

# L'auto-échauffement à l'échelle du lit fixe de particules

---

Publié dans : A. Bouzarour, V. Pozzobon, P. Perré, and S. Salvador, "Experimental study of torrefied wood fixed bed : Thermal analysis and source term identification," *Fuel*, 2018, vol. 234, pp. 247–255. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2018.06.115>"

Ce chapitre porte sur l'étude de la problématique d'auto-échauffement à l'échelle pilote d'un réacteur à lit fixe de particules de bois. L'objectif est de créer des situations d'échauffement spontané semblables à celles observées à l'échelle industrielle dans des silos de matières carbonées.

## 3.1 Matériels et méthodes

### 3.1.1 Matériels

#### Substrat étudié

Le choix de la matière étudiée s'est porté sur des plaquettes de hêtre fournies par l'entreprise Sowood localisée à Argenteuil en France. Ces plaquettes sont de forme régulière et parallélépipédique et de taille relativement petite. Leur diamètre équivalent est de  $3.04 \text{ mm} \pm 0.92 \text{ mm}$ . Ce dernier a été mesuré à l'aide d'un pied à coulisse pour un échantillon représentatif de 536 plaquettes de bois dans les trois dimensions [121]. Par ailleurs, l'analyse immédiate et élémentaire des plaquettes de hêtre brutes sont présentées dans le tableau 3.1.

TABLE 3.1 – Analyse immédiate et élémentaire des plaquettes de hêtre brutes

Analyse immédiate (% m, base sèche)			Analyse élémentaire (% m, base sèche)				
Matière volatile	Carbone fixe	Cendre	C	H	O	N	S
15.2	84.3	0.5	48.76	5.98	43.93	0.35	0.96

## Présentation du dispositif

L'approche expérimentale consiste à étudier la tendance à l'auto-échauffement des plaquettes de hêtre arrangées dans un réacteur à lit fixe de 12 L. A cette échelle, des phénomènes d'origines chimiques et physiques interviennent, à la fois, sous forme de réactions chimiques exothermiques ainsi que par des mécanismes de transferts de masse et de chaleur. A petite échelle, les mécanismes d'auto-échauffement sont généralement restreints aux réactions chimiques, ce qui ne correspond pas à la réalité industrielle.

Différents scénarii d'auto-échauffement ont été investigués en variant certaines conditions opératoires critiques. Durant ces essais, un suivi de l'évolution de la température en différents points au sein du lit est assuré à l'aide de thermocouples. De plus, les gaz émis pendant l'auto-échauffement sont analysés en sortie du réacteur.

Le dispositif expérimental est constitué des équipements schématisés dans la figure 3.1 et décrits dans ce qui suit. Une photographie du dispositif est représentée dans la figure 3.2.

- 1) *Four* : équipé de résistances électriques latérales qui chauffent le lit de bois par rayonnement. Un joint d'étanchéité force le passage du gaz d'atmosphère dans la cellule. La température maximale d'utilisation du four est de 800°C. Si cette température est dépassée, le réacteur, la sole et les thermocouples risquent d'être endommagés.
- 2) *Réacteur* : le réacteur contenant les plaquettes de hêtre est cylindrique, d'un diamètre interne de 19.6 cm et d'une hauteur de 40 cm. Celui-ci est raccordé au four à l'aide d'un joint résistant aux hautes températures. Le fond du réacteur est constitué d'une grille percée de trous de 3 mm de diamètre. L'entraxe entre chaque trou et son voisin est de 4 mm dans toutes les directions. Pour assurer les mesures de température dans le système étudié, des thermocouples ont été introduits dans le lit et dans le four (en bas et en haut du réacteur).
- 3) *Débitmètres* : le débit du gaz introduit dans le lit a été régulé via deux contrôleurs de débits massiques (Brooks SLA5851S) d'air et d'azote. Ces débitmètres sont connectés à un ordinateur doté d'un logiciel sur lequel les débits souhaités sont renseignés.
- 4) *Préchauffeur* : le gaz d'atmosphère injecté dans le réacteur passe préalablement dans un préchauffeur muni de résistances électriques. La température de ce dernier est contrôlée à l'aide d'un régulateur de température relié à un thermocouple positionné dans le préchauffeur. Sa température maximale d'utilisation est de 500°C. Au-delà, il y a risque de surchauffe des résistances et des joints.
- 5) *Condenseur et filtre à charbon actif* : les produits volatiles sortant du four sont envoyés vers un condenseur à contre courant où une fraction de ces gaz, les goudrons,

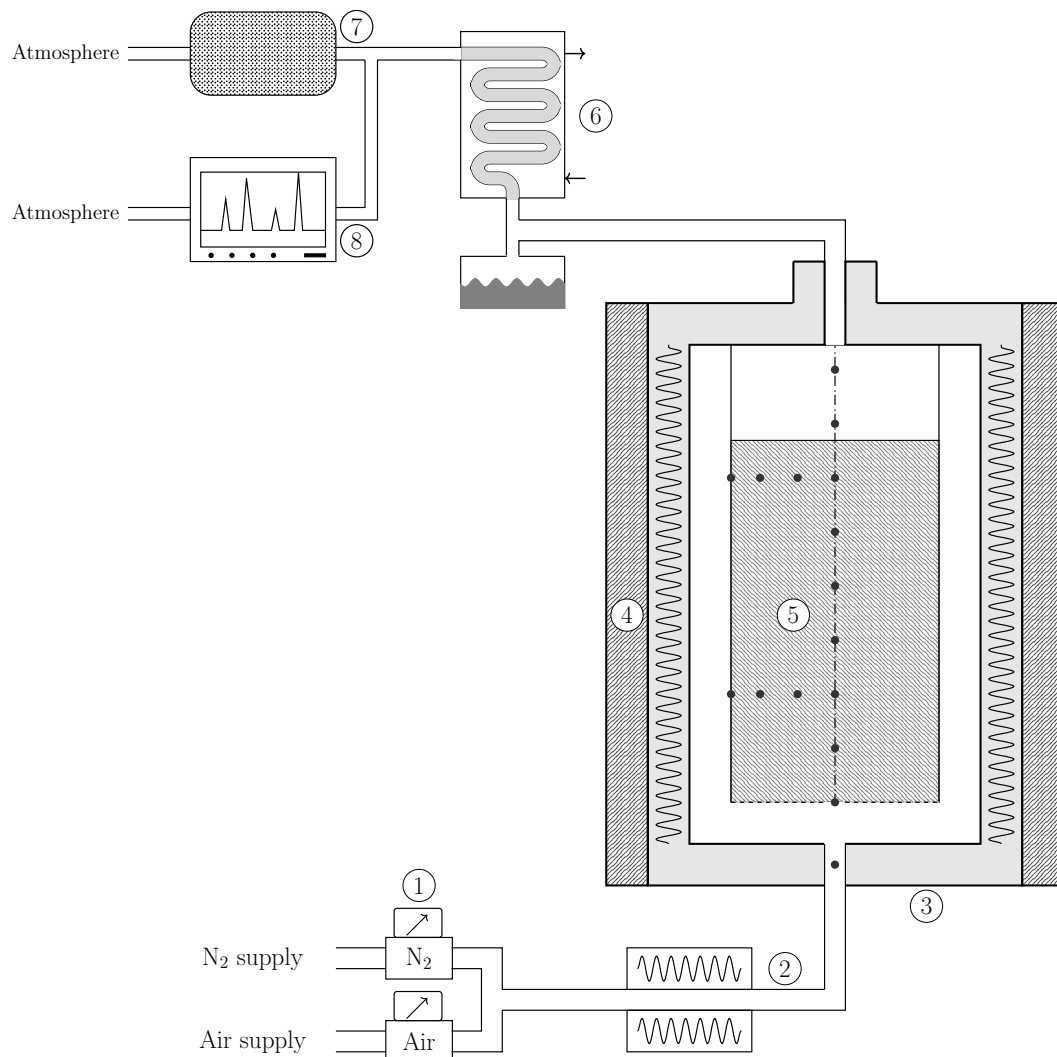


FIGURE 3.1 – Schéma du dispositif expérimental doté de : points noirs : thermocouples, 1) débitmètres massiques, 2) préchauffeur, 3) four, 4) matériau isolant, 5) réacteur à lit fixe (zone hachurée : lit de bois), 6) condenseur, 7) filtre à charbon actif, 8) analyseur de gaz

est condensée. La partie des gaz qui quitte le condenseur et épurée sur un filtre à charbon actif avant d'être rejetée dans l'atmosphère.

- 6) *Analyseur de gaz* : les réactions d'auto-échauffement produisent principalement du  $CO_2$  et du  $CO$ . L'analyse de ces gaz est assurée par un analyseur Non-Dispersif par adsorption dans l'InfraRouge (NDIR) à différentes longueurs d'ondes. L'évolution de la concentration d'oxygène à la sortie du réacteur est également suivie par un analyseur paramagnétique.



FIGURE 3.2 – Photographie du dispositif expérimental doté de : 1) préchauffeur, 2) four, 3) réacteur, 4) condenseur, 5) thermocouples, 6) filtre à charbon actif, 7) cryostat, 8) régulateur des résistances du préchauffeur, 9) système d'acquisition, 10) régulateur des résistances latérales du four, 11) enregistreur de données (MolyView), 12) analyseur de gaz, 13) commande pompe de prélèvement de gaz

### 3.1.2 Méthodologie

#### Protocole expérimental

L'approche expérimentale peut être divisée en deux étapes. La première étape vise à préparer le bois brut avant de le soumettre à l'auto-échauffement. L'échantillon est torréfié puis refroidi à une température avoisinant 150°C. La seconde étape consiste à créer une situation d'auto-échauffement par l'injection d'un gaz oxydant. Il est important de noter que l'auto-échauffement est créée et étudié pour un bois fraîchement torréfié n'ayant pas été en contact avec l'oxygène auparavant. En effet, en pratique, le bois torréfié est refroidi à l'air dès sa production bien avant son stockage [122].

#### Préparation du substrat

- Séchage : A chaque essai, 3,5 kg de plaquettes de hêtre sont séchées à 103,5°C dans une étuve ventilée pendant la nuit. Une masse de plaquettes sèches autour de 3,1 kg est enfournée dans le réacteur. Le lit de substrat occupe une hauteur d'environ 35 cm.
- Torréfaction : Une fois les plaquettes introduites dans le réacteur, celui-ci est fermé. La charge est chauffé à 5°C/min jusqu'à une température de 250°C. Cette tempéra-

ture est maintenue pendant 2h sous atmosphère inerte ( $N_2$ ). Après plusieurs tests, une rampe de température du préchauffeur a été fixée à  $7,7^\circ\text{C}/\text{min}$  pour une température de pallier de  $T_{\text{préchauffeur}} = 385^\circ\text{C}$ . Le lit de plaquettes est traversé par un flux d’azote préchauffé de débit commun pour toute les manipulations :  $30 \text{ NL}/\text{min}$ . A l’issue du prétraitement, une perte de masse d’environ  $8.14 \%$  indique que la torréfaction réalisée est douce [123].

- Refroidissement : Ensuite, le lit est refroidi sous  $N_2$  à une température avoisinant  $150^\circ\text{C}$  au sein du lit. Pour ce faire, nous baissons la température du four à  $150^\circ\text{C}$ . Le préchauffeur est éteint pendant 40 min puis rallumé et fixé à  $220^\circ\text{C}$  pendant 3h, soit le temps requis pour atteindre une certaine homogénéité de la température autour de  $150^\circ\text{C}$  à différentes position du lit.

**Création d’un auto-échauffement contrôlé** Après stabilisation de la température du lit, un flux de gaz oxydant est injecté à l’entrée du réacteur. Ce gaz est composé soit d’air soit d’un mélange d’air et d’azote. Le gaz oxydant soumis ainsi que les gaz sortant du réacteur durant l’auto-échauffement sont analysés par l’analyseur IRND et l’analyseur paramagnétique, respectivement.

Durant cette phase, la présence d’oxygène peut entraîner deux situations : soit on a un léger auto-échauffement maîtrisé qui parvient à se dissiper ou alors ce phénomène exacerbé engendre une auto-combustion du lit de bois. Dans le but d’examiner ces situations d’auto-échauffement, l’intérêt est porté sur le suivi de l’évolution de la température et l’analyse de gaz.

## Conditions opératoires

L’auto-échauffement a été étudié à une température avoisinant  $150^\circ\text{C}$  dans le lit de plaquettes de hêtre. Cette température représente la condition thermique initiale de la phase d’auto-échauffement. La présente approche vise à investiguer l’influence de la fraction d’oxygène et du débit de gaz oxydant sur l’auto-échauffement du lit de bois torréfié. D’autres paramètres ont été examinés dans la littérature à l’exemple de la taille des particules [57], la température de torréfaction [16], le type de biomasse [7, 124] et le temps de séjour [7].

Pour l’essai de référence, ces paramètres ont été sélectionnés de façon à créer un auto-échauffement initialement léger qui s’intensifie et donne lieu à une combustion spontanée. Pour le reste des essais, l’effet de chaque paramètre a été investigué séparément en variant à chaque fois l’un des paramètres précédemment mentionnés. Les conditions opératoires sont présentées dans le tableau 3.2.

TABLE 3.2 – Conditions expérimentales retenues pour chaque expérience

Essais	O <sub>2</sub> (% vol)	Q <sub>air</sub> (NL/min)	Q <sub>N<sub>2</sub></sub> (NL/min)	Q <sub>gaz oxydant</sub> (NL/min)
Réf	20,95	20	0	20
O <sub>2</sub> – –	7	6,7	13,3	20
O <sub>2</sub> –	14	13,4	6,6	20
Q <sub>gaz</sub> –	20,95	10	0	10
Q <sub>gaz</sub> +	20,95	30	0	30

### Analyse théorique

Afin de déterminer le terme source correspondant à l'auto-échauffement du lit de bois, une analyse théorique des données thermiques a été menée. Cette approche repose sur le bilan local de chaleur (éq 3.1.1) en calculant, à partir du champs de température, chacun des termes qu'il comporte hormis le terme source qui est déduit de cette équation (éq 3.1.2).

$$\underbrace{(\epsilon\rho_g c_{pg} + (1 - \epsilon)\rho_s c_{ps}) \frac{\partial T}{\partial t}}_{\text{Terme d'accumulation}} + \underbrace{\nabla \cdot (\rho_g c_{pg} T \vec{v})}_{\text{Terme d'advection}} = \underbrace{\lambda_{eff} \nabla^2 T}_{\text{Terme de diffusion}} + \underbrace{\Pi}_{\text{Terme source}} \quad (3.1.1)$$

$$\Pi = (\epsilon\rho_g c_{pg} + (1 - \epsilon)\rho_s c_{ps}) \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_g c_{pg} T \vec{v}) - \lambda_{eff} \nabla^2 T \quad (3.1.2)$$

Pour ce faire, les données thermiques expérimentales ont été lissées dans le temps en utilisant le filtre linéaire passe-bas de Butterworth d'ordre 1, de fréquence 30 Hz et de fréquence de coupure de 0.5 Hz. Cette étape est importante car le champs de température est par la suite dérivé dans l'espace et le temps. Cette méthode présente un avantage qui est celui d'utiliser uniquement le bilan énergétique local : ceci permet de déterminer le terme source sans recourir à une résolution de l'équation dans le domaine défini.

De plus, le fait que le bilan local de la chaleur repose sur des quantités évaluées dans le réacteur, il n'est pas nécessaire de renseigner les conditions aux limites dans le système étudié. Ceci est avantageux notamment pour les situations complexes comme dans le cas présent, étant donné que les conditions aux limites sont difficiles à obtenir avec précision. Une fois les termes sources déterminés, ceux qui suivent une tendance stable ont été extraits et ont servi de données d'entrée dans l'algorithme d'optimisation PSO (Particle Swarm Optimization) afin de proposer une expression régissant le terme source en fonction de la température et de la fraction d'oxygène. En effet, ces deux paramètres influencent généralement le terme source. Le débit de gaz oxydant ne devrait pas avoir d'influence dans le cas où la variation de la fraction d'oxygène dans le gaz oxydant est

négligeable dans la gamme de débit utilisé ici.

Cette méthode d'optimisation est inspirée de l'observation du comportement social d'espèces animales [125]. Chaque particule a tendance à explorer l'espace de recherche de façon balistique en interagissant et en apprenant des autres particules. Chaque particule mémorise sa meilleure expérience et celle de l'essaim. Cet algorithme est défini comme étant la somme des poids relatifs de trois mécanismes caractérisants les particules : inertie, mémoire et socialisation. Dans le cas présent, les poids de ces paramètres ont été fixés à 0.6, 1 et 1 respectivement, en se référant aux travaux de Shi et Eberhart [126] dans lesquels un terme d'inertie de 0.6 produit la plus rapide convergence en moyenne. Par ailleurs, le nombre de particules retenu est de 8000 particules pour un espace de recherche des paramètres ( $A$ ,  $Ea$  et  $n$ ) :  $10^{-20}$  à  $10^{10}$ , 30 000 à 300 000 et de -1 à 2 respectivement.

Le lit de plaquettes est considéré comme un milieu poreux soumis à un flux convectif forcé constant. Selon le système étudié ici, le bilan énergétique local définit la dérivée temporelle de l'énergie comme étant la somme des trois termes suivants : les transferts de chaleur convectif et diffusif et la production/ consommation de la chaleur par le milieu (éq. 3.1.4).

En supposant que le flux gazeux est homogène sur toute la section, tous les termes du côté droit de l'équation (3.1.2) peuvent être quantifiés sur la base de l'évolution spatiale et temporelle de la température ( $\frac{\partial T}{\partial t}$ ,  $\nabla T$  and  $\nabla^2 T$ ).

Bien entendu, la méthode proposée peut être appliquée sur des positions du lit dont le champ de température est connu, étant expérimentalement mesuré. Néanmoins, pour les positions où le champ de température est inconnu, l'estimation du terme source requiert un traitement mathématique plus abouti.

En tenant compte de la géométrie cylindrique bidimensionnelle<sup>1</sup> du lit de bois, l'équation 3.1.2 peut être reformulée ainsi (éq. 3.1.3)

$$\Pi = (\epsilon \rho_g c_{pg} + (1 - \epsilon) \rho_s c_{ps}) \frac{\partial T}{\partial t} + \rho_g c_{pg} v_g \frac{\partial T}{\partial z} - k_{eff} \left( \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} \right) \quad (3.1.3)$$

L'équation précédente peut être résolue à chaque position (i) pour chaque instant (n) :

---

1. Dans un premier temps, une configuration unidimensionnelle a été utilisée afin de d'estimer le terme source. Néanmoins, une déviation a été observée. Une approche 2D a été requise, démontrant que le diamètre du réacteur étant grand, la diffusion thermique radiale doit être prise en compte

$$\Pi_i^n = (\epsilon c_{pg} \rho_g + (1 - \epsilon) c_{ps} \rho_s) \left. \frac{\partial T}{\partial t} \right|_i^n + \rho_g c_{pg} \|\vec{v}\| \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_i^n - k_{eff} \left( \left. \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right|_i^n + \frac{1}{r} \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_i^n + \left. \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} \right|_i^n \right) \quad (3.1.4)$$

Afin d'évaluer le gradient et le laplacien dans l'équation 3.1.4, le champs de température a été reconstruit localement en utilisant un polynôme du second degré. Nous avons choisi ce polynôme car il permet de calculer le laplacien tout en filtrant le bruit des dérivées spatiales de température.



Pour ce faire, nous avons d'abord reconstruit le profil axial par interpolation des températures mesurées à l'aide de polynômes locaux du second degré dans chaque  $dz$  (Eq. 3.1.5).

$$T(r = 0, z) = a_i z^2 + b_i z + c_i \quad (3.1.5)$$

Avec  $a_i$ ,  $b_i$  et  $c_i$ , les coefficients des polynômes calculées entre chaque température mesurée à  $z = 0, 10, 15, 20, 25$  et  $30$  cm.

Le profil axial a ensuite été moyenné avec les températures mesurées à mi-rayon et à la paroi pour reconstruire les profils selon  $z$ . Enfin, pour reconstruire le profil radial, nous utilisons un polynôme du second degré ( $T(r)=a'r^2+b'r+c'$ , où  $a'$ ,  $b'$  et  $c'$  sont les coefficients du polynôme). Ces coefficients sont estimés à partir des profils longitudinaux, en posant les conditions aux limites suivantes (Eq. 3.1.6).

$$\begin{cases} \frac{dT}{dr} = 0 & (\text{à } r=0, \text{ condition axisymétrique}) \\ T(r, z) = T(R/2, z) & \text{à } r=R/2 \\ T(r, z) = T(R, z) & \text{à } r=R \end{cases} \quad (3.1.6)$$

La figure 3.3 illustre le champs de température reconstruit sur une carte en 2D avec des isothermes représentées par des isolignes. Le champs de température résultant de cette reconstruction possède les caractéristiques attendues en présence d'un terme source dans un système de géométrie cylindrique. Les plus significatives sont le gradient thermique radial dû à la dissipation de chaleur aux parois du réacteur et la hausse de température le long de l'axe de bas en haut du fait de la convection.

L'étape suivante a été de dériver le champs de température afin de calculer les dérivées spatiales. Les propriétés physiques variant avec la température,  $k_{eff}$  et  $\rho_g$  ont été évaluées localement (Eq. 3.1.7 and 3.1.8). Les valeurs des propriétés physiques restantes sont présentées dans le tableau 3.3.

$$k_{eff\ i}^n = \epsilon k_g + (1 - \epsilon)(k_s + 16/3\sigma d_p T_i^n^3) \quad (3.1.7)$$

$$\rho_{g\ i}^n = \frac{PM_g}{RT_i^n} \quad (3.1.8)$$

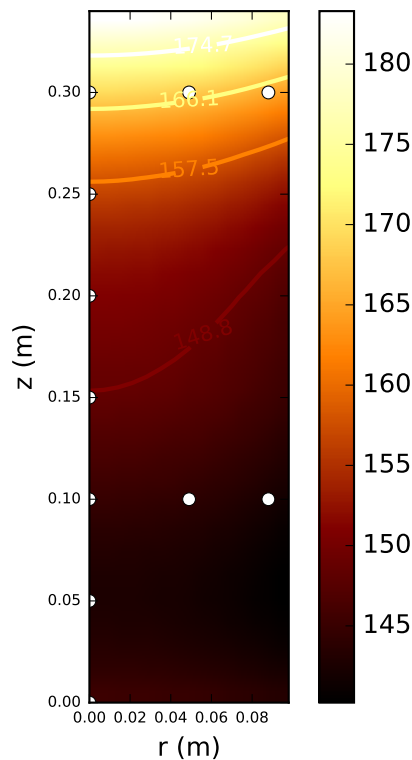


FIGURE 3.3 – Champs de température reconstruit pour l'essai de référence 20 min après l'injection d'air . Points blancs : thermocouples

### Validation de l'analyse théorique

Afin de tester la pertinence de cette approche, une procédure de validation a été réalisée. Les particules de biomasse ont été remplacées par un matériau inerte : des billes d'alumine dont les propriétés physiques sont mentionnées dans le tableau 3.3. Le lit de billes d'alumine a été exposé aux mêmes conditions de température et de débits de gaz oxydants que pour les plaquettes de bois.

Ces billes d'alumine étant inertes, la pertinence de la méthode d'évaluation du terme source sera démontrée si un terme source constant avoisinant  $0 \text{ W/m}^3$  est obtenu. Ainsi, le même algorithme a été alimenté des données thermiques correspondantes. Les résultats de la méthode de validation sont illustrés dans la figure 3.4. Cette figure rapporte les quatre termes source du bilan de chaleur, comme exprimé dans l'éqt 3.1.4 à quatre hauteurs dans le réacteur. On remarque que les termes d'accumulation, de convection et de diffusion se compensent l'un l'autre et génèrent un terme source quasi-nul partout dans le lit. Par conséquent, le fait que cette méthode de traitement produise un terme source quasi-nul au sein d'un matériau inerte révèle la qualité de la méthode d'analyse proposée

Symbole	Propriété	Valeur	Dimension	Note
$\rho_s c_{ps}$	Capacité thermique du bois torréfié	$133,35 \times 10^4$	J/K	Mesurée par DSC modulée
$\rho_a c_{pa}$	Capacité thermique des billes d’alumine	$181,30 \times 10^4$	J/K	Mesurée dans [127]
$\epsilon_s$	Porosité du lit de bois	0,637	-	Mesurée par saturation
$\epsilon_a$	Porosité du lit d’alumine	0,452	-	Mesurée dans [127]
$k_s$	Conductivité thermique du bois	0,1046	W/m/K	Estimée dans [128]
$k_a$	Conductivité thermique de l’alumine	0,447	W/m/K	Mesurée dans [127]
$k_{air}$	Conductivité thermique de l’air	$33,5 \times 10^{-3}$	W/m/K	Mesurée dans [129]
$k_{N_2}$	Conductivité thermique de l’azote	$33,6 \times 10^{-3}$	W/m/K	Mesurée dans [130]
$c_{p(air)}$	Chaleur spécifique de l’air	$1,018 \times 10^3$	J/kg/K	Mesurée dans [131]
$c_{p(N_2)}$	Chaleur spécifique de l’azote	$1,047 \times 10^3$	J/kg/K	Mesurée dans [132]
$d_p$	Diamètre moyen de la sphere	$3,04 \times 10^{-3}$	m	Mesuré
$\sigma$	Constante de Stefan-Boltzmann	$5,67 \times 10^{-8}$	W/m <sup>2</sup> /K <sup>4</sup>	-

TABLE 3.3 – Propriétés physiques du bois et de l’alumine

qui peut être appliquée pour le cas étudié d’un le lit de bois.

## 3.2 Résultats expérimentaux

### 3.2.1 Analyse thermique de l’auto-échauffement

#### Essai de référence

L’évolution de la température durant l’essai de référence est tracée à différentes hauteurs (10, 20 et 30 cm) au niveau de l’axe du réacteur (voir fig. 3.5). Nous avons choisi ces points afin de décrire la réponse thermique du système à des positions représentatives des parties basse, moyenne et haute du lit. Au premier abord, on remarque que la température du lit suit celle du four avec un délai de réponse. La température augmente après une phase de séchage autour de 70°C jusqu’au palier de torréfaction où la température plafonne autour de 250°C.

Initialement, l’élévation de la température est plus rapide dans les parties basses du lit (à 10 et 20 m de hauteur). A l’approche de la fin de la torréfaction, la température dans les parties hautes du lit dépasse celle en bas du lit. Ensuite, le système est refroidi à une température stable avoisinant 150°C. La phase d’auto-échauffement débute à l’injection du gaz oxydant. Dans le cas présent, de l’air est introduit dans le réacteur. La température augmente progressivement, de plus en plus avec la hauteur du lit. A basse et moyenne hauteurs (10 et 20 cm), les températures relevées augmentent légèrement, de 3 à 10°C, respectivement. En haut du lit (30 cm), la température augmente linéairement et plus rapidement jusqu’à atteindre l’auto-combustion au bout de 2 h d’auto-échauffement intense comme le montre la figure 3.6.

Cette expérimentation a été reproduite dans les mêmes conditions. Les résultats rapportés dans la figure 3.7 indiquent, qu'en maintenant les mêmes conditions opératoires, le comportement thermique du lit est similaire à celui observé à l'essai précédent.

L'exposition au gaz oxydant provoque des réactions exothermiques qui sont à l'origine de la hausse de température au sein du lit de bois. La chaleur générée est transférée, par le gaz, à travers le lit de particules de bas en haut et s'accumule en haut où un emballement thermique est entraîné. Il est à noter que tout au long des expérimentations, la composition du gaz peut être considérée comme constante dans le lit avec une déplétion de l'oxygène inférieure à 0.2% selon la mesure relevée sur l'analyseur de gaz. Ainsi, aux débits utilisés ici, la fraction d'oxygène peut être considérée uniforme dans le lit et égale à celle d'entrée.

### **Influence du débit de gaz de ventilation sur l'auto-échauffement**

La figure 3.8 montre l'effet de l'augmentation du débit du gaz oxydant de 20 à 30 NL/min. La température augmente moins qu'à l'essai de référence. Seulement 5°C, 10°C et 15°C de hausse de température sont observés à l'axe du lit à 10, 20 et 30 cm, respectivement. En revanche, la diminution du débit de gaz à 10 NL/min cause un auto-échauffement rapide en haut du lit. Ce phénomène s'accroît pendant 1 h, après quoi un stade d'emballement thermique est atteint (fig. 3.9). Simultanément, à 20 cm de haut, la température augmente de 20°C. Dans la même logique, la partie basse du lit est faiblement sujette à l'auto-échauffement.

Ces résultats peuvent être expliqués comme suit. Un débit de gaz oxydant élevé favorise le transfert de chaleur convectif. Si on se rapporte à la fraction d'oxygène, les analyses de gaz en sortie montrent que celle-ci reste uniforme dans le lit et très proche de celle de l'air. Le débit ventilé n'impacte donc pas la consommation d'oxygène mais plutôt la dissipation de la chaleur. En effet, à fort débit, la chaleur produite est aisément évacuée à travers le lit de particules assurant un refroidissement rapide.

D'autre part, la diminution du débit de gaz limite les transferts convectifs en induisant une faible évacuation de la chaleur produite. De ce fait, l'accumulation de la chaleur conduit à une auto-combustion en haut du lit.

### **Influence de la présence d'oxygène sur l'auto-échauffement**

Les résultats associés à l'essai réalisé à 14% d'oxygène sont présentés dans la figure 3.10. La température de lit augmente légèrement suite à l'injection de l'oxygène. Seule-

ment 10°C et 5°C d’auto-échauffement ont été observés en haut et à mi-hauteur du lit. De la même manière, à 7% d’O<sub>2</sub>, la température augmente plus faiblement, de seulement 5°C en haut du lit (fig. 3.11).

Nous pouvons en déduire que le phénomène d’auto-échauffement est étroitement lié à la fraction d’oxygène dans le milieu. Ceci est dû à l’exothermicité des mécanismes résultant de l’interaction entre l’oxygène et le bois. De ce fait, il est important de quantifier la chaleur générée pendant l’auto-échauffement. C’est en ce sens que s’inscrit l’approche suivante.

### Résultats de l’analyse théorique

**Estimation de la production de chaleur pendant l’auto-échauffement** Pour l’essai de référence, chaque terme du bilan de chaleur est tracé à trois hauteurs sur l’axe du réacteur (fig. 3.12). Une fois le gaz oxydant injecté, la production de la chaleur est détectée à différents niveaux du lit. Celle-ci peut soit décroître soit s’intensifier. A 15 cm, la chaleur libérée augmente modérément jusqu’à 2000 W/m<sup>3</sup>, puis diminue légèrement et converge vers une valeur stable. La production de la chaleur à 20 cm augmente plus intensément et se stabilise après une faible baisse. Plus haut dans le lit, à 25 cm, la chaleur générée marque une continuelle hausse et dépasse 4000 W/m<sup>3</sup>. Ces résultats sont en accord avec la logique de l’évolution des températures enregistrées. De plus, dans [60], le terme source calculé sur la base du bilan de chaleur pour un stock de charbon de 15 tonnes soumis à l’air est d’environ 2000 W/m<sup>3</sup>, soit du même ordre de grandeur que les terme source estimés ici. Néanmoins, la position à laquelle ce terme source a été estimé n’a pas été renseignée dans cette étude.

**Optimisation des paramètres cinétiques et de la chaleur de réaction** L’évolution du terme source étant marquée par une tendance stable dans un intervalle de temps allant de 5 à 15 min après introduction de l’oxygène, il est possible d’extraire une valeur représentative du terme source d’auto-échauffement du bois fraîchement torréfié pour chaque essai. Par la suite, ce terme a été corrélé aux conditions de température et de fraction d’oxygène.

En supposant que la chaleur générée est principalement régie par une réaction d’oxydation, le terme source peut être formulé selon une loi d’Arrhénius (éq. 3.2.1).

$$\Pi = \Delta H \times \epsilon \times A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \times \rho_{O_2}^n \quad (3.2.1)$$

Alimenté par les données thermiques expérimentales, l’algorithme PSO a été appliqué afin de déterminer les paramètres optimaux de l’équation 3.2.1. Ces paramètres sont obtenus

avec une erreur moyenne de 7.2% recouvrant toutes les valeurs de température et de fraction d’oxygène (fig. 3.13) :  $E_a = 99.8$  kJ/mol,  $A = 2.50 \times 10^9$  s<sup>-1</sup> ( $\frac{kg}{m^3}$ )<sup>(1-n)</sup>,  $n = 0.734$ ,  $\Delta H = 14.1$  MJ/kg<sub>O<sub>2</sub></sub> [133].

La chaleur de réaction retenue ici est tirée d’une étude qui estime ce paramètre pour un échantillon de charbon soumis à une atmosphère oxydante à basse température (25-140°C) dans un réacteur adiabatique [133]. Basée sur une forme simplifiée du bilan énergétique, cette estimation correspond aux valeurs de chaleur de chimisorption suggérées dans la littérature, allant de 2.6 à 13 MJ/kg<sub>O<sub>2</sub></sub>, comme rapportées dans [3]. En se basant sur une analyse calorimétrique, Kaji et al. [43] ont évalué la chaleur mise en jeu pendant l’oxydation du charbon allant de 9.8 à 11.8 MJ/kg<sub>O<sub>2</sub></sub>.

La valeur de l’énergie d’activation optimisée, de 99.8 kJ/mol, est proche de celles proposées dans la littérature comprises entre 60 et 190 kJ/mol [124, 134] pour le charbon, le char et la biomasse. Afin d’appuyer la pertinence de l’énergie d’activation optimisée, nous avons évalué le ratio du taux de consommation d’oxygène à deux différentes températures (150 et 160°C) comme présenté dans l’équation 3.2.2.

$$\frac{r_1}{r_2} = \exp\left(-\frac{E_a}{R}\left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1}\right)\right) \quad (3.2.2)$$

Où  $r$  est le taux de consommation d’oxygène et  $i= 1, 2$  désigne la température du système fixée à 160°C et 150°C respectivement. Cette approche montre que le taux de réaction double presque ( $r_1/r_2 = 1.92$ ) en élevant la température de seulement 10°C. Cette forte sensibilité à la température est en accord avec les résultats expérimentaux observés ici aussi bien qu’avec les observations d’autres auteurs [49].

Par ailleurs, le fait que les valeurs du terme source ne dépendent pas du débit du gaz oxydant suggère que les paramètres cinétiques proposés sont intrinsèques au phénomène étudié. Ainsi, les paramètres cinétiques proposés forment une équation d’utilisation rapide décrivant la chaleur générée par des plaquettes de hêtre torréfiées.

### 3.2.2 Analyse des gaz produits pendant l’auto-échauffement

Durant la phase d’auto-échauffement, les gaz principalement émis (CO<sub>2</sub>, CO) sont analysés en sortie du réacteur (voir fig. 3.14). A l’essai de référence, suite à l’injection d’oxygène, une production de CO<sub>2</sub> et de CO est détectée. La fraction de ces gaz augmente faiblement jusqu’au bout d’environ 1h40min d’auto-échauffement. La fraction volumique

du dioxyde de carbone atteint 0,2% vol, qui présente le double de la quantité de CO.

Au-delà de ce point, la hausse s'accroît fortement, notamment pour le dioxyde de carbone. La même allure est observée pour l'essai à faible débit marquée d'une émission plus importante de gaz carbonés. Pour les essais réalisés à faible fraction d'oxygène et à fort débit, les fractions des gaz émis (CO<sub>2</sub> et CO) sont plus faibles et constantes. La fraction de CO<sub>2</sub> est autour de 0.04% et 0.06% pour les essais réalisés à 30 NL/min et à 14% d'O<sub>2</sub>, respectivement. Le pourcentage massique volumique du CO avoisine 0.25% et 0.35% pour les essais menés à 30 NL/min et à 14% d'O<sub>2</sub>, respectivement.

Ainsi, une forte production de gaz d'auto-échauffement a été relevée lors des expérimentations subissant un emballement thermique. En situation d'auto-échauffement, seulement, une faible et constante quantité de gaz est produite. Par ailleurs, comme nous l'avons signifié précédemment, l'analyse de l'oxygène en sortie du réacteur indique qu'à chaque essai, le taux d'oxygène consommée par le lit de plaquettes torréfiées est inférieure à 0.2%.

### 3.2.3 Caractérisation de l'auto-échauffement

#### Indicateur CO/CO<sub>2</sub>

Parmi les indicateurs d'incendie les plus connus, le ratio CO/CO<sub>2</sub>. Ici, ce ratio est estimé pour les différents scénarii obtenus (fig. 3.15). On remarque que pour les situations d'auto-échauffement modéré, ce ratio est constant (autour d'une valeur comprise entre 1,6 et 2). En revanche, lorsqu'un emballement thermique a lieu ce ratio augmente rapidement dépassant 2 et 7 pour l'essai de référence et l'essai à faible débit, respectivement.

Il suffit que la vitesse de montée du ratio soit aussi faible que 0.005 min<sup>-1</sup> sur une durée de 20 min pour prédire un emballement thermique. Néanmoins, cet indicateur ne permet pas de détecter l'auto-échauffement étant donné qu'il reste constant tout le long.

## 3.3 Conclusion

Cette partie a été consacrée à la création de situations d'auto-échauffement à basse température à l'échelle d'un réacteur à lit fixe de particules de bois fraîchement torréfiées. L'impact de la fraction d'oxygène dans le milieu a été investigué ainsi que celui du débit de gaz. Les résultats démontrent que l'échauffement spontané est étroitement lié à ces conditions. En effet, ce phénomène est susceptible d'engendrer une situation de combustion spontanée d'un substrat soumis à une exposition croissante à l'oxygène et à un faible

débit de gaz contenant de l'oxygène. Ainsi, un apport élevé en oxygène dans le lit de bois accentue les mécanismes exothermiques ayant lieu suite à l'interaction de l'oxygène sur la surface du bois. D'autre part, l'introduction d'un faible débit de gaz oxydant induit une auto-combustion issue d'un faible transport convectif de chaleur. A l'opposé, une faible fraction d'oxygène et un débit croissant de gaz oxydant limitent la tendance à l'auto-échauffement.

Un modèle simplifié a été proposé décrivant le terme source pendant l'auto-échauffement en le reliant aux conditions de température et de fraction d'oxygène. Ce dernier présente l'avantage d'une formulation affranchie de conditions aux limites du problème. Un jeu de paramètres cinétiques optimisés a été proposé en adoptant que la réaction d'oxydation comme source d'exothermicité.

Par ailleurs, l'analyse des gaz montre une production de gaz d'auto-échauffement ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$ ) qui reste constante pendant un auto-échauffement modéré. Néanmoins, elle augmente en cas d'emballement thermique. Ainsi, la production de chaleur est accompagnée par l'émission de ces gaz carbonés. Le ratio  $\text{CO}_2/\text{CO}$  a également été estimé. Il montre une tendance stable pendant l'auto-échauffement et une évolution croissante rapide dès l'emballement des réactions. Cet indicateur témoigne donc de la survenance d'un emballement thermique. Cependant, il ne permet pas de détecter une situation d'auto-échauffement modéré.

La prochaine étape est dédiée à l'un des objectifs principaux de ce travail, à savoir, l'identification des mécanismes intrinsèques responsables de la production de chaleur. Pour ce faire, des essais ATG/ATD ont été conduits à petite échelle. Cette approche est détaillée dans le chapitre suivant.



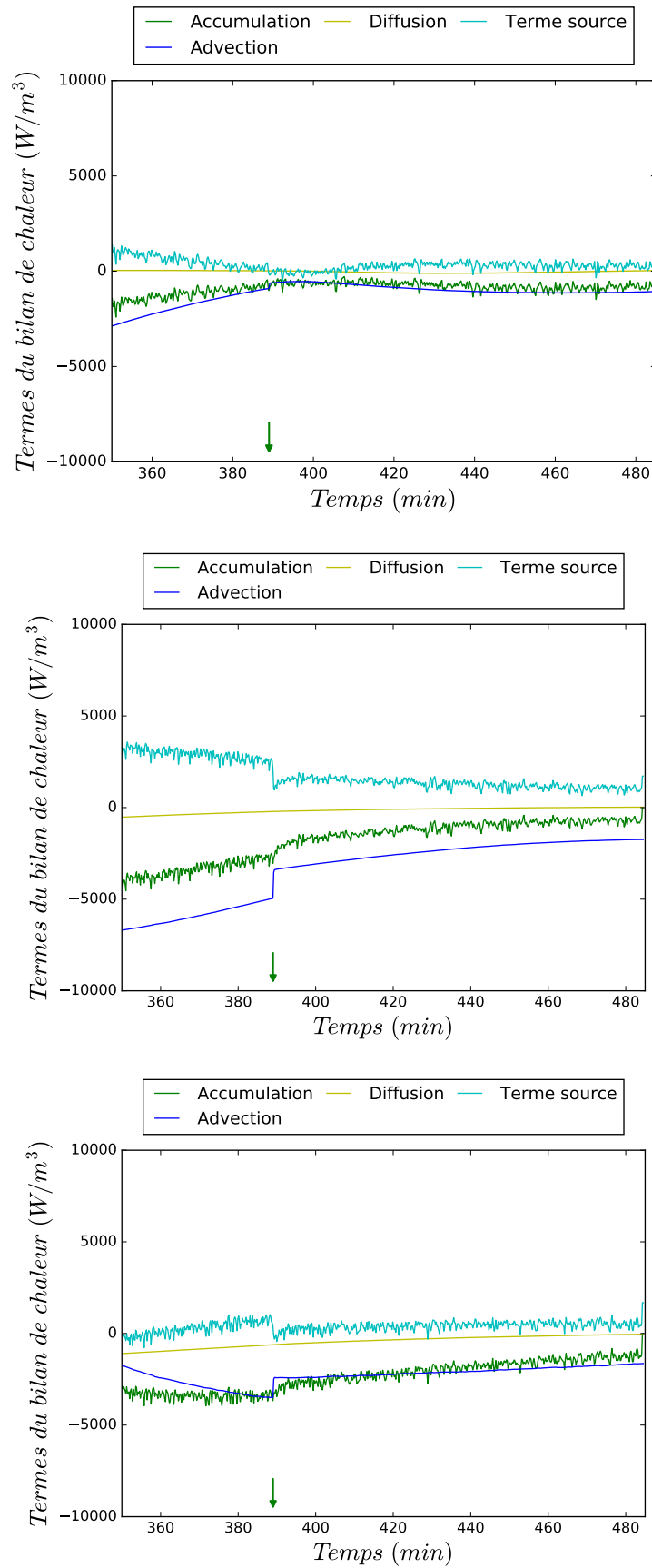


FIGURE 3.4 – Termes du bilan de chaleur à différentes hauteurs (10, 20, 30 cm) associés au test de validation sur un lit d'alumine. Flèche verte : changement du débit de gaz (de 30 à 20 NL/min)

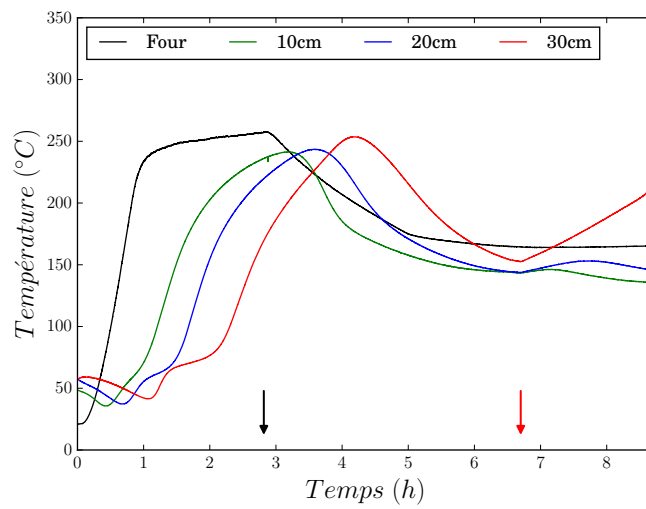


FIGURE 3.5 – Évolution de la température à différentes hauteurs (10, 20, 30 cm) durant les différentes phases expérimentées (torréfaction, refroidissement et auto-échauffement) à l'essai de référence. Flèche rouge : injection du gaz oxydant, Flèche bleue : injection de l'azote de refroidissement

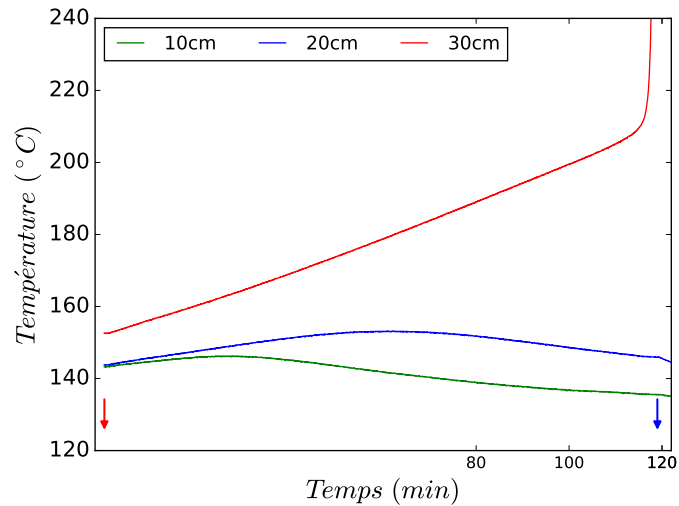


FIGURE 3.6 – Évolution de la température à différentes hauteurs (10, 20, 30 cm) pendant l'auto-échauffement à l'essai de référence. Flèche rouge : injection du gaz oxydant, Flèche bleue : injection de l'azote pur

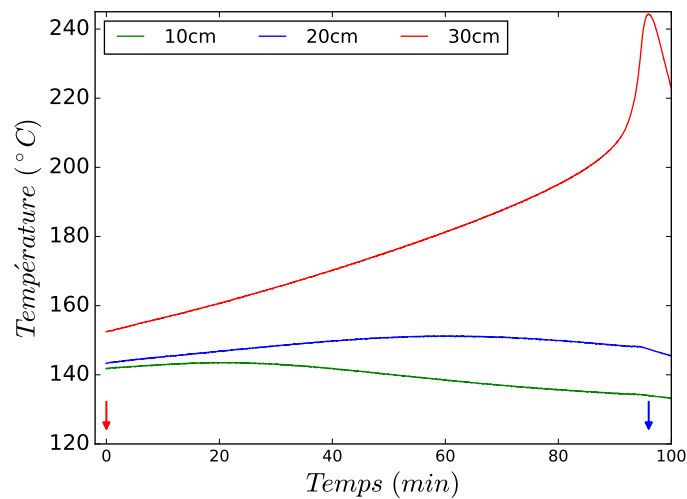


FIGURE 3.7 – Évolution de la température à différentes hauteurs (10, 20, 30 cm) pendant l'auto-échauffement pour un test de répétabilité de l'essai de référence. Flèche rouge : injection du gaz oxydant, Flèche bleue : injection de l'azote

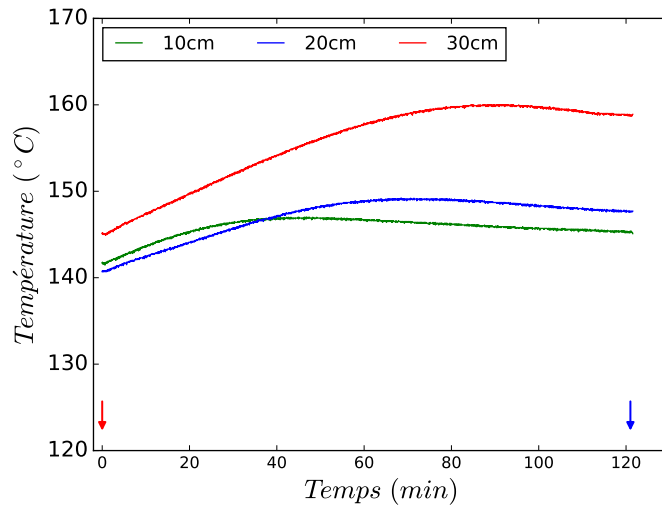


FIGURE 3.8 – Évolution de la température à différentes hauteurs (10, 20, 30 cm) pendant l'auto-échauffement à l'essai  $Q_{gas+}$ . Flèche rouge : injection du gaz oxydant, Flèche bleue : injection de l'azote

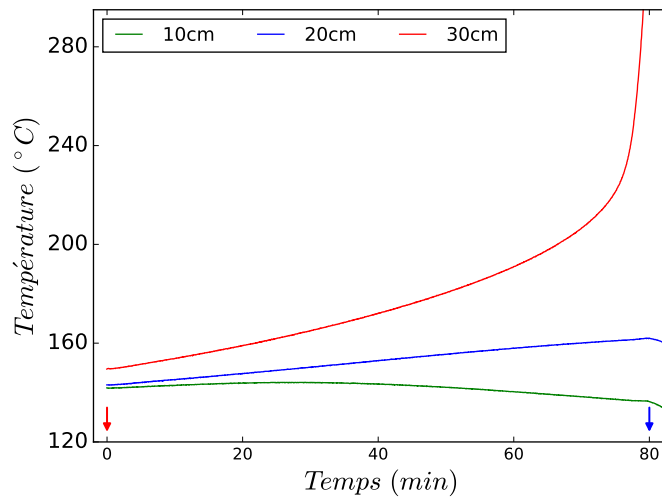


FIGURE 3.9 – Évolution de la température à différentes hauteurs (10, 20, 30 cm) pendant l'auto-échauffement à l'essai  $Q_{gas-}$ . Flèche rouge : injection du gaz oxydant, Flèche bleue : injection de l'azote

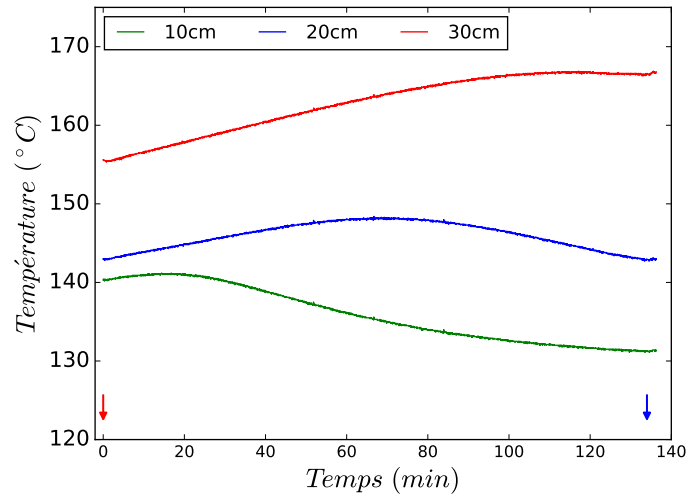


FIGURE 3.10 – Évolution de la température à différentes hauteurs (10, 20, 30 cm) pendant l'auto-échauffement à l'essai  $O_2$ -. Flèche rouge : injection du gaz oxydant, Flèche bleue : injection de l'azote

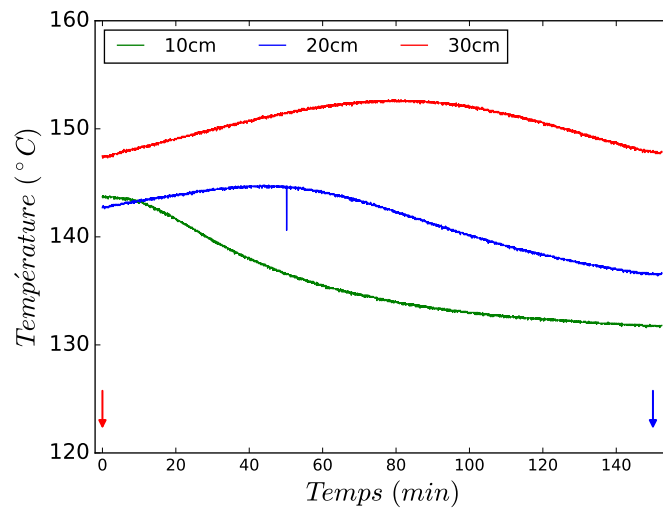


FIGURE 3.11 – Évolution de la température à différentes hauteurs (10, 20, 30 cm) pendant l'auto-échauffement à l'essai  $O_2$ --. Flèche rouge : injection du gaz oxydant, Flèche bleue : injection de l'azote

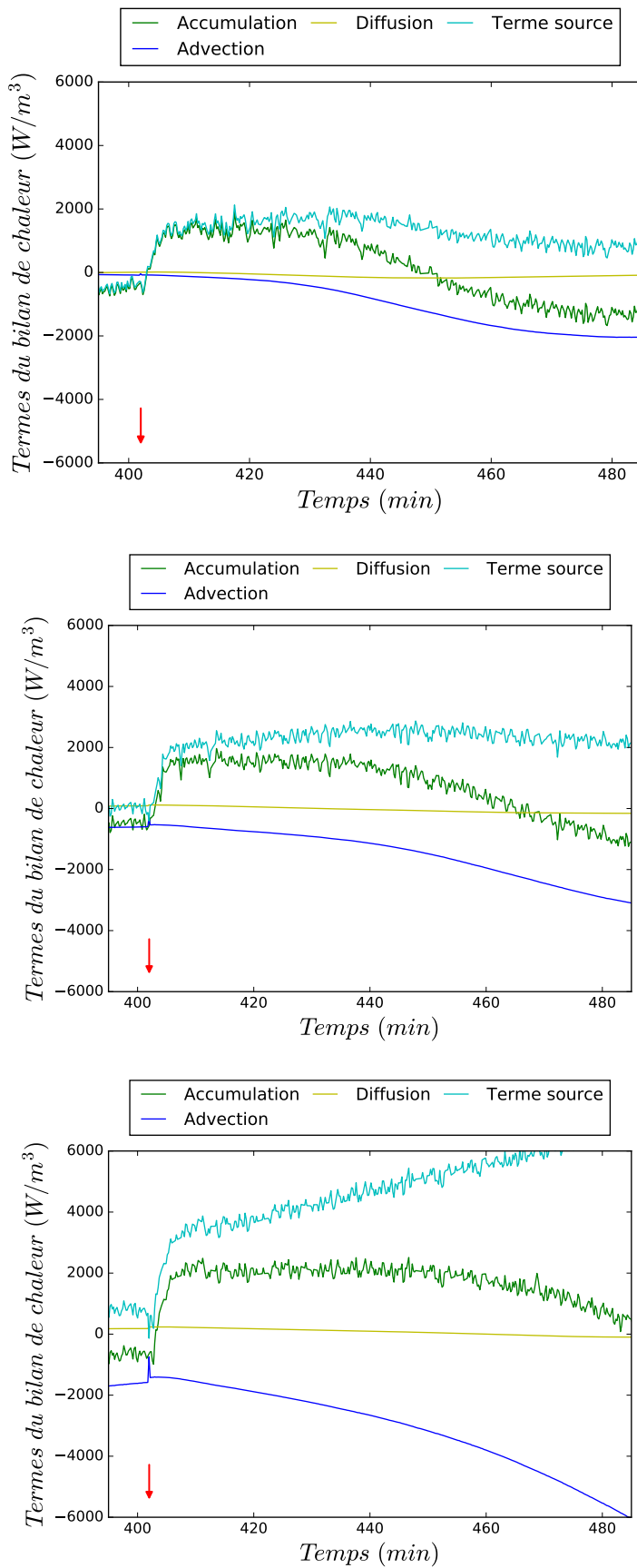


FIGURE 3.12 – Termes du bilan de chaleur à différentes hauteurs (15, 20, 25 cm) pendant l'auto-échauffement à l'essai de référence. Flèche rouge : injection du gaz oxydant

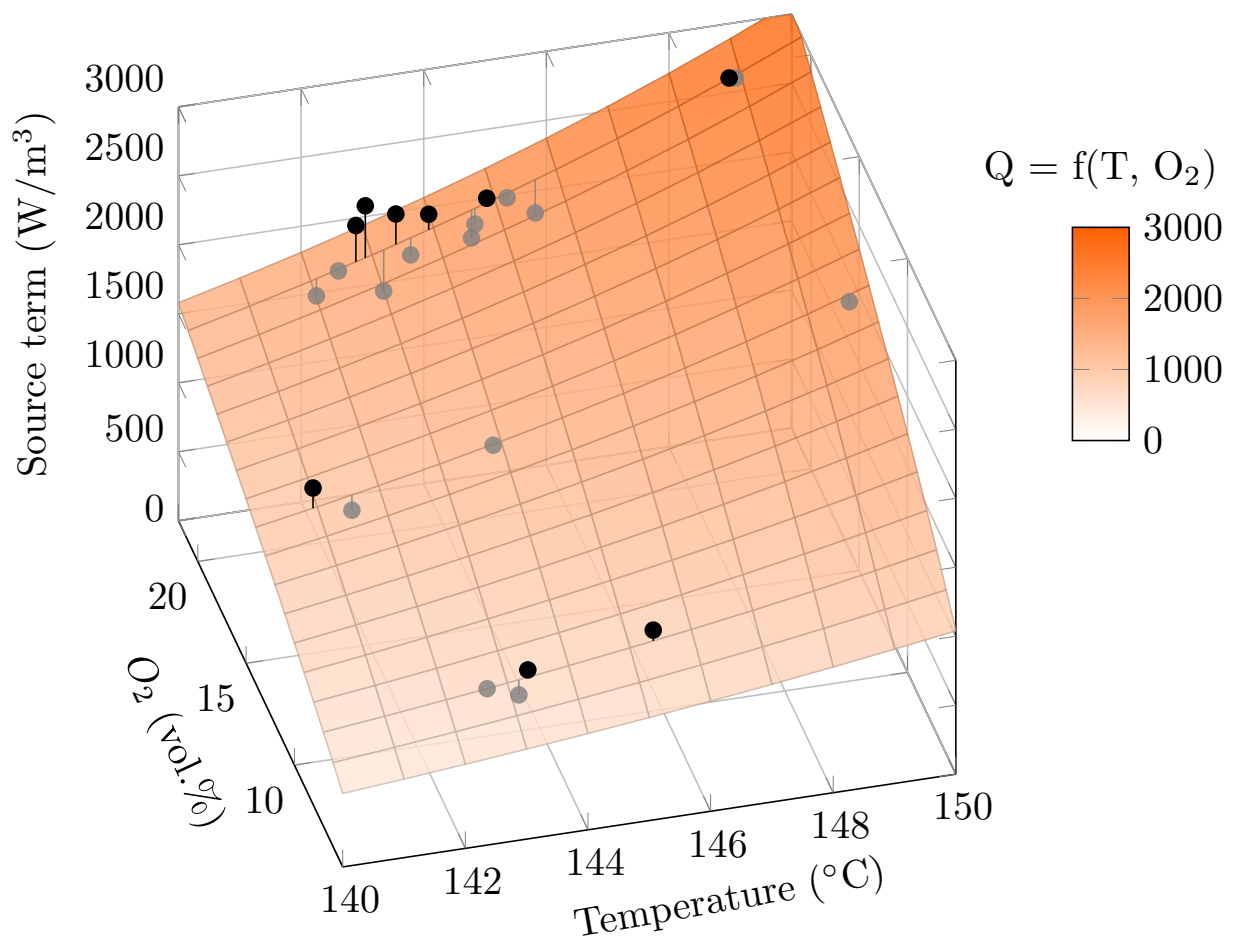


FIGURE 3.13 – Corrélation du terme source avec la température et la fraction d'oxygène dans le gaz oxydant

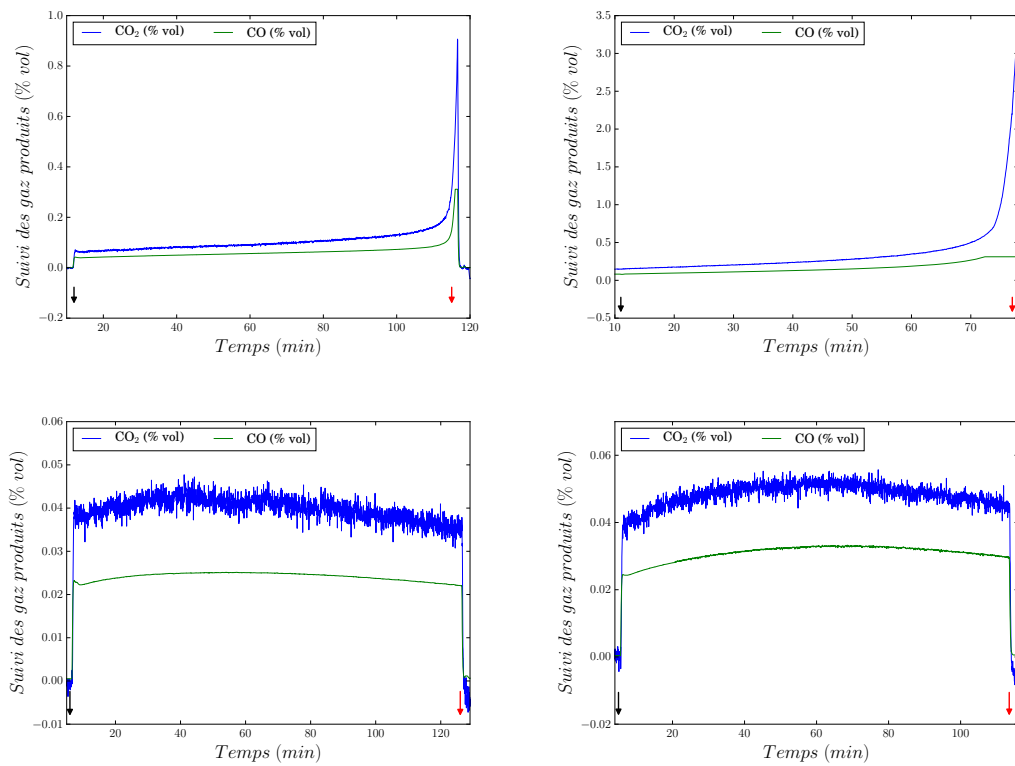


FIGURE 3.14 – Analyse des gaz émis lors de l'auto-échauffement créé pendant les essais : de référence,  $Q_{gaz-}$ ,  $O_2-$ ,  $Q_{gaz+}$ , respectivement



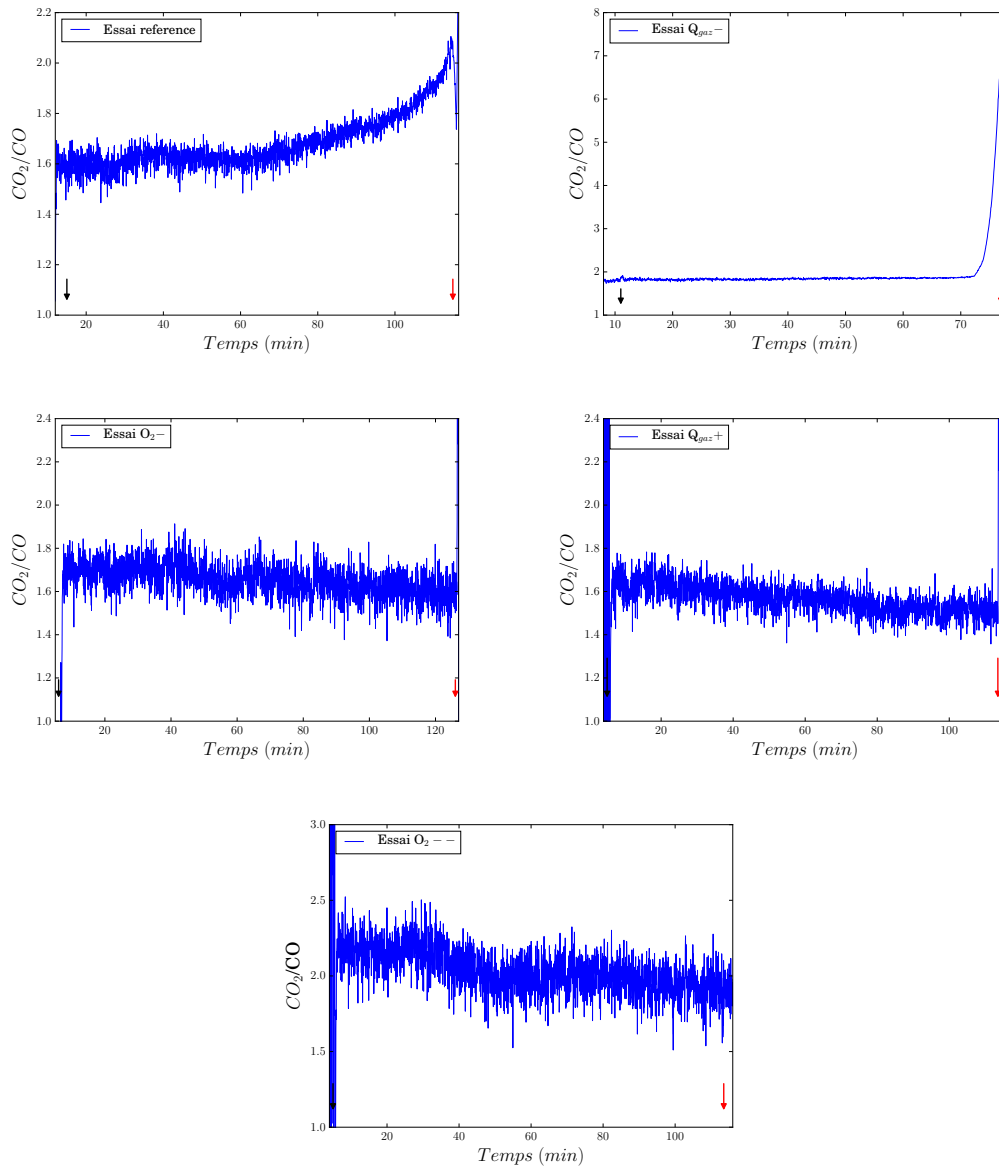


FIGURE 3.15 – Ratio  $CO_2/CO$  lors de l'auto-échauffement créé pendant les essais : de référence,  $Q_{gaz-}$ ,  $O_2-$ ,  $Q_{gaz+}$ ,  $O_2--$ , respectivement

