

Développement et validation d'un modèle de gazéification de charbon en lit fluidisé par une source de chaleur nucléaire

Ervin David GORDILLO*, Abdelhamid BELGHIT

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

*(auteur correspondant : egordill@univ-lr.fr)

Résumé - Le développement et validation d'un modèle de la gazéification du charbon de bois avec de la vapeur d'eau au sein d'un réacteur à lit fluidisé en état transitoire et permanent est présenté. Le modèle permet de prédire les profils des températures et des concentrations dans le réacteur. Il est basé sur un régime chimique, en prenant la réaction de « shift » comme celle qui contrôle le processus. La méthode des volumes finis est utilisée pour la solution numérique du modèle. Un test de sensibilité aux principales variables d'entrée du modèle a été mis en place, pour ensuite en valider les réponses et tendances avec les données de la littérature.

Nomenclature

A_B	Surface des bulles dans le réacteur, m^2	\dot{m}_s	Débit massique de solide à la sortie du réacteur, $kg\ s^{-1}$
A_R	Surface transversale du réacteur, m^2	r_{ib}	Vitesse de réaction du gaz i contenu dans les bulles, $kg\ m^{-3}\ s^{-1}$
A_S	Surface du solide dans le réacteur, m^2	r_{ie}	Vitesse de réaction du gaz i contenu dans l'émulsion, $kg\ m^{-3}\ s^{-1}$
C_{ib}	Concentration du gaz i dans les bulles, $kg\ m^{-3}$	r_s	Vitesse de réaction du solide, $kg\ m^{-3}\ s^{-1}$
C_{ie}	Concentration du gaz i dans l'émulsion, $kg\ m^{-3}$	t	Temps, s
C_g	Concentration totale du gaz, $kg\ m^{-3}$	T_b	Température des bulles, K
Cp_i	Capacité calorifique du gaz i , $kJ\ kg^{-1}\ K^{-1}$	T_e	Température du gaz dans l'émulsion, K
D_{ib}	Diffusion du gaz i dans les bulles, $m^2\ s^{-1}$	T_s	Température du solide, K
D_{ie}	Diffusion du gaz i dans l'émulsion, $m^2\ s^{-1}$	U	Vitesse du gaz à l'entrée du réacteur, $m\ s^{-1}$
h_{be}	Coefficient de convection entre les bulles et le gaz dans l'émulsion, $kJ\ s^{-1}\ m^{-2}\ K^{-1}$	U_B	Vitesse des bulles, $m\ s^{-1}$
h_{se}	Coefficient de convection entre le solide et le gaz dans l'émulsion, $kJ\ s^{-1}\ m^{-2}\ K^{-1}$	U_E	Vitesse du gaz dans l'émulsion, $m\ s^{-1}$
$\Delta H_{r,j}$	Chaleur de la réaction j , $kJ\ kg^{-1}$	<i>Symboles grecs</i>	
K_{eb}	Coefficient de transfert de masse entre l'émulsion et les bulles, s^{-1}	δ_b	Fraction de volume des bulles dans le réacteur, $m^3\ bulles / m^3\ du\ réacteur$
k_g	Coefficient de transfert de masse entre l'émulsion et le solide, s^{-1}	δ_e	Fraction de volume de l'émulsion dans le réacteur, $m^3\ émulsion / m^3\ du\ réacteur$
M	Masse de solide contenue dans le réacteur, kg	ρ_s	Densité du solide, $kg\ m^{-3}$
\dot{m}_e	Débit massique de solide à l'entrée du réacteur, $kg\ s^{-1}$		

1. Introduction

La valorisation de la biomasse constitue un enjeu important pour l'économie d'énergie et la préservation de l'environnement. Elle peut constituer une voie effective de production d'hydrogène

Malgré que l'hydrogène reste une source d'énergie secondaire (on le retrouve pas facilement dans la nature), quelque auteurs [1,2] l'ont qualifié comme la source d'énergie la plus propre, car sa molécule est la plus simple et que le seul produit de sa combustion est la vapeur d'eau. En même temps, avec le développement des piles à combustible, l'hydrogène peut être envisagé comme énergie électrique pouvant être stockée.

Il est bien connu qu'un gaz riche en hydrogène peut être produit à partir de la biomasse. Ce processus est nommé gazéification [3]. Il consiste à faire passer de la vapeur d'eau chaude à travers un lit de biomasse pour produire principalement de l'hydrogène et du monoxyde de carbone.

Etant donné que la gazéification est un processus endothermique, la source d'énergie est le premier souci à résoudre. Si l'on ne veut pas contribuer au réchauffement de la planète, la source d'énergie doit rester renouvelable. L'énergie nucléaire présentant les avantages d'une énergie renouvelable peut être appliquée. Elle permet d'utiliser toute la biomasse pour la gazéification, en évitant une combustion des composés carbonés, réduisant ainsi les émissions de dioxyde de carbone et en même temps augmentant l'efficacité du processus [1,4].

Le type du réacteur est un autre paramètre à considérer lors de sa conception. Le lit fluidisé permet un excellent contact entre particules solides et gaz augmentant les transferts de masse et chaleur. Ceci accroît les taux des réactions hétérogènes et les rendements en hydrogène.

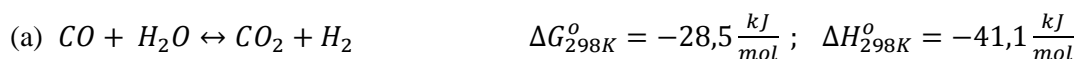
Le présent travail développe un modèle de la gazéification du charbon de bois avec de la vapeur d'eau en lit fluidisé pour la production d'hydrogène, l'énergie nucléaire est utilisée comme source d'énergie pour le processus endothermique. Ensuite, la sensibilité du modèle est testée par rapport aux principales variables d'entrée. Les résultats sont utilisés pour comparer les tendances et réponses avec ceux trouvés dans la littérature pour pouvoir valider le modèle.

2. Développement du modèle

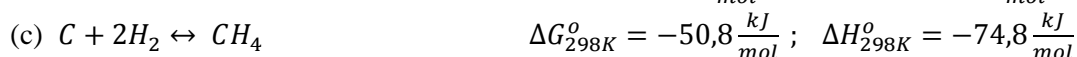
2.1. Réactions de gazéification

Le système utilisé est bien représenté par les quatre équations stœchiométriques suivantes :

- Réaction de « shift »



- Réactions du gaz à l'eau :



- Réaction de « Boudouard »



Toutes les autres réactions où ces composés interviennent peuvent être décrites à partir de ces quatre réactions de base. De ces réactions hétérogènes, la (b) est la plus rapide surtout entre 800°C et 1100°C. Quand la gazéification est menée pour les températures entre 600 et 800°C, les réactions (a) et (b) restent les plus importantes [5], car la réaction (c) a besoin de hautes pressions et la réaction (d) de hautes températures. La réaction shift est la seule réaction présente dans la phase homogène. Il est admis que cette réaction «contrôle» les concentrations des gaz à cause du fait qu'elle est proche de l'équilibre.

2.2. Bilans de matière et énergie de la gazéification

Si l'on prend un volume de contrôle fixé dans le réacteur $\Delta V = A_R \Delta Z$, on peut supposer que les transferts de masse et de chaleur ne sont effectués qu'entre les bulles et les gaz dans l'émulsion (en concordance avec la théorie de la fluidisation en deux phases) et entre les gaz de l'émulsion et la phase solide (cf. figure 1).

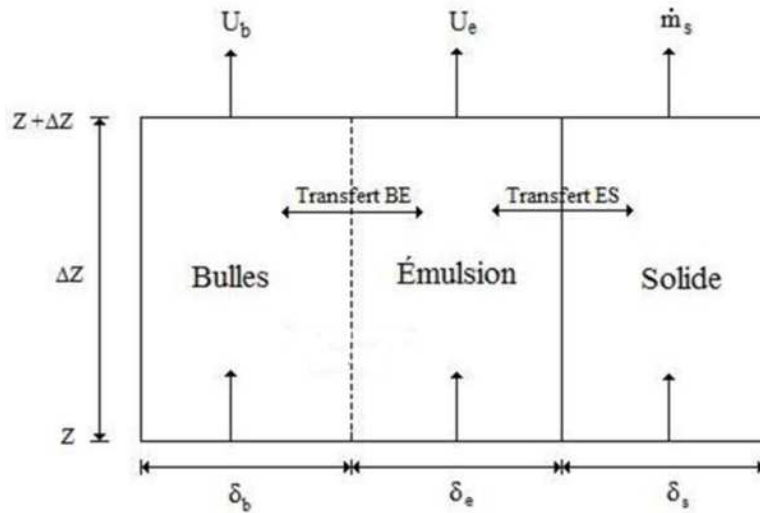


Figure 1. Volume de contrôle dans le réacteur

2.2.1. Bilans de matière

Un mélange du gaz i et autres gaz s'écoule dans le volume de contrôle. Le composé i peut être produit à cause des réactions chimiques à un taux r_j . Donc, le bilan de matière est décrit pour les trois phases comme suit :

- Gaz i contenu dans les bulles :

$$\frac{\partial(\delta_b C_{ib})}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial Z} \left(D_{ib} \frac{\partial C_{ib}}{\partial Z} \right) - \delta_b \frac{\partial(U_b C_{ib})}{\partial Z} - \delta_b K_{be} (C_{ib} - C_{ie}) + \delta_b \alpha_{i1} r_{b1} \quad (1)$$

- Gaz i contenu dans l'émulsion :

$$\frac{\partial(\delta_e C_{ie})}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial Z} \left(D_{ie} \frac{\partial C_{ie}}{\partial Z} \right) - \delta_e U_e \frac{\partial(C_{ie})}{\partial Z} - k_g (\delta_e C_{ie}) + \delta_e K_{be} (C_{ib} - C_{ie}) + \delta_e \alpha_{i1} r_{e1} + \frac{1}{A_R} \frac{dA_S}{dZ} \sum_{j=2}^4 \alpha_{ij} r_j \quad (2)$$

- Solide :

$$\frac{\partial M}{\partial t} = \dot{m}_e - \dot{m}_s + \frac{1}{A_R} \frac{dA_S}{dZ} \sum_{j=2}^4 \alpha_{ij} r_j \quad (3)$$

- Conditions initiales et aux limites :

$$\text{en } t = 0 \begin{cases} C_{ib} = C_{io} \\ C_{ie} = C_{io} \\ M = M_o \end{cases} \quad \text{en } Z = 0 \text{ et } t \geq 0 \begin{cases} C_{ib} = C_{io} \\ C_{ie} = C_{io} \end{cases} \quad \text{en } Z = H \text{ et } t \geq 0 \begin{cases} \frac{\partial C_{ib}}{\partial Z} = 0 \\ \frac{\partial C_{ie}}{\partial Z} = 0 \end{cases}$$

2.2.2. Bilans d'énergie

- Gaz i contenu dans les bulles

En prenant le même volume de contrôle, le bilan d'énergie dans les bulles est :

$$\sum_{i=1}^5 \frac{\partial}{\partial t} (\delta_b C_{ib} C p_i (T_b) T_b) = \frac{\partial}{\partial Z} (\delta_b U_B \sum_{i=1}^5 C_{ib} C p_i (T_b) T_b) - \frac{1}{A_R} \frac{dA_B}{dZ} h_{be} (T_b - T_e) + \delta_b r_{b1} \Delta H_{r,1} \quad (4)$$

- Gaz i contenu dans l'émulsion

$$\sum_{i=1}^5 \frac{\partial}{\partial t} (\delta_e C_{ie} C p_i(T_e) T_e) = \delta_e U_E \frac{\partial}{\partial Z} (\sum_{i=1}^5 C_{ib} C p_i(T_e) T_e) + \frac{1}{A_R} \frac{dA_B}{dZ} h_{be} (T_b - T_e) - \frac{1}{A_R} \frac{dA_S}{dZ} h_{se} (T_e - T_s) + \delta_e r_{e1} \Delta H_{r,1} + \frac{1}{A_R} \frac{dA_S}{dZ} \sum_{j=2}^4 r_j \Delta H_{r,j} \quad (5)$$

- Solide

$$\frac{\partial}{\partial t} (\delta_s \rho_s C p_s T_s) = \dot{m}_e C p_s T_s - \dot{m}_s C p_s T_s + \frac{1}{A_R} \frac{dA_S}{dZ} h_{se} (T_e - T_s) - \frac{1}{A_R} \frac{dA_S}{dZ} \sum_{j=2}^4 r_j \Delta H_{r,j} + \frac{\partial Q_r}{\partial Z} \quad (6)$$

- Conditions initiales et aux limites :

$$\text{en } t = 0 \begin{cases} T_b = T_{bi} \\ T_e = T_{amb} \\ T_s = T_{amb} \end{cases} \quad \text{en } Z = 0 \text{ et } t \geq 0 \begin{cases} T_b = T_{bi} \\ T_e = T_{bi} \\ T_s = T_{bi} \end{cases} \quad \text{en } Z = H \text{ et } t \geq 0 \begin{cases} \frac{\partial T_b}{\partial Z} = 0 \\ \frac{\partial T_e}{\partial Z} = 0 \end{cases}$$

3. Solution numérique

La méthode implicite des volumes finis est utilisée comme méthode numérique pour résoudre le système des équations. Donc, une discrétisation des équations aux dérivées partielles a été mise en place. Elle est basée sur le schéma « upwind » tel que proposé par Patankar [6].

4. Sensibilité du modèle

Les variables et leurs valeurs qui ont fait l'objet de cette partie sont résumées dans le Tableau 1. La pression a été fixée à 1 atm.

Température d'entrée de la vapeur (K)	Taux d'alimentation de biomasse (kg/h)	Taille de particule (mm)	Vitesse de fluidisation/ Vitesse minimale de fluidisation
1073-1173-1123	minimum	1	4,5
1173	minimum	1	2,5-3,5-4,5-5,5-6,5

Tableau 1 : Valeurs utilisées pour le test de sensibilité du modèle.

La température maximale était limitée par la température de sortie dans l'échangeur de chaleur couplé avec le réacteur nucléaire (VHTR). D'une autre part, pour des vitesses de fluidisation supérieures, l'hydrodynamique du réacteur risquait de changer et créer des instabilités. Afin de conserver l'hauteur du lit stable tout au long des simulations, le flux de biomasse minimum a été utilisé.

4.1. Sensibilité au taux d'alimentation de biomasse et à la température d'entrée de la vapeur

La cinétique des réactions du système prévoit que la réaction du gaz à l'eau (b) est la plus rapide et en même temps la réaction de « Boudouard » (d) est privilégiée par les hautes températures. Donc, le monoxyde de carbone est le produit principal pour les premiers instants du processus. Quand la concentration de monoxyde de carbone est suffisante pour réagir avec la vapeur d'eau, la réaction de « shift » a lieu et, de l'hydrogène est produit en même temps que la production de monoxyde de carbone diminue.

La figure 2 montre l'influence de la température et du taux d'alimentation du charbon pour une vitesse de $4,5 * U_{mf}$ et 1 mm de taille des particules, sur les concentrations des produits

principaux (hydrogène, monoxyde de carbone et dioxyde de carbone). Les effets du flux radiatif sont aussi inclus. Le rendement du gaz augmente quand la température de vapeur à l'entrée augmente, ceci est prévu par le comportement endothermique du système.

Quand la température de la vapeur est augmentée, la réaction du gaz à l'eau et de « Boudouard » sont favorisées, donc la quantité de monoxyde de carbone disponible pour réagir avec la vapeur d'eau augmente. Le rendement d'hydrogène est ainsi amélioré.

4.2. Sensibilité à la vitesse d'entrée de la vapeur

Une augmentation de la vitesse d'entrée de la vapeur d'eau entraîne une augmentation de la turbulence du système, par conséquent les transferts de masse et de chaleur sont favorisés. Ceci a comme conséquence l'augmentation de la production en hydrogène et monoxyde de carbone dû au réchauffement du solide (Cf. Figure 3).

Etant donné que la seule source d'énergie pour chauffer les solides dans le réacteur est la vapeur d'eau et que le système est globalement endothermique, la température décroît, spécialement si le taux de la réaction de gaz à l'eau (b) est augmenté.

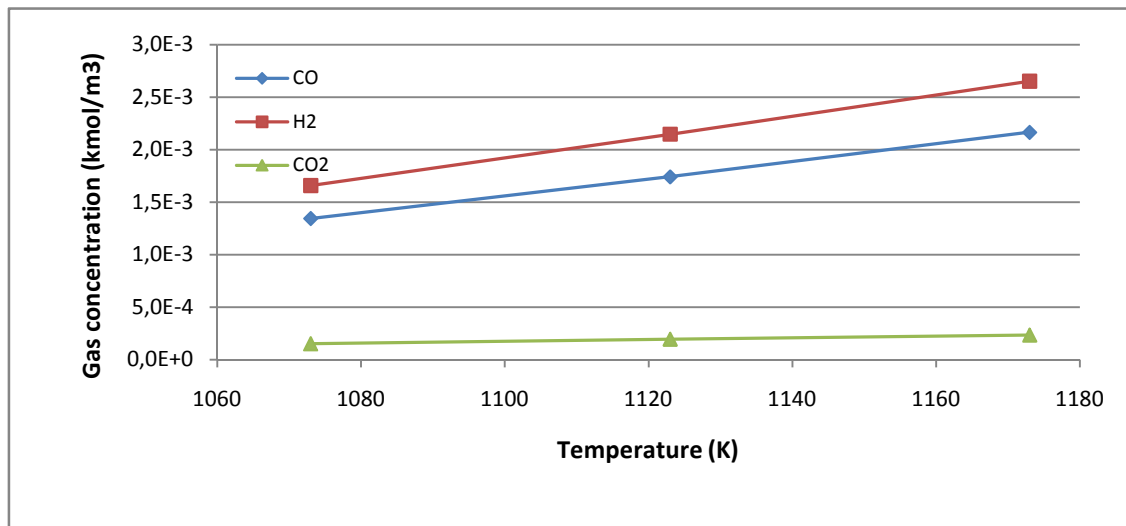


Figure 2. Effets de la température de la vapeur sur les concentrations des gaz à la sortie du réacteur $\dot{m}_e = \text{minimum}$

5. Validation du modèle

Une validation à partir des tendances et comportements a été mise en place pour une première évaluation du modèle.

Kaushal et al (2008) [7] ont développé un système composé de deux lits fluidisés, une partie du char produit au sein du gazéifieur est brûlée dans un réacteur conjoint, de cette manière il n'y a pas de dilution par azote ou combustion du gaz produit. La principale difficulté de cet arrangement pour valider notre modèle est que le char n'est pas laissé jusqu'au maximum de sa conversion ce qui peut changer les concentrations à la sortie du réacteur. Cependant, leurs résultats montrent qu'une diminution de la concentration de dioxyde de carbone est présente au fur et à mesure que la concentration de vapeur augmente.

Z'Graggen et Standfeld (2006) [8] ont conçu un réacteur qui utilise un rayonnement solaire concentré, donc aucun autre gaz n'est utilisé. Les résultats de leur travail peuvent être comparables à ceux du nôtre, la complication à laquelle on peut être confronté est que l'hydrodynamique des deux systèmes est complètement différente, ce qui peut entraîner une différence de conversion due au transfert de matière et chaleur. Dans leur travail, la vapeur

d'eau est le principal produit de la gazéification, et ensuite du monoxyde de carbone est produit. Ces résultats sont en accord avec ceux du modèle présenté ici.

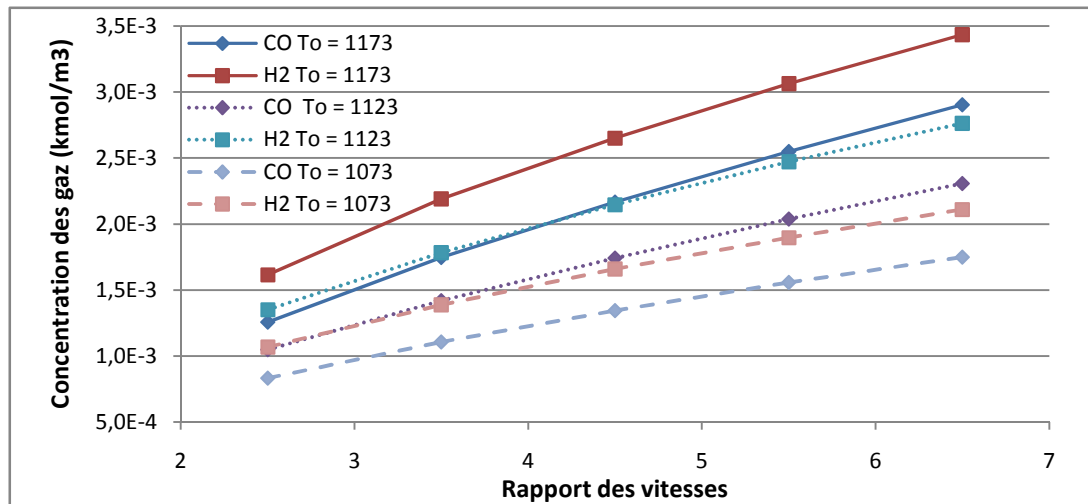


Figure 3. Effets du rapport des vitesses, 1 mm de diamètre des particules

6. Conclusion

Le modèle développé montre la sensibilité aux principales variables d'entrée. Ce modèle peut prédire les comportements des températures du gaz et solide ainsi que les concentrations des gaz en état transitoire ou permanent.

La technique innovante d'utiliser l'énergie nucléaire comme la source d'énergie pour la gazéification est encore très peu développée. Donc, les possibilités d'une validation avec les mêmes conditions d'opération du réacteur sont très réduites. Par contre, une possible comparaison des tendances des taux de production et des proportions de concentration a été mise en place pour une validation du modèle. Les tendances et réponses sont en bon accord avec les données trouvées dans la littérature pour des processus similaires.

Références

- [1] Lisbona P., Romeo L. Enhanced coal gasification heated by unmixed combustion integrated with an hybrid system of SOFC/GT. *Int. J. of Hydrogen Energy*. 33 (2008),5755-5764.
- [2] Shen L., Gao Y., Xiao J. Simulation of hydrogen production from biomass gasification in interconnected fluidized beds. *Biomass and Bioenergy*.32(2008),120-127.
- [3] F. Nicolino, *La faim, la bagnole, le blé et nous*, Fayard (2007).
- [4] Belghit A., Gordillo E.D., El Issami S. Coal steam-gasification model in chemical regime to produce hydrogen in a gas-solid moving bed reactor using nuclear heat, *Int. J. of Hydrogen energy*, 34 (2009), 6114-6119.
- [5] J.M. Encinar, J.F. Gonzalez, J. Gonzalez. Steam gasification of *Cyanara cardunculus* L.: influence of variables. *Fuel Proc. Tech.* 75 (2002), 27-43.
- [6] S. Patankar. *Numerical heat and fluid flow*, Mc Graw Hill, London (1980).
- [7] P. Kaushal, T. Pröll, H. Hofbauer. Model for biomass char combustion in the riser of a dual fluidized bed gasification unit: Part 1 – Model development and sensitivity analysis. *Fuel Process. Technol.* 89 (2008), 651-659.
- [8] A. Z'Graggen, A. Standfeld. A two-phase reactor model for steam gasification of carbonaceous materials under concentrated thermal radiation. *Chemical engineering and processing*. 47 (2008), 655-662.