales. Globalement, l'évolution de la concentration des gaz est cohérente avec les profils de températures et confirme la présence d'une zone très réactive dans la partie supérieure du lit, où des réactions endothermiques se produisent. En conséquence, la baisse de la concentration de vapeur d'eau quand le CO et le H_2 augmentent est tout à fait pertinente au regard de la gazéification à la vapeur. Il est intéressant de constater que le CO_2 est relativement constant dans le lit. Il résulte de la compétition de plusieurs réactions dans le lit. En particulier la réaction de Boudouard consomme le CO_2 mais la combustion du charbon et la réaction du gaz à l'eau (water gas shift) produisent du CO_2, de telle manière que la production et la consommation se compensent.

4. Conclusion

L'objectif de ces travaux était de concevoir, dimensionner et construire un nouveau réacteur expérimental pour caractériser la gazéification de charbon de bois en lit fixe continu. Une attention particulière a été portée à la métrologie afin d'accéder à des données pertinentes, telles que les températures, la composition du gaz, et la conversion du charbon au sein même du lit de charbon. Cet équipement a été utilisé pour caractériser la gazéification d'un charbon issu de l'étape de pyrolyse d'un gazéifieur à 2 étages. L'objectif des premières campagnes d'essai était d'atteindre un régime stationnaire caractérisé par une stabilité des températures, de la composition du gaz et de la hauteur du lit. Dans des conditions opératoires proches de celles rencontrées dans les réacteurs industriels, une conversion du charbon de 92 % a été atteinte. Par ailleurs, la fiabilité du réacteur et des méthodes d'analyse proposées a été confirmé par des bilans de matières et d'énergie très satisfaisants.

Des profils de températures et de composition de gaz au sein du lit ont montré que la gazéification se produisait principalement dans les 10 premiers cm du lit, où une conversion de 80 % était atteinte. Actuellement une étude paramétrique complète est en cours afin de fournir des données pertinentes pour la validation d'un modèle numérique de réacteur ■

Bibliographie

[1] Knoef, H. A. M., Ed., (2005): "Handbook Biomass Gasification", Biomass Technology Group.

[2] Gobel, B., Henriksen, U. et al. (2001): "Dynamic modelling of char gasification in a fixed-bed", Progress in Thermochemical Biomass Conversion. A. V. Bridgwater. London, Blackwell: 92-108.

[3] Barrio, M. (2002): "Experimental investigation of small-scale gasification of woody biomass": Doctorate thesis, Norwegian University of Science and Technology (NTNU); 82-471-5435-8; Dr. ingeniøravhandling, ISSN 0809-103X ; 2002: 40; p. 222 pages; Trondheim, Norway

[4] Krishnudu, T., B. Madhusudhan, S.N. Reddy, V.S.R. Sastry, K.S. Rao and R. Vaidyeswaran, (1989): "Studies in a moving bed pressure gasifier: prediction of reaction zones and temperature profile". Ind. Eng. Chem. Res. 28(4): p. 438-444.

[5] Barrio, M., M. Fossum and J.E. Hustad, (2001) "A small-scale stratified downdraft gasifier coupled to a gas engine for combined heat and power productioné". Bridgwater AV, editor. Progress in thermochemical biomass conversion. 1: ISBN:0632055332; p. 426-440.

[6] - Barrio, M., M. Fossum and J.E. Hustad. (2001) " Operational characteristics of Small-scale Stratified Downdraft Gasifier". in Technologies and combustion for clean environment, Sixth International Conference; 9-12 July 2001Porto (Portugal). p. 8 pages

[7] - Di Blasi, C., G. Signorelli and G. Portoricco, (1999): "Countercurrent fixed-bed gasification of biomass at laboratory scale". Industrial Engineering Chemistry Research. 38: p. 2571-2581.

[8] - Yang, W., A. Ponzio, C. Lucas and W. Blasiak, (2006): "Performance analysis of a fixed-bed biomass gasifier using high-temperature air". Fuel Processing Technology. 87(3): p. 235-245.

[9] - Lv, P., Z. Yuan, L. Ma, C. Wu, Y. Chen and J. Zhu, (2007): "Hydrogen-rich gas production from biomass air and oxygen/steam gasification in a downdraft gasifier". Renewable Energy. 32(13): p. 2173-2185.

[10] Bhattacharya, A., L. Salam, M.P. Dudukovic and B. Joseph, (1986): "Experimental and modeling studies in fixed-bed char gasification". Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev. 25(4): p. 988-996.

[11] Gobel, B., U. Henriksen, T.K. Jensen, B. Qvale and N. Houbak, (2007): "The development of a computer model for a fixed bed gasifier and its use for optimization and control". Bioresource Technology. 98(10): p. 2043-2052.

[12] W.F. Fassinou, L. Van de Steene, S.Toure, G. Volle, P. Girard. Pyrolysis of Pinus pinaster in a two-stage gasifier: Influence of processing parameters and thermal cracking of tar. Fuel Processing Technology, 90 (1): 75-90, 2009.

[13] Hobbs, M.L., P.T. Radulovic and L.D. Smoot, (1993) "Combustion and gasification of coals in fixed-beds". Energy Combustion Science