

Modélisation numérique de la combustion en lit fixe de combustibles solides

Alexandre LAPENE¹, Gérald DEBENEST^{1*}, Michel QUINTARD¹, Marcio F. MARTINS², Sylvain SALVADOR²

¹ Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (I.M.F.T.), UMR 5502, allée du Professeur Camille Soula, 31400 Toulouse

² Ecole des Mines d'Albi-Carmaux – Centre Rapsodee, UMR CNRS 2392
Campus Jarlard, Route de Teillet, 81013 Albi CT Cedex 09, France.

* (auteur correspondant : gerald.debenest@imft.fr)

Résumé - La simulation numérique de la combustion in-situ de schistes bitumineux à l'échelle du réservoir passe préalablement par une étude à l'échelle du réacteur. L'étude consiste en la réalisation d'un outil numérique 1D prenant en compte le transport et les différents mécanismes chimiques et simulant la combustion du schiste bitumineux de Timahdit (Maroc) dans un réacteur. Elle s'appuie sur des données expérimentales et une étude numérique à la micro échelle qui ont permis de paramétrer la modélisation à l'échelle de Darcy.

Nomenclature

A facteur de fréquence, s^{-1}
 C_p capacité calorifique massique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$
 D coefficient de diffusion dispersion, $m^2.s^{-1}$
 E_a énergie d'activation, J
 h coefficient d'échange, $J.s^{-1}.m^{-3}.K^{-1}$
 k_0 taux de réaction, s^{-1}
 k $\{N_2, O_2, CO, CO_2, CaCO_3, Fuel\}$
 K perméabilité du milieu poreux, m^2
 m masse normalisée
 M masse molaire, $kg.mol^{-1}$
 P pression, $kg.s^{-2}.m^{-1}$
 Q terme source de chaleur, $J.s^{-1}.m^{-3}$
 R constante des gaz parfaits, $J.K^{-1}.mol^{-1}$
 \dot{R} terme source de matière, $kg.s^{-1}.m^{-3}$
 t temps, s
 T température, K

x position dans l'espace, m
 v vitesse de filtration, $m.s^{-1}$

Symboles grecs

ε fraction volumique
 ρ masse volumique, $kg.m^{-3}$
 μ viscosité, $kg.s^{-1}.m^{-1}$
 λ conductivité thermique, $J.m^{-1}.s^{-1}.K^{-1}$
 Γ coefficient d'échange, $J.s^{-1}.m^{-3}.K^{-1}$
 α rapport $[CO_2]/[CO]$ de la réaction

Indices et exposants

* effectif
 g du gaz
 k de l'espèce k
 s du solide

1. Introduction

Le combustible solide modèle de notre étude est un schiste bitumineux de Timahdit (Maroc). Le schiste bitumineux est un terme général regroupant des roches, argileuses et litées, plus ou moins calcareuses, contenant des proportions importantes de kérabituèmes et susceptibles d'être exploitées pour en extraire des huiles par pyrolyse vers 500°C [1]. Comparés à d'autres matériaux, les schistes bitumineux présentent un niveau de difficulté intermédiaire. Du point de vue chimique, ils sont plus complexes, par exemple, que le charbon car ils contiennent une variété importantes de composés organiques, mais la présence d'une fraction importante de matière inorganique inerte dans la roche induit une simplification majeure qui est que la structure du matériau n'est que peu affectée par la combustion.

La modélisation numérique de la combustion en lit fixe de combustible solide doit décrire correctement le transport couplé de masse et de chaleur en milieu poreux réactif. Ces phénomènes sont fortement couplés et non-linéaires. Il existe alors deux visions pour traiter ce problème : la vision macroscopique et la vision microscopique.

1.1. Vision microscopique

Dans la littérature, on recense peu de tentatives de simulations numériques à l'échelle microscopique. En 1985, Ohlemiller [2] a donné une revue très détaillée des processus chimiques et physiques impliqués dans la combustion en lit fixe de combustibles solides. Il a proposé un modèle mathématique complet prenant en compte tous les mécanismes de transport à l'échelle du grain et les processus chimiques complexes. Il a alors estimé que le problème complet n'était pas traitable. En 2000, Lu and Yortsos [3] présentent des simulations numériques, où le milieu poreux est représenté par un réseau de capillaires. Le travail se fait à l'échelle du pore dans des solides non connectés avec une approche locale des transports. Les différents transferts et couplages sont modélisés à l'aide de coefficients effectifs ; par conséquent, ceci ne peut être considéré comme une véritable approche microscopique. En 2002, Redl [4] s'est approché de cet objectif. Il a utilisé une approche du type Lattice-Boltzmann dans un espace tridimensionnel. Il résout bien les équations de transport dans chaque phase à l'échelle microscopique, mais l'oxydation est traitée comme une réaction homogène se produisant au cœur de la phase fluide, ce qui annule la plupart des couplages locaux entre transport et réactions. En 2005, Debenest [5,6] a adopté une approche originale qui reposait sur une description détaillée, tridimensionnelle et à l'échelle microscopique. Il a pu ainsi mener des simulations directes en vue de caractériser de façon générale les nombreux régimes de propagation et déterminer des paramètres effectifs de transport à l'échelle de Darcy.

1.2. Vision macroscopique

Dans la plupart des cas, la vision macroscopique est adoptée. Dans ce cas précis, le milieu est vu comme un milieu continu [2]. Les équations comportent alors des paramètres effectifs, comme le coefficient de dispersion et caractérisent les champs macroscopiques représentant la moyenne volumique des quantités locales. Cependant, ces coefficients effectifs dépendent de la microstructure du milieu et des régimes d'écoulement et de réactions. Leur détermination requiert généralement la solution du système complet d'équations à la microéchelle dans un échantillon représentatif [6,7]. De plus, la validité des équations homogénéisées est souvent incertaine principalement à cause de la présence de forts gradients à l'échelle microscopique. Par exemple, l'épaisseur du front de réaction est de quelques tailles de grains et la température croît de plusieurs centaines de degrés dans cette zone. Finalement, le non équilibre local joue un rôle important à bien des égards, comme dans la formation des polluants et il ne peut être modélisé seulement par des simulations locales détaillées [8].

1.3. Notre stratégie

Nous allons modéliser les transports couplés de masse et de chaleur en milieux poreux réactifs en utilisant une description homogénéisée à l'échelle de Darcy. Le caractère non-équilibre local du transport de la chaleur sera pris en compte grâce à la mise en place d'un modèle à deux champs de température, un pour le gaz et un pour le solide. Le mécanisme réactionnel utilisé découlera des diverses expériences.

2. Analyse expérimentale

2.1. Expérience en lit fixe

L'expérience a été effectuée sur un réacteur avec flux d'air forcé en co-courant. Le réacteur a été rempli d'un milieu granulaire constitué de schiste bitumineux broyé (75%) avec des particules de diamètre compris entre 500 et 1000 microns et de sable (25%). Il est constitué d'un cylindre de 90mm de diamètre intérieur et 54mm d'épaisseur de paroi (Figure 1). Douze thermocouples ont été fixés et divisés en deux groupes. Le premier groupe (T1, T2, T3, T10, T11 et T12) a été placé sur l'axe du réacteur et la distance entre eux est de 45mm. Le second groupe disposé sur un périmètre horizontal du lit (T4 à T9) a été placé proche de la paroi à 11.5mm. Ces thermocouples ont pour fonction de mesurer qualitativement les pertes thermiques radiales. Lors de l'expérience, on peut prélever des gaz au cœur du réacteur et les analyser. On s'intéressera en particulier au monoxyde et au dioxyde de carbone.

2.2. Analyse thermogravimétrique (ATG) et calorimétrie différentielle à balayage (DSC)

Deux expériences comportant chacune une ATG et une DSC ont été réalisées, une sous atmosphère d'azote (Figure 2) et une sous air (Figure 3).

Sous atmosphère d'azote, on remarque les deux pyrolyses typiques du schiste bitumineux. La première pyrolyse va agir sur la partie organique du schiste tandis que la seconde agira sur les carbonates d'où son nom de décarbonatation. Cette dernière est fortement endothermique alors que la première ne l'est que très peu, on peut même la juger athermique. En supposant que chaque réaction est du premier ordre, on peut écrire la loi de variation de masse normalisée comme ceci :

$$\frac{dm}{dt} = -k_0 m \quad (1)$$

L'expression du taux de réaction est donnée par une loi d'Arrhenius :

$$k_0 = A \exp\left(-\frac{E_a}{RT_s}\right) \quad (2)$$

On peut alors grâce à une méthode graphique déterminer l'énergie d'activation et les facteurs de fréquence. Ces résultats sont donnés dans le Tableau 1.

	Facteur de fréquence	Energie d'activation
Pyrolyse I	$39.30s^{-1}$	$75490J$
Pyrolyse II	$3.9 \times 10^6 s^{-1}$	$199369J$

Tableau 1 : Energies d'activations et facteurs de fréquence des deux pyrolyses

Sous air, en plus de la décarbonatation, on remarque deux familles d'oxydations fortement exothermiques. Le premier pic dans le temps, correspond aux oxydations à basses températures agissant sur l'huile du schiste. Le second pic correspond aux oxydations à hautes températures, agissant sur la partie solide résiduelle de la matière organique.

3. Modélisation 1D de la combustion du schiste bitumineux

3.1. Transport

De nombreuses approximations ont été faites dans cette première étude. Celles-ci sont expliquées en détail dans [9]. Moyennant ce point, nous obtenons le système d'équations suivant :

$$\varepsilon_g \frac{\partial \rho_g}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (\rho_g v) = \dot{R}_g \quad (3)$$

$$\varepsilon_s \rho_s \frac{\partial Y_k}{\partial t} = \dot{R}_s \quad (4)$$

$$\varepsilon_g \frac{\partial \rho_g Y_k}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (\rho_g v Y_k) - \frac{\partial}{\partial x} \left(\rho_g D_k^* \frac{\partial Y_k}{\partial x} \right) = \dot{R}_{g,k} \quad (5)$$

$$v = - \frac{K}{\mu_g} \frac{\partial P_g}{\partial x} \quad (6)$$

$$\varepsilon_g (\rho C_p)_g \frac{\partial T_g}{\partial t} + (\rho C_p)_g v \frac{\partial T_g}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\lambda_g^* \frac{\partial T_g}{\partial x} \right) + \Gamma(T_g - T_s) + Q_g \quad (7)$$

$$\varepsilon_s (\rho C_p)_s \frac{\partial T_s}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\lambda_s^* \frac{\partial T_s}{\partial x} \right) + \Gamma(T_s - T_g) + Q_s \quad (8)$$

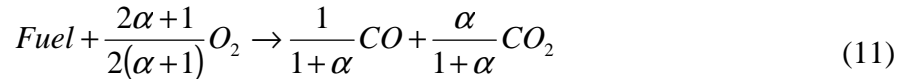
$$\rho_g = \frac{P_g M_g}{T_g R} \quad (9)$$

En combinant l'équation (3), (6) et (9) on obtient une équation sur la pression :

$$\frac{\varepsilon_g M_g}{RT_g} \frac{\partial P_g}{\partial t} - \frac{\varepsilon_g M_g P_g}{RT_g^2} \frac{\partial T_g}{\partial t} + \frac{\varepsilon_g P_g}{RT_g} \frac{\partial M_g}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} \left(-\rho_g \frac{K}{\mu_g} \frac{\partial P_g}{\partial x} \right) = \dot{R}_g \quad (10)$$

3.2. Chimie

L'ensemble des réactions d'oxydation est régi par une seule équation de la forme suivante :



La quantité initiale de Fuel présent est déterminée grâce à l'équation (11) connaissant la quantité d'oxygène consommé et en supposant que le mélange est stoechiométrique.

La réaction de décarbonatation est modélisée par l'équation (12) :



La quantité de carbonate initialement présent est déterminée grâce à l'ATG.

4. Résultats

Nous avons choisi trois résultats expérimentaux critiques qui nous ont servi à caler les différents paramètres liés à la chimie et qui demeuraient encore inconnus. Les trois données expérimentales retenues sont la vitesse d'avancement du front de combustion, la température maximale relevée et le ratio des concentrations $[CO_2]/[CO]$. La vitesse d'avancement du front est directement liée à la fraction massique initiale de fuel présente dans le milieu. La température maximale relevée dépend de l'enthalpie de réaction de la réaction (11). Enfin le ratio des concentrations $[CO_2]/[CO]$ découle seulement du paramètre α de cette même équation sachant que le dioxyde de carbone produit par la réaction (12) est fixé par cette équation.

On observe une bonne concordance entre les résultats expérimentaux et la simulation numérique sur certains points. Comme attendu, la vitesse d'avancement du front de combustion et la température maximale sont semblables. La montée en température dans le temps se fait de façon similaire. Par contre, on remarque que dans la simulation numérique, la chaleur « traîne » beaucoup plus en amont du tube que dans l'expérience. Ceci peut s'expliquer en partie par des pertes thermiques radiales importantes non prises en compte et mises en évidence par les mesures des thermocouples en proche paroi. On peut aussi remarquer que la température obtenue numériquement au second thermocouple est plus basse que celle obtenue expérimentalement. Ceci peut s'expliquer par le choix du mécanisme réactionnel de l'oxydation qui ne comporte qu'une seule réaction. En effet, sur la figure 3, on observe deux réactions d'oxydation. Nous avons décidé de ne modéliser que la seconde réaction qui domine pour des temps longs ; or la première oxydation est connue pour être active en début d'expérience et faciliter l'allumage. En outre, pour tenir compte des pertes thermiques on ajoute à nos équations (7) et (8) un terme de la forme $h\Delta T$. On observe un meilleur accord avec l'expérience mais la prise en compte des pertes thermiques radiales n'est pas encore satisfaisante.

5. Conclusions et perspectives

Nous avons réalisé un outil numérique, qui pour une situation expérimentale fixée, donne des résultats satisfaisants. Ainsi, on a pu montrer l'intérêt d'utiliser un tel outil pour résoudre le problème complexe de la combustion en lit fixe de schistes bitumineux. Cependant, cet outil ne peut être prédictif car si l'on change la proportion de sable dans le milieu, les déséquilibres thermiques locaux pourront être amplifiés. Ce changement va aussi engendrer une variation de la quantité de fuel et dans ce cas précis, le choix du paramètre α n'aura plus aucun sens. Nous devons alors modéliser la deuxième réaction d'oxydation par une réaction hétérogène solide/gaz produisant des oxydes de carbone et une réaction homogène oxydant le monoxyde de carbone en dioxyde de carbone. Ce mécanisme réactionnel est connu pour être celui de la combustion du charbon et dépend notamment de la présence d'eau qui catalyse cette réaction.

De plus, pour prendre en compte la première réaction d'oxydation nécessaire pour bien modéliser la phase d'allumage, il nous faudra ajouter une phase huile, mobile ou non. La première oxydation du « fuel » se produit entre l'huile et le gaz. Lorsque la seconde prend le pas sur celle-ci, elle ne joue qu'un rôle minime. Pour bien simuler cette transition, on doit modéliser correctement le transport et la réaction de huile à travers l'ajout d'une phase. Il faut alors prendre en compte la pyrolyse qui transforme une partie de cette huile en coke, nom donné au combustible de la seconde réaction d'oxydation.

6. Figures

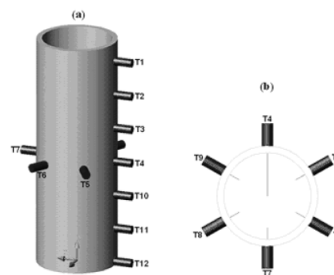


Figure 1 : Vue en 3D du réacteur (a) et vue du dessus (b)

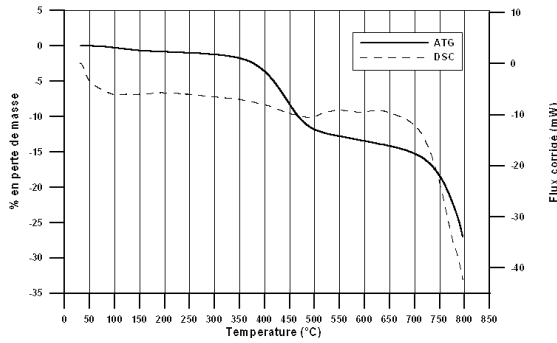


Figure 2 : ATG et DSC sous azote avec une vitesse de chauffe de 3°C/min

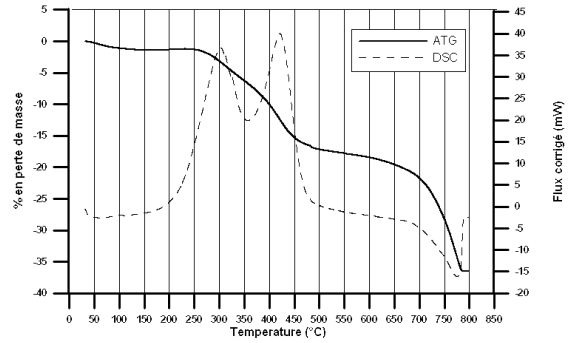


Figure 3 : ATG et DSC sous air avec une vitesse de chauffe de 3°C/min

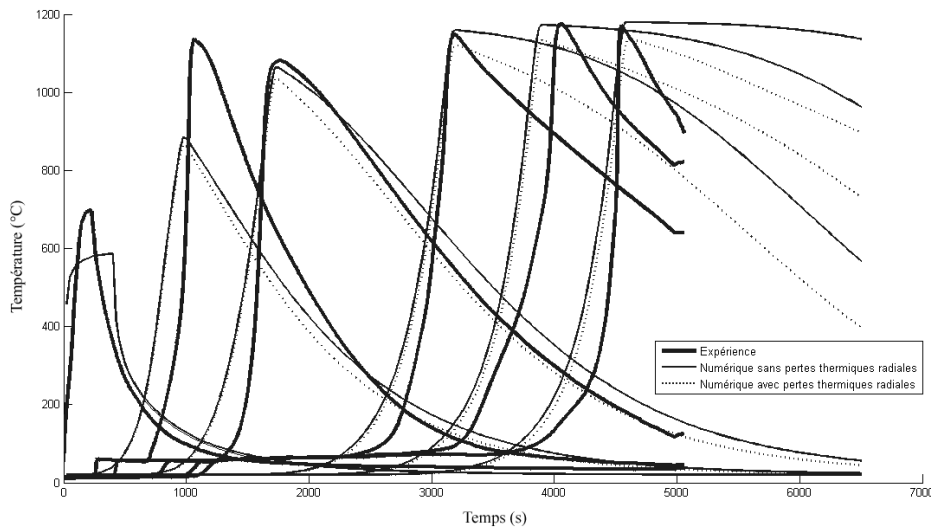


Figure 4 : Résultats numériques et expérimentaux pour les thermocouples T1, T2, T3, T10, T11 et T12.

Références

- [1] A. Foucault, J.F. Raoult, *Dictionnaire de Géologie*, DUNOD (2001).
- [2] T.J. Ohlemiller, Modeling of smoldering combustion propagation, *Prog. Ener. Combust. Sci.*, Vol. 11, 277-310 (1985).
- [3] C. Lu, Y. Yortos, The dynamics of combustion in porous media at the pore-network scale, *ECMOR VII* (Baveno, Italie, Septembre 2000).
- [4] C. Redl, In situ combustion modeling in porous media using lattice boltzmann methods, *ECMOR VIII* (Freiberg, Allemagne, Septembre 2002).
- [5] G. Debenest, V.V. Mourzenko, J.F. Thovert, Smouldering in fixed beds of oil shale grains. A three-dimensional microscale numerical model, *Combustion Theory and Modelling*, Vol. 9, 113-135 (2005).
- [6] G. Debenest, V.V. Mourzenko, J.F. Thovert, Smouldering in fixed beds of oil shale grains: governing parameters and global regimes, *Combustion Theory and Modelling*, Vol. 2, 301-321 (2005).
- [7] P.M. Adler, *Porous Media: Geometry and transports*, Butterworth-Heinemann (1992).
- [8] P.M. Adler, J.F. Thovert, Real porous media: local geometry and macroscopic properties, *Appl. Mech. Rev.*, Vol. 51, 537-585 (1998).
- [9] A. Lapene, Modélisation numérique de la combustion en lit fixe de schistes bitumineux, *Rapport de Master*, Université Paul Sabatier Toulouse (2006).