
Les propriétés d'usage de la biomasse torréfiée

Lors de l'étude expérimentale de la torréfaction en four tournant, des plaquettes torréfiées ont été produites dans différentes conditions opératoires. Les pertes de masse observées varient entre 1,7 et 25,0 %. Le modèle numérique développé précédemment permet la prévision de la perte de masse. Il paraît désormais intéressant de pouvoir relier les principales caractéristiques du matériau obtenu à cette perte de masse. Cette partie propose d'analyser les différents bois torréfiés et de comparer leurs propriétés à celles du bois brut. Dans un premier temps, les solides seront caractérisés en termes de composition avant de s'attacher à l'évaluation de l'hygroscopicité et de la broyabilité du bois torréfié. L'étude de la composition est importante car elle apporte des informations sur les processus de dégradation qui ont eu lieu lors du traitement et elle conditionne la densité énergétique du matériau. De plus, elle a un fort impact sur les rendements des procédés de valorisation susceptibles d'utiliser le bois torréfié (voir **Chapitre 1**, §II.6.4). Il en est de même pour la teneur en eau, ce qui justifie une étude détaillée du comportement de la biomasse vis-à-vis de l'humidité de l'air. Enfin, l'un des principaux intérêts de la torréfaction étant la fragilisation de la structure, l'étude de la broyabilité apparaît être un point clé lors de l'évaluation du procédé.

I. Aspect visuel

La **Figure 94** présente la photographie des biomasses brute et torréfiées. Un changement de coloration des plaquettes apparaît dès les faibles pertes de masse (ici 1,7 %). La biomasse continue ensuite à brunir mais les changements sont peu importants pour les pertes de masse situées entre 7 et 15 %. Lorsque la perte de masse excède 15 %, les plaquettes ont une couleur noire, proche de celle du charbon. Dans la littérature, les principales raisons invoquées pour expliquer les modifications de la couleur au cours de la torréfaction sont :

- Les pigments (clairs) de la biomasse brute sensibles thermiquement sont dégradés aux basses températures [102],
- Les modifications de la lignine produisent des groupements chromophores qui confèrent à la biomasse une teinte foncée [109].

Il est cependant impossible de relier précisément une perte de masse à une couleur donnée.



Figure 94 : Influence de la perte de masse sur l'aspect visuel des plaquettes de bois.

II. Composition

Pour les analyses de composition, les différentes biomasses ont préalablement été broyées dans un broyeur à couteaux Pulverisette 15 (Fritsch, Idar-Oberstein, Allemagne) équipé d'une grille à ouvertures trapézoïdales de 0,5 mm. Les échantillons sont ensuite séchés en étuve à 105 °C avant analyse.

II.1. Composition élémentaire

II.1.1. Principe de détermination

La composition élémentaire est déterminée par un analyseur NC 2100 (CE Instruments, Wigan, Angleterre). Une quantité de 2 à 4 mg d'échantillon est placée dans un creuset en étain. Le creuset est ensuite déposé dans un porte-échantillons d'où il tombe dans un four. Il

subit alors une combustion en présence d'une quantité fixée d'oxygène de pureté élevée ; les oxydes produits sont réduits dans une colonne réductrice à base de cuivre. Le gaz, additionné d'hélium faisant office de gaz vecteur, est alors séché puis les différentes espèces sont séparées dans une colonne de chromatographie avant d'être quantifiées par un catharomètre. Connaissant la masse initiale de solide et la composition du gaz produit, l'analyseur calcule la teneur massique du solide en C, H, N et S. La teneur en oxygène est ensuite déduite de ces valeurs. Pour cette étude, 3 analyses ont été répétées par échantillon.

II.1.2. Résultats

Les valeurs moyennes de composition élémentaire sont présentées dans le **Tableau 26**. L'incertitude de mesure, calculée en considérant un intervalle de confiance de 95 %, est donnée entre parenthèses. La perte de masse sèche *ML* mesurée pendant les essais est également rappelée.

Tableau 26 : Composition élémentaire, composition immédiate et PCS de la biomasse brute et des biomasses torréfiées.

Essai	ML (%)	Composition élémentaire (%)				Composition immédiate (%)			PCS (MJ/kg)
		C	H	N	O	MV	TC	CF	
Brut	0,0	47,19 (0,57)	5,97 (0,27)	0,17 (0,01)	46,68 (0,66)	84,95 (0,17)	0,54 (0,05)	14,51 (0,22)	19,46 (0,23)
TFT1	1,7	48,36 (0,62)	5,76 (0,22)	0,18 (0,02)	45,70 (0,76)	83,57 (0,24)	0,60 (0,02)	15,83 (0,26)	19,82 (0,09)
TFT7	10,2	51,01 (0,41)	5,37 (0,60)	0,41 (0,52)	43,21 (0,16)	80,27 (0,28)	0,66 (0,02)	19,07 (0,30)	20,02 (0,14)
TFT3	10,6	50,28 (0,25)	5,47 (0,37)	0,20 (0,02)	44,05 (0,20)	80,23 (0,21)	0,71 (0,01)	19,06 (0,22)	20,34 (0,10)
TFT8	11,3	50,60 (0,43)	5,54 (0,10)	0,23 (0,05)	43,63 (1,10)	80,14 (0,29)	0,68 (0,15)	19,18 (0,44)	19,98 (0,09)
TFT5	11,8	50,88 (0,47)	5,60 (0,10)	0,73 (0,35)	42,79 (0,85)	79,20 (0,22)	0,67 (0,02)	20,13 (0,24)	20,02 (0,12)
TFT4	12,9	50,22 (0,62)	5,53 (0,35)	0,21 (0,02)	44,05 (0,95)	79,49 (0,45)	0,66 (0,03)	19,85 (0,48)	20,04 (0,10)
TFT2	16,4	51,59 (0,15)	5,46 (0,20)	0,20 (0,02)	42,75 (0,09)	76,82 (0,30)	0,71 (0,10)	22,47 (0,40)	20,42 (0,20)
TFT6	25,0	54,00 (0,10)	5,24 (0,25)	1,06 (0,30)	39,70 (0,43)	72,15 (0,09)	0,76 (0,06)	27,09 (0,15)	21,61 (0,09)

Les teneurs en soufre étant inférieures au seuil de détection de l'analyseur pour l'ensemble des échantillons, les valeurs n'ont pas été reportées ici. La teneur en soufre sera négligée dans le calcul de la teneur en oxygène.

La principale observation est qu'il y a concentration du carbone lorsque la perte de masse augmente. La teneur en carbone passe en effet de 47,2 % pour la biomasse brute à 54,0 % lorsque la perte de masse engendrée par la torréfaction atteint 25,0 %. Cette augmentation, réalisée au détriment des teneurs en hydrogène et en oxygène, est principalement la conséquence du départ des groupements hydroxyles, comme signalé dans l'état de l'art. La teneur en azote ne montre pas de tendance évidente. Il semble cependant qu'il y ait une légère concentration de cet élément même si les teneurs restent faibles (inférieures à 1 % pour la majorité des essais). Ceci est un point favorable pour l'utilisation de la biomasse torréfiée en combustion car les émissions d'oxydes d'azote seront limitées.

Connaissant la masse molaire des éléments considérés, il est possible de calculer les ratios atomiques H/C et O/C pour toutes les biomasses. Les résultats sont représentés sur le diagramme de Van Krevelen **Figure 95**.

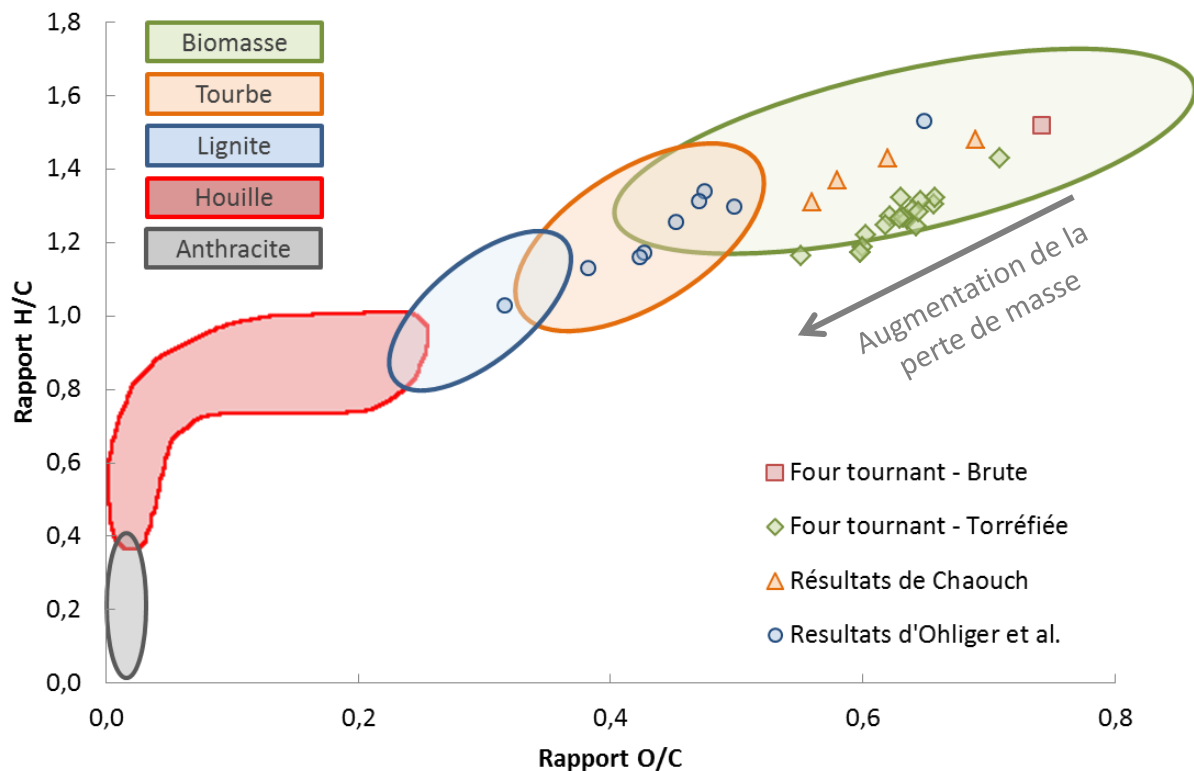


Figure 95 : Positionnement des biomasses brute et torréfiées sur le diagramme de Van Krevelen. Comparaison avec des résultats issus de la littérature [21,77].

A titre comparatif, les valeurs obtenues par d'autres auteurs ont été représentées :

- Les résultats obtenus par Chaouch [21] correspondent à des échantillons de hêtre ayant subi des pertes de masse de 0 à 15 % lors de la torréfaction,
- Les résultats obtenus par Ohliger *et al.* [77] correspondent à des échantillons de hêtre ayant subi des pertes de masse de 0 à 50 %.

L'évolution observée pour les échantillons torréfiés en four tournant est similaire à celles observées dans la littérature : dans tous les cas, l'évolution est linéaire. Il peut en être conclu que les différences observées sont dues aux compositions des biomasses brutes qui varient suivant les auteurs. Un impact des conditions de réalisation de la torréfaction est également envisageable mais reste difficile à interpréter.

L'évolution des teneurs en C, H et O mène à une diminution des ratios atomiques H/C et O/C. Même si la délimitation des domaines représentés sur cette figure reste approximative, il apparaît clairement que la composition de la biomasse se rapproche de celle des matériaux fossiles comme la tourbe ou la houille lorsque la perte de masse augmente. L'écart de comportement en combustion entre le bois et le charbon serait donc réduit, ce qui fait de la torréfaction un prétraitement de choix pour la valorisation de la biomasse en co-combustion. L'observation des résultats d'Ohliger *et al.* permet d'évaluer l'influence qu'aurait une torréfaction en four tournant dans des conditions de traitement plus sévères (pertes de masses plus importantes).

II.2. Composition immédiate

II.2.1. Protocoles de détermination

Les teneurs en matières volatiles et en cendres sont déterminées suivant les normes NF EN 15148:2010-03 et NF EN 14775:2010-03 respectivement :

- **Teneur en matières volatiles** : $1 \pm 0,1$ g d'échantillon sec, pesé à 0,1 mg près, est placé dans un creuset en quartz avec couvercle dont la masse est connue (voir **Figure 96a**). Ce creuset est disposé sur le porte-creusets qui est alors placé pendant $7 \text{ min} \pm 5 \text{ s}$ dans un four à moufle préchauffé à 900 °C (voir **Figure 96b**). L'ensemble creusets + porte-creusets est ensuite ramené à température ambiante (en dessiccateur) puis les creusets sont pesés à nouveau. La perte de masse correspond au taux de matières volatiles MV (en %).

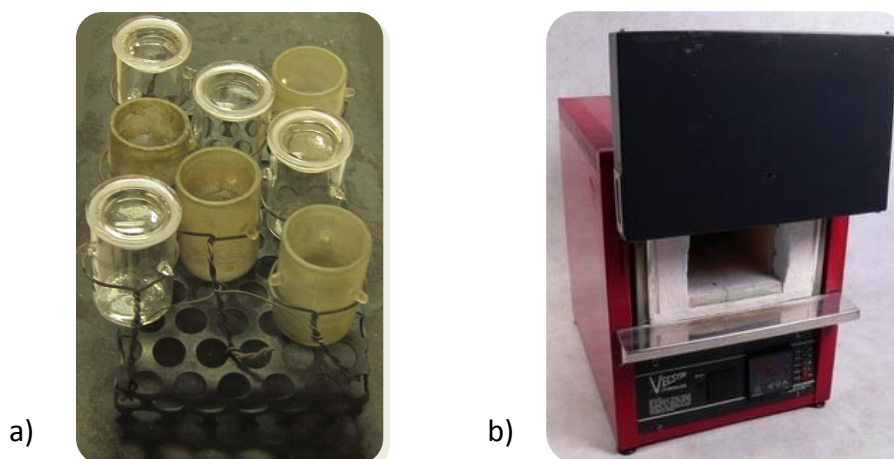


Figure 96 : a) Creusets et porte-creusets utilisés pour la détermination des teneurs en matières volatiles et en cendres et b) exemple de four à moufle.

- **Teneur en cendres** : le protocole de préparation des échantillons est identique à celui utilisé pour la détermination de la teneur en matières volatiles. Les creusets sont cependant utilisés sans couvercles. Le porte-creusets est placé dans un four à moufles programmable non préchauffé. Le four est amené à 250 °C avec une vitesse de chauffe de 5,5 °C/min. Un palier de 60 min est réalisé à cette température. Une rampe à 10 °C/min est ensuite utilisée pour monter à 550 °C, température à laquelle le four est maintenu pendant 120 min. Après retour à la température ambiante, les creusets sont à nouveau pesés. La masse de solide résiduel permet le calcul du taux de cendres TC (en %).

- **Teneur en carbone fixe CF** (en %) : elle est calculée par différence suivant l'Équation 99.

$$CF = 100 - MV - TC \quad \text{Équation 99}$$

II.2.2. Résultats

Les valeurs de composition immédiate sont synthétisées dans le **Tableau 26**. La torréfaction a comme conséquence directe la diminution de la teneur en matières volatiles, ce qui conduit à une concentration du carbone fixe et des cendres. Les évolutions observées pour les teneurs en matières volatiles et en cendres sont représentées et comparées aux valeurs obtenues par Ohliger *et al.* [77] sur la **Figure 97**.

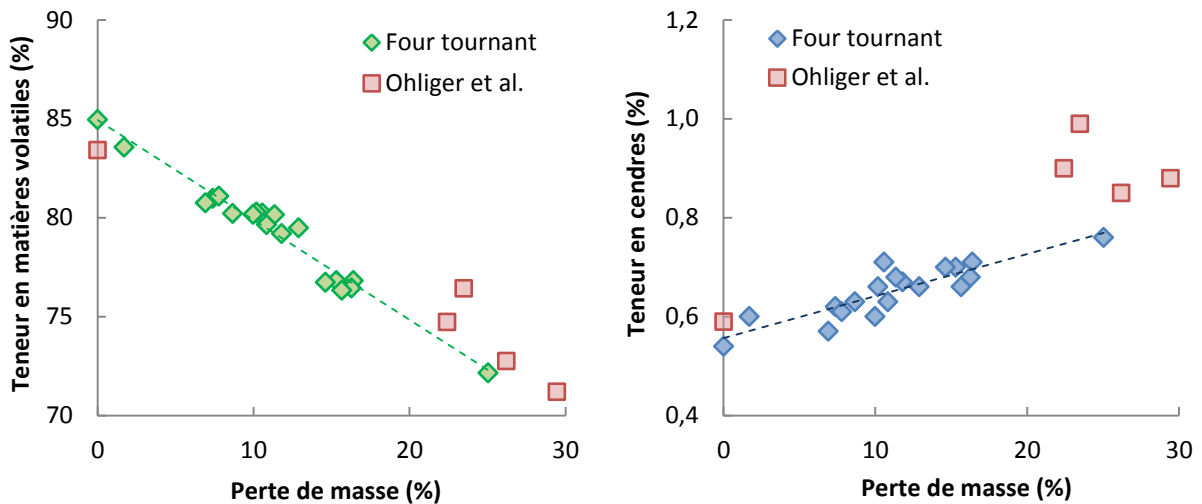


Figure 97 : Évolutions de la teneur en matières volatiles et de la teneur en cendres lors de l'augmentation de la perte de masse. Comparaison avec les résultats de la littérature [77].

La teneur en matières volatiles diminue donc linéairement avec l'augmentation de la perte de masse lors de la torréfaction ce qui semble en accord avec les résultats tirés de la littérature. Sur la gamme de pertes de masse étudiée, MV varie entre 84,95 % pour la biomasse brute et 72,15 % pour la biomasse la plus torréfiée (ML=25,0 %). La teneur en cendres reste très faible et varie entre 0,54 et 0,76 %. Une telle augmentation pourrait cependant s'avérer problématique dans le cas où la biomasse utilisée possède initialement une forte teneur en cendres.

Enfin, la teneur en carbone fixe montre une augmentation importante en passant de 14,51 % pour la biomasse brute à 27,09 % pour la biomasse la plus torréfiée.

II.3. Pouvoir calorifique et rendement énergétique

II.3.1. Mesure du PCS et calcul du rendement énergétique

L'un des effets recherchés lors de la torréfaction est la densification énergétique de la biomasse. En effet, les modifications chimiques observées précédemment impactent le contenu énergétique de la matière. L'objectif est donc ici de mesurer le pouvoir calorifique de la biomasse. Ces mesures ont été réalisées à l'aide d'un calorimètre IKA® C5000. Le principe est qu'une quantité connue de biomasse est placée dans une bombe calorimétrique, elle-même immergée dans de l'eau à une température fixée. La bombe calorimétrique est alors saturée en oxygène sous pression puis un système d'allumage (fil conducteur) initie la combustion de la biomasse. L'élévation de température de l'eau est mesurée et, connaissant la capacité thermique du calorimètre, il est possible de calculer

l'énergie dégagée par la combustion. L'eau produite par la combustion étant condensée dans la bombe calorimétrique, c'est le Pouvoir Calorifique Supérieur (PCS) qui est déterminé.

La nécessité de mettre la bombe calorimétrique sous pression interdit l'utilisation de solides sous forme de poudres. En effet, l'injection de l'oxygène disperserait les particules ce qui pourrait fausser les mesures et créer une atmosphère explosive. Une presse hydraulique a donc été utilisée afin de produire des pastilles avec le bois sec broyé. La masse de ces pastilles est de $1 \pm 0,1$ g pesée à 0,1 mg près.

Le rendement énergétique η_{ener} tient compte du rendement massique η et de l'évolution du PCS au cours de la torréfaction. Il est calculé suivant l'Équation 100.

$$\eta_{ener} = \eta \times \frac{PCS_{\text{bois torréfié}}}{PCS_{\text{bois brut}}} \quad \text{Équation 100}$$

II.3.2. Résultats

Les PCS mesurés pour les différentes biomasses sont présentés Figure 98a.

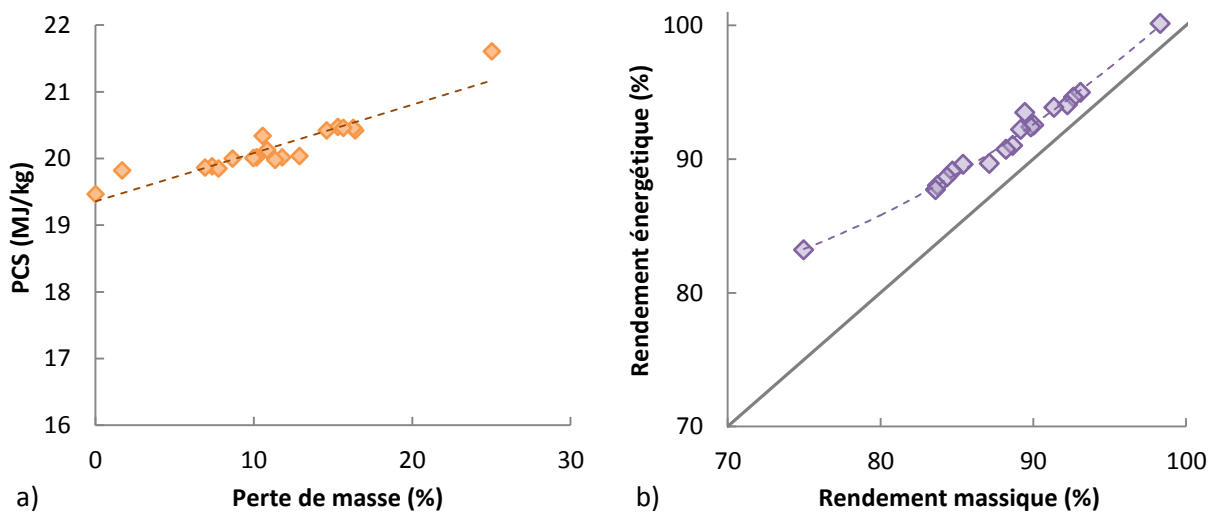


Figure 98 : a) Influence de la perte de masse sur le pouvoir calorifique supérieur de la biomasse et b) comparaison du rendement énergétique au rendement massique de la torréfaction.

Lorsque la perte de masse augmente, il y a bien augmentation du pouvoir calorifique de la biomasse. Le PCS passe ainsi de 19,46 MJ/kg pour la biomasse brute à 21,61 MJ/kg pour le bois ayant subi une perte de masse de 25 %. Ceci représente une augmentation de 11 % de la densité énergétique du matériau. A titre de comparaison, le PCS de la lignite peut atteindre environ 25 MJ/kg et les charbons les plus concentrés en carbone ont un PCS variant entre 32 et 37 MJ/kg [192].

Si l'augmentation du PCS reste assez limitée, elle permet néanmoins de contrebalancer en partie la perte de masse. Ainsi, le rendement énergétique est toujours supérieur au rendement massique, comme illustré **Figure 98b**. En effet, sur le domaine étudié, le rendement énergétique est toujours plus important que le rendement massique et l'écart entre ces deux rendements semble même s'accroître quand l'intensité de la torréfaction augmente.

II.4. Teneur en fibres

II.4.1. Protocole expérimental

La détermination des teneurs en cellulose, hémicellulose et lignine étant complexe à mettre en œuvre, une méthode de Van Soest modifiée a été choisie. Cette méthode rapide a initialement été développée pour l'étude de la digestibilité des fourrages, mais elle est fréquemment utilisée pour les biomasses forestières [100,110]. La **Figure 99** présente les équipements utilisés et le principe de la méthode.

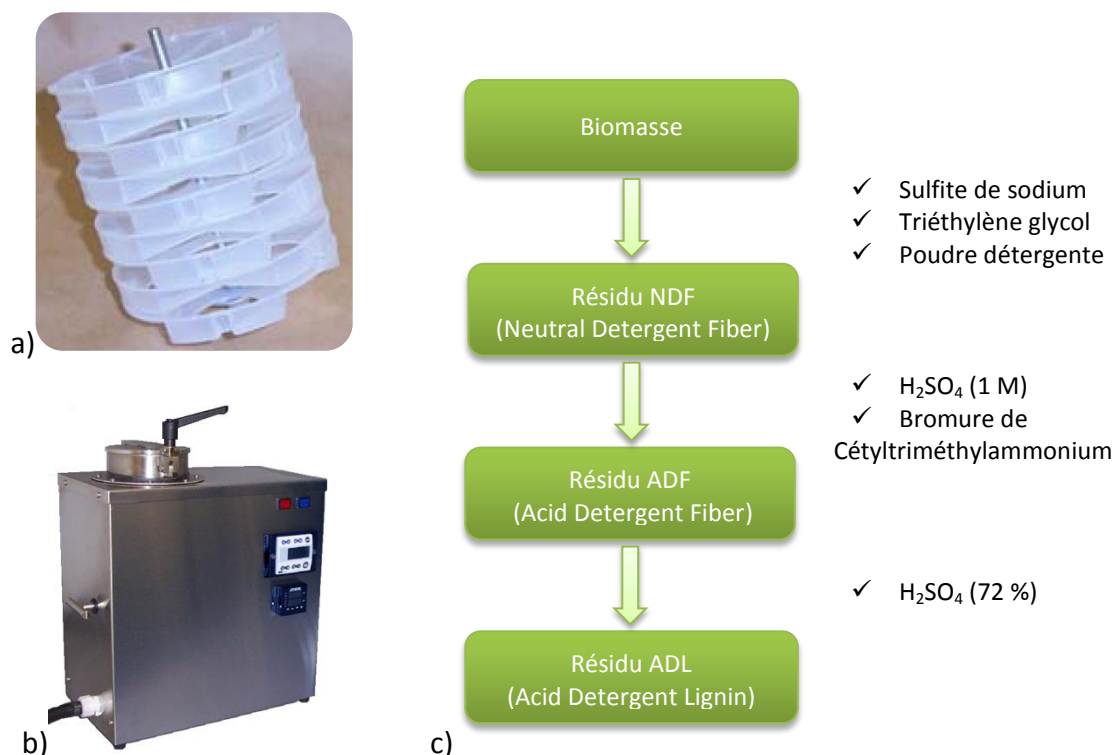


Figure 99 : a) Porte-échantillons, b) Dispositif A200 (ANKOM, Macedon, États-Unis) et c) schéma de principe du protocole de détermination de la teneur en fibres.

Les biomasses sèches broyées sont tamisées afin de ne conserver que la fraction dont la taille de particules est supérieure à 100 µm. Les échantillons sont ensuite répartis dans des

sachets filtres à raison de $0,5 \pm 0,05$ g (pesés à 1 mg près) par sachet et minimum 3 sachets par échantillon. Les sachets sont thermosoudés afin d'éviter la perte de particules.

Le porte échantillon présenté **Figure 99a** permet d'effectuer simultanément les mesures sur 24 sachets (dont 2 blancs sans biomasse). Il est placé dans la cuve du dispositif A 200 de la **Figure 99b**. La détermination de la composition est réalisée en trois temps :

- **Attaque NDF (Neutral Detergent Fiber)** : une solution NDF composée d'eau distillée, de sulfite de sodium, de triéthylène glycol et de poudre détergente (laurylsulfate de sodium, EDTA-disodium, borate de sodium et phosphate de sodium) est versée dans la cuve jusqu'à recouvrir le porte-échantillons. La solution est ensuite chauffée à 100 °C et un mobile impose au porte-échantillons des mouvements verticaux qui permettent l'agitation de cette solution. L'extraction dure 75 min à la suite desquelles les sachets sont rincés à l'eau, à l'acétone puis séchés. Une fois secs, les sachets sont pesés. La masse perdue correspond aux matières facilement extractibles et solubles dans un détergent neutre. La masse restante est appelée résidu NDF.

- **Attaque ADF (Acid Detergent Fiber)** : la solution utilisée est composée d'acide sulfurique (1 mol/L) et de bromure de bétyltriméthylammonium. L'extraction, sous chauffage à 100 °C et agitation, dure 60 min. Les sachets sont à nouveau rincés à l'eau et à l'acétone, séchés et pesés. La fraction dégradée lors de cette étape est principalement composée des hémicellulose. La masse restant est appelée résidu ADF.

- **Attaque ADL (Acid Detergent Lignin)** : la solution est composée d'acide sulfurique à 72 %. L'extraction est réalisée à température ambiante pendant 3 h. Les sachets sont ensuite rincés à l'eau et à l'acétone, séchés et pesés. La fraction dégradée lors de cette étape est principalement la cellulose. La masse restant est appelée résidu ADL et contient principalement les lignines acido-insolubles et les cendres. Les taux de cendres sont ensuite déterminés par calcination des sachets.

Pour résumer, malgré les incertitudes sur la nature des composés dégradés à chaque étape, les résultats peuvent être analysés suivant l'**Équation 101** en première approximation.

$$\begin{cases} \text{Hémicellulose} = \text{NDF} - \text{ADF} \\ \text{Fibres acido-solubles (principalement cellulose)} = \text{ADF} - \text{ADL} \\ \text{Fibres acido-insolubles (principalement lignine)} = \text{ADL} - \text{cendres} \end{cases} \quad \text{Équation 101}$$

II.4.2. Résultats

Six biomasses, choisies pour couvrir l'ensemble du domaine de pertes de masse étudié, ont été analysées par cette méthode. Les résultats sont présentés **Figure 100**.

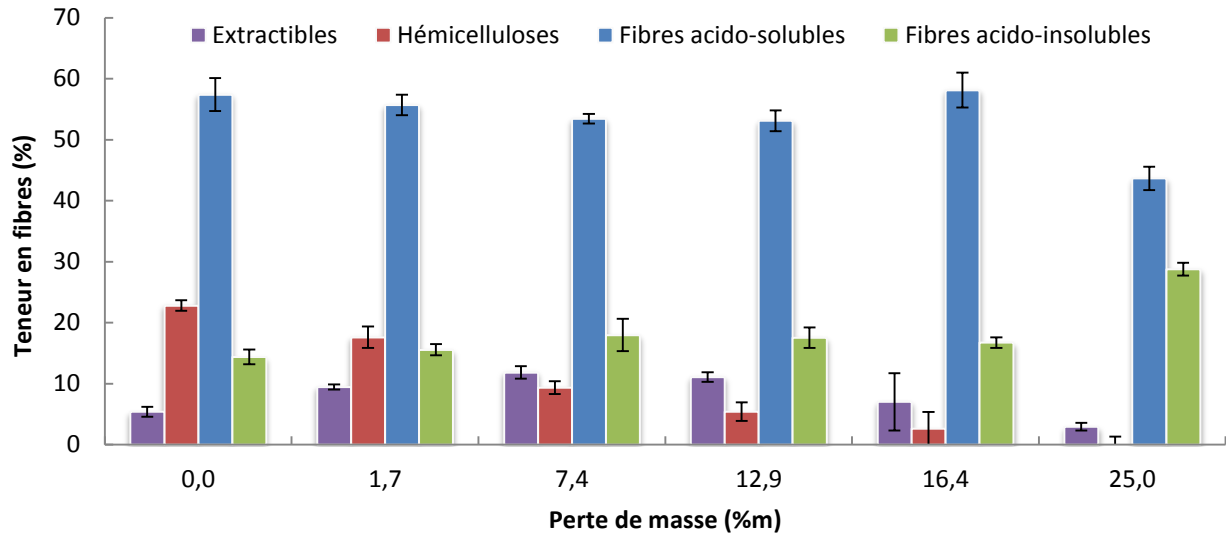


Figure 100 : Teneurs en fibres des biomasses brute et torréfiées
(les teneurs en fibres ont été pondérées par le rendement massique de la torréfaction).

Pour du hêtre brut provenant du même fournisseur, Nocquet *et al.* [18] avaient mesuré une teneur en hémicellulose plus élevée (31,1 % contre 22,8 % ici), une teneur en cellulose plus faible (43,3 % contre 57,4 % ici) et une teneur en lignine plus élevée (22,0 % contre 14,4 % ici). La lignine avait alors été quantifiée par la méthode de Klason (TAPPI T222 om-83). Les teneurs en cellulose et hémicellulose avaient été estimées par hydrolyse acide puis quantification des monomères par chromatographie (TAPPI T249 cm-85). Ceci démontre l'influence de la méthode de détermination choisie. Les valeurs présentées ne seront utilisées qu'à titre comparatif.

Les **extractibles**, qui représentent 5,4 % de la biomasse brute, montrent une évolution croissante lorsque la perte de masse augmente jusqu'à 7,4 %. Ceci indique qu'une partie des composés produits lors d'une torréfaction « légère » restent dans le solide sous forme de molécules faiblement liées aux fibres. Lorsque la perte de masse est plus importante, ces composés sont évacués avec les matières volatiles ce qui mène à une diminution de la quantité d'extractibles présents dans le solide final.

Les **hémicelluloses** sont les polymères les plus dégradés lors de la torréfaction, et ce dès les faibles pertes de masse. La teneur en hémicelluloses a été représentée en fonction de la perte de masse sur la **Figure 101**.

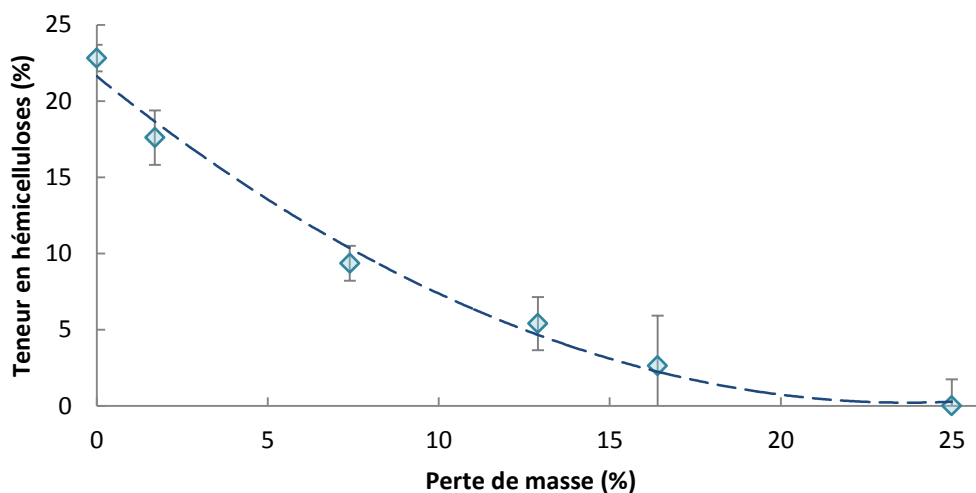


Figure 101 : Évolution de la teneur en hémicellulose avec la perte de masse lors de la torréfaction.

La tendance observée n'est pas linéaire comme il aurait pu être attendu. Pour les faibles pertes de masse, la diminution de la teneur en hémicelluloses est plus importante que la perte de masse. Ceci concorde avec l'augmentation de la teneur en extractibles. La teneur en hémicelluloses est de 22,8 % pour la biomasse brute et décroît très fortement pour atteindre 2,6 % dans les plaquettes torréfiées ayant subi une perte de masse de 16,4 % lors de la torréfaction. Lorsque la perte de masse est de 25,0 %, il n'y a plus d'hémicellulose dans le bois. Ces observations semblent en accord avec les mécanismes de torréfaction identifiés dans la littérature.

Dans le cas des **fibres acido-solubles**, majoritairement constituées de cellulose, aucune tendance significative n'est détectable pour les faibles pertes de masse (voir **Figure 100**). Cependant, une diminution importante est observée lorsque la perte de masse atteint 25 %. Pour les **fibres acido-insolubles**, principalement composées de lignines, aucune tendance n'est observable pour les faibles pertes de masse. Pour la plus forte perte de masse, la fraction de fibres acido-insolubles augmente, ce qui traduit un changement de configuration de l'un des composés (autre que la lignine) de la biomasse. L'analyse de ces résultats est compliquée car les fractions de fibres acido-solubles et acido-insolubles ne correspondent pas à des composés clairement identifiés. Deux phénomènes peuvent cependant expliquer les tendances observées : aux plus hautes températures de torréfaction, une partie de la cellulose est dégradée et une partie subit des réactions de réticulation qui la rendent résistante aux attaques acides [110].

En conclusion de cette analyse des teneurs en fibres, il apparaît que la méthode choisie a permis de corrélérer efficacement la teneur en hémicelluloses à la perte de masse des plaquettes torréfiées. Ceci est primordial pour l'évaluation du procédé de torréfaction étant donné que l'objectif final est de dégrader les hémicelluloses pour fragiliser le matériau. Enfin, il a été montré que les autres composés, notamment la cellulose, subissent également des modifications lorsque la perte de masse est importante. Suivant l'objectif du procédé, de telles informations pourraient être utilisées afin de déterminer les conditions optimales de traitement.

III. Evaluation de l'hygroscopicité

Le bois est un matériau hygroscopique : il a la capacité d'adsorber la vapeur d'eau présente dans l'atmosphère. Cette propriété est un désavantage pour sa valorisation énergétique car l'eau a un effet négatif sur les rendements des procédés. Bien que l'impact de la torréfaction sur l'hygroscopicité du matériau ait déjà été observé, peu de travaux se sont attachés à quantifier cette propriété.

III.1. Détermination des isothermes d'adsorption

III.1.1. Principe de la DVS (Dynamic Vapor Sorption) et protocole opératoire

L'étude dynamique de la sorption de la vapeur d'eau s'oppose à la méthode statique présentée au **Chapitre 1** sous l'appellation « méthode des solutions salines ». Dans les deux cas, le concept est identique : le matériau est soumis à une atmosphère d'humidité et de température contrôlées et son humidité est déterminée par pesée. La principale différence entre ces deux méthodes réside donc dans le temps nécessaire à leur réalisation. Dans le cas de la méthode statique, plusieurs semaines sont nécessaires pour atteindre l'équilibre à une température et une humidité données. Par contre, en DVS, le matériau est soumis à un flux convectif qui favorise les échanges ce qui réduit considérablement le temps nécessaire à l'obtention de l'équilibre. Ce temps est alors de quelques heures.

L'équipement utilisé pour la réalisation des mesures est une DVS-2 (Surface Measurement System, Londres, Angleterre). Le principe est représenté **Figure 102**.

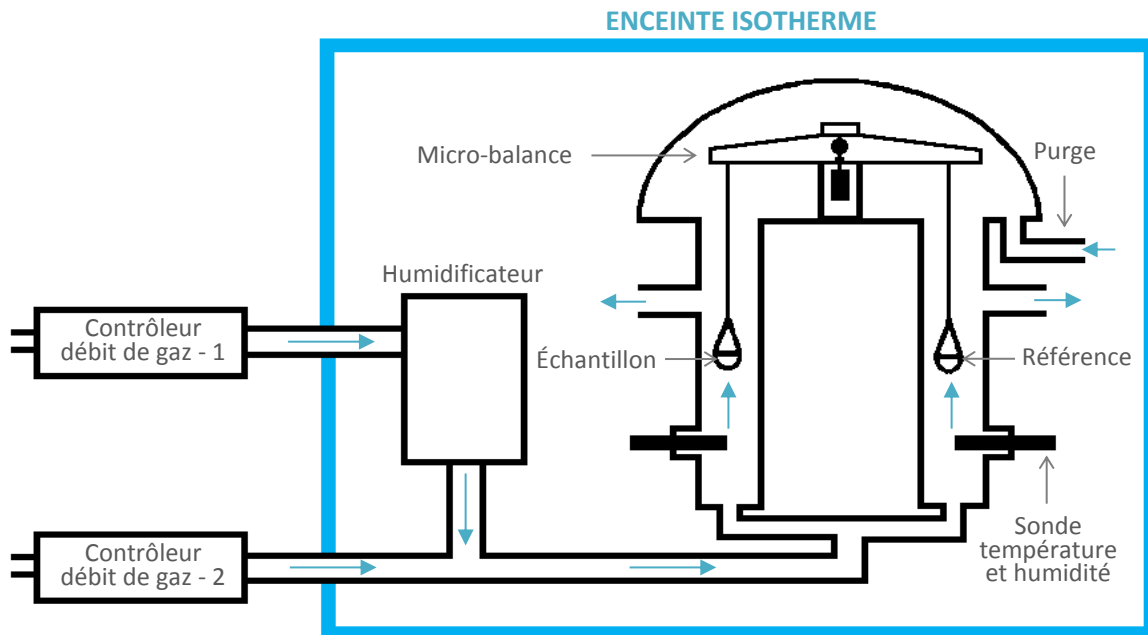


Figure 102 : Représentation schématique de l'installation de mesure de DVS.

Une balance de précision est placée dans une enceinte isotherme dont la température peut être réglée entre l'ambiante et 45 °C. Deux plateaux en quartz sont disposés de part et d'autre de la balance : l'un reste vide et sert de référence, l'autre reçoit l'échantillon à analyser. Un flux de gaz (azote dans le cas présent) est saturé en vapeur d'eau par bullage dans de l'eau liquide avant d'être mélangé à un flux d'azote pur dans des proportions permettant l'obtention de l'humidité relative souhaitée. L'humidité et la température du gaz ainsi produit sont contrôlées en continu par des sondes situées sous les plateaux en quartz. La tête de la balance est balayée par un flux d'azote sec afin d'éviter la condensation de la vapeur qui pourrait occasionner des perturbations voire une dégradation de l'équipement.

L'objectif de l'étude menée ici est de déterminer la reprise d'humidité des plaquettes de bois en sortie du procédé de torréfaction. Il a donc été décidé de travailler avec des échantillons non broyés : les plaquettes de bois sont placées sur le plateau en quartz de manière aléatoire. En effet, un empilement organisé limiterait le contact entre le matériau et le flux de vapeur. La masse utilisée pour les essais est de $0,7 \pm 0,1$ g pesée à 0,01 mg près. Les échantillons, initialement secs, sont dans un premier temps soumis à un flux de gaz à 0 %HR (% d'humidité relative) jusqu'à stabilisation de la masse. Des paliers successifs sont ensuite réalisés de 0 à 70 %HR avec un pas de 10 %HR. La transition d'un palier à l'autre intervient lorsque l'un des critères suivants est atteint :

- La variation de masse est inférieure à 0,0007 %/min (pourcentage calculé à partir de la masse initiale),
- Le temps passé sur le palier excède 500 min.

La température de l'enceinte lors des essais était de $19,8 \pm 0,7$ °C. Ces essais ont été réalisés sur du bois brut et 3 échantillons torréfiés dont les pertes de masse lors de la torréfaction étaient 7,8, 16,4 et 25,0 %.

III.1.2. Résultats expérimentaux de sorption

Les principaux résultats sont présentés **Figure 103**.

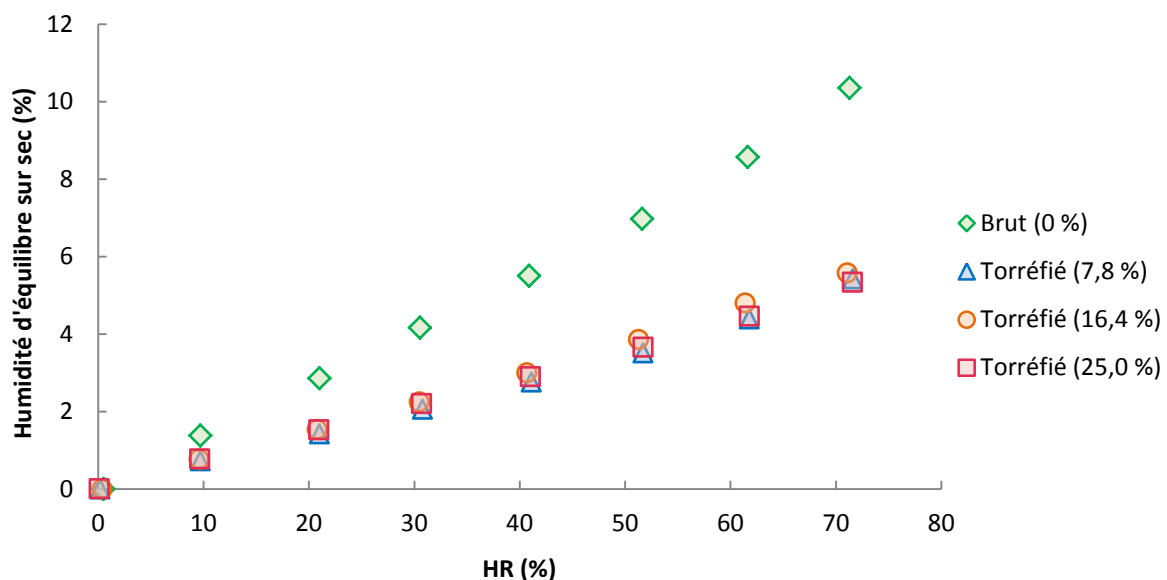


Figure 103 : Isothermes d'adsorption de la vapeur d'eau pour la biomasse brute et les trois biomasses torréfiées.

Ici, seule l'humidité des plaquettes à l'équilibre est reportée. Bien que les courbes n'aient pas été établies pour des humidités relatives élevées, l'allure observée est de type sigmoïde. Ceci correspond au type II de la classification des isothermes de sorption de l'IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry), caractéristique de l'adsorption multicouche des milieux non poreux ou macroporeux [193]. Les matériaux lignocellulosiques appartiennent classiquement à ce type [91,194].

Il apparaît clairement que le bois torréfié reprend moins d'humidité que le bois brut à conditions (température, HR) identiques. A 71 %HR, l'humidité d'équilibre des plaquettes non traitées est de 10,3 % alors qu'elle est de 5,3 % lorsque la biomasse a été torréfiée. De plus, sur la gamme de perte de masse étudiée, les capacités d'adsorption de la vapeur d'eau

sont indépendantes du degré de torréfaction. La diminution des propriétés hygroscopiques de la biomasse ne nécessite donc pas une dégradation intégrale des hémicelluloses. En effet, le départ des groupes hydroxyles est suffisant pour diminuer l'affinité du polymère avec l'eau. Il peut donc être conclu que la torréfaction permet une diminution conséquente de l'affinité des plaquettes de bois avec l'eau. Ceci représentera un réel avantage lorsque la biomasse sera stockée en vue de sa valorisation énergétique.

Pour deux échantillons de bois torréfié, une étape de désorption a été réalisée consécutivement à l'adsorption. La désorption a également été partiellement effectuée lors de l'analyse du bois brut. Les résultats sont présentés **Figure 104**.

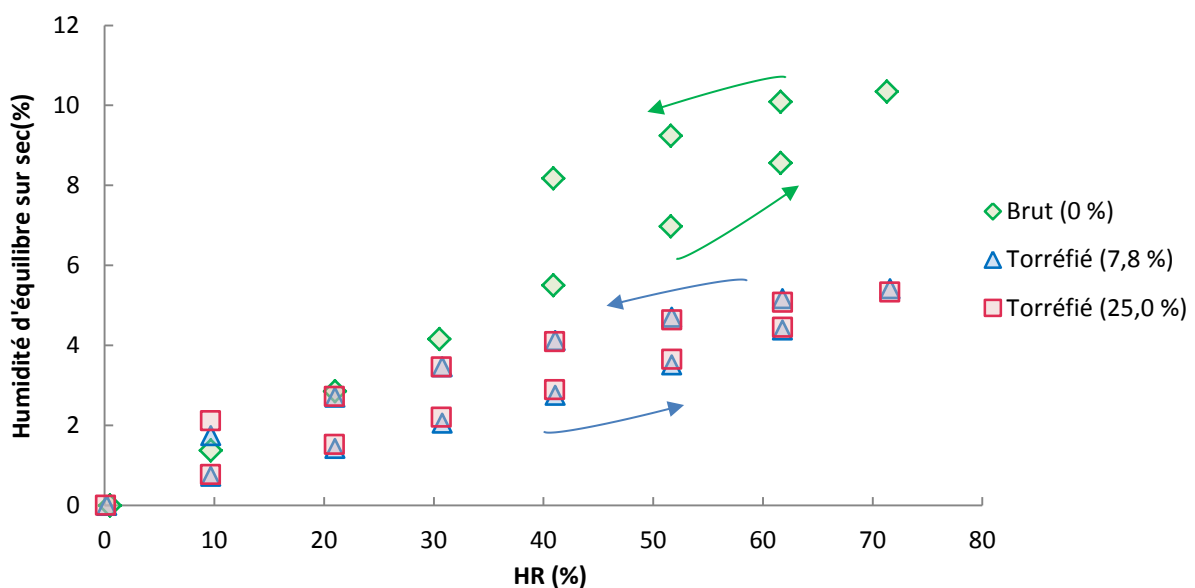


Figure 104 : Cycles adsorption-désorption de deux échantillons de bois torréfié et un échantillon de bois brut.

Bien que les deux échantillons torréfiés aient subi des pertes de masse très différentes, les comportements observés sont identiques. La différence observée lors de l'adsorption entre les plaquettes brutes et les plaquettes torréfiées est également visible lors de la phase de désorption. Cette figure met également en évidence le phénomène d'hystérésis : à une humidité relative donnée, l'humidité d'équilibre du bois est plus élevée au cours de la désorption qu'au cours de l'adsorption. Une des explications les plus courantes de ce phénomène [87,89] est que lors de la désorption, les sites de sorption non occupés par les molécules d'eau se lient entre eux. Ceci est également favorisé par le retrait volumique du bois qui rapproche les polymères les uns des autres. Ainsi, lors de la phase d'adsorption suivante, moins de sites sont disponibles pour la fixation de l'eau, ce qui conduit à de plus

faibles humidités d'équilibre. Au cours de l'adsorption, le gonflement du bois libère progressivement des sites de sorption qui deviennent à nouveau disponibles pour l'eau.

Dans la littérature, l'effet du traitement thermique sur le phénomène d'hystérésis n'est pas tranché : certains auteurs concluent à une augmentation de l'hystérésis [89], d'autres à une diminution [92] et d'autres encore à l'absence d'effet [19]. Il faut cependant noter que ces études ont été menées sur des bois traités à des températures de l'ordre de 180-220 °C. Aux températures de torréfaction étudiées ici, une diminution de l'hystérésis est clairement visible, comme l'illustre la **Figure 105**.

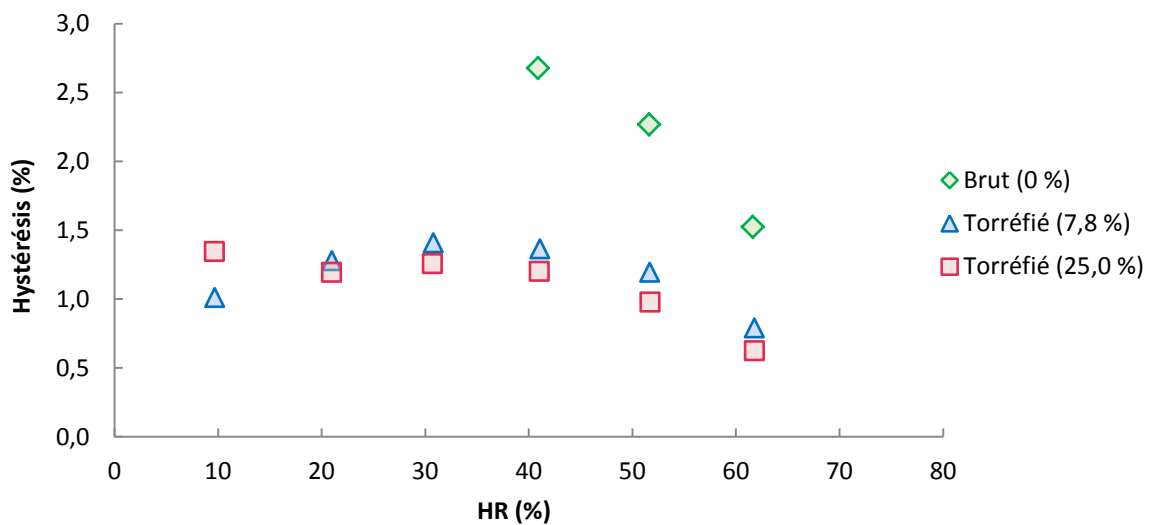


Figure 105 : Évolution de l'hystérésis en fonction de l'humidité relative pour deux échantillons de bois torréfié et pour le bois brut.

L'hystérésis est ici définie comme la différence entre les valeurs obtenues lors de la phase de désorption et les valeurs obtenues lors de la phase d'adsorption. Ainsi, l'hystérésis est deux fois moins importante lorsque les plaquettes ont été torréfiées.

III.2. Identification de modèles classiques

III.2.1. Présentation des modèles

Pour finir l'étude de l'affinité avec l'eau, il a été décidé d'appliquer des modèles classiques pour représenter les isothermes d'adsorption. Ces modèles peuvent être classés en deux grandes catégories : les modèles théoriques et les modèles empiriques. Ces modèles relient l'humidité d'équilibre de l'échantillon $X_{\text{éq}}$ à l'activité de l'eau a_w . En assimilant la vapeur d'eau à un gaz parfait, l'activité peut être définie suivant l'**Équation 102** [195].

$$a_w = \frac{P_v(T)}{P_{v,\text{sat}}(T)} = \frac{\text{HR}}{100} \quad \text{Équation 102}$$

Où $P_v(T)$ et $P_{v,sat}(T)$ sont respectivement la pression partielle en vapeur d'eau et la pression de vapeur saturante à la température T .

Les principaux **modèles théoriques** sont les suivants [196]:

- Le modèle BET (Brunauer-Emmett-Teller) suppose une adsorption en multicouche. La première couche a une chaleur d'adsorption particulière et les suivantes sont assimilées à de l'eau pure. Ce modèle n'est valable que pour les faibles activités de l'eau (classiquement inférieures à 0,5). L'humidité d'équilibre de l'échantillon est alors régie par l'**Équation 103**.

$$X_{\text{éq}} = X_0 \frac{Ca_w}{(1 - a_w)(1 + (C - 1)a_w)} \quad \text{Équation 103}$$

Avec C une constante et X_0 la teneur en eau à la saturation de la monocouche.

- Le modèle GAB (Guggenheim-Anderson-de Boer) est une extension du modèle BET prenant en compte un comportement différent de l'eau pure pour les couches superposées. Cette adaptation est réalisée par l'intermédiaire d'un paramètre correctif K :

$$X_{\text{éq}} = X_0 \frac{CKa_w}{(1 - Ka_w)(1 + (C - 1)Ka_w)} \quad \text{Équation 104}$$

L'intérêt de cette expression est qu'elle est valide même pour des valeurs élevées de a_w (jusqu'à 0,9) et que les constantes C et K ont des significations physiques [197]:

$$\begin{cases} C = C_0 \exp\left(\frac{H_w - H_m}{R_{GP}T}\right) \\ K = K_0 \exp\left(\frac{H_w - H_q}{R_{GP}T}\right) \end{cases} \quad \text{Équation 105}$$

Avec H_w la chaleur de condensation de l'eau pure, H_m la chaleur de sorption totale de la première couche et H_q la chaleur de sorption totale des multicouches.

Les **modèles empiriques** les plus couramment employés pour caractériser la biomasse [87,91] sont ceux définis pour une large gamme d'activités de l'eau. Ces modèles sont systématiquement appelés à deux constantes nommées A et B :

- Modèle d'Oswin ($0,1 < a_w < 0,9$) :

$$X_{\text{éq}} = A \left(\frac{a_w}{1 - a_w}\right)^B \quad \text{Équation 106}$$

- Modèle de Halsey ($0,1 < a_w < 0,8$)

$$X_{\text{éq}} = \left(\frac{-A}{\ln(a_w)} \right)^{1/B} \quad \text{Équation 107}$$

- Modèle de Chung-Pfost ($0,2 < a_w < 0,9$)

$$X_{\text{éq}} = \frac{1}{B} \left(\ln(A) - \ln(-\ln(a_w)) \right) \quad \text{Équation 108}$$

Ces modèles mathématiques sont simples à mettre en œuvre et permettent généralement une bonne représentation des courbes obtenues expérimentalement.

Les constantes de ces modèles ont été identifiées afin de minimiser l'écart modèle-expérience sur l'ensemble du domaine étudié (0 – 70 %HR). Le modèle BET étant défini pour des activités de l'eau inférieures à 0,5, seuls les modèles GAB, Oswin, Halsey et Chung-Pfost sont conservés. Enfin, les comportements des trois échantillons torréfiés étant similaires, seuls les résultats du bois brut et du bois torréfié ayant subi une perte de masse de 7,8 % seront présentés.

III.2.2. Résultats de l'identification paramétrique

Les paramètres obtenus pour les 4 modèles sont présentés **Tableau 27**.

Tableau 27 : Paramètres des modèles d'adsorption obtenus après ajustement.

Modèle	GAB			Oswin		Halsey		Chung-Pfost	
	X_0	C	K	A	B	A	B	A	B
Brut	7,84	3,01	$6,40 \cdot 10^{-1}$	$6,43 \cdot 10^{-2}$	$5,59 \cdot 10^{-1}$	6,05	1,20	3,91	$2,55 \cdot 10^{-1}$
Torréfié	3,24	3,28	$7,40 \cdot 10^{-1}$	$3,26 \cdot 10^{-2}$	$5,76 \cdot 10^{-1}$	2,62	1,18	4,21	$5,22 \cdot 10^{-1}$

La **Figure 106** présente les résultats des simulations avec ces paramètres.

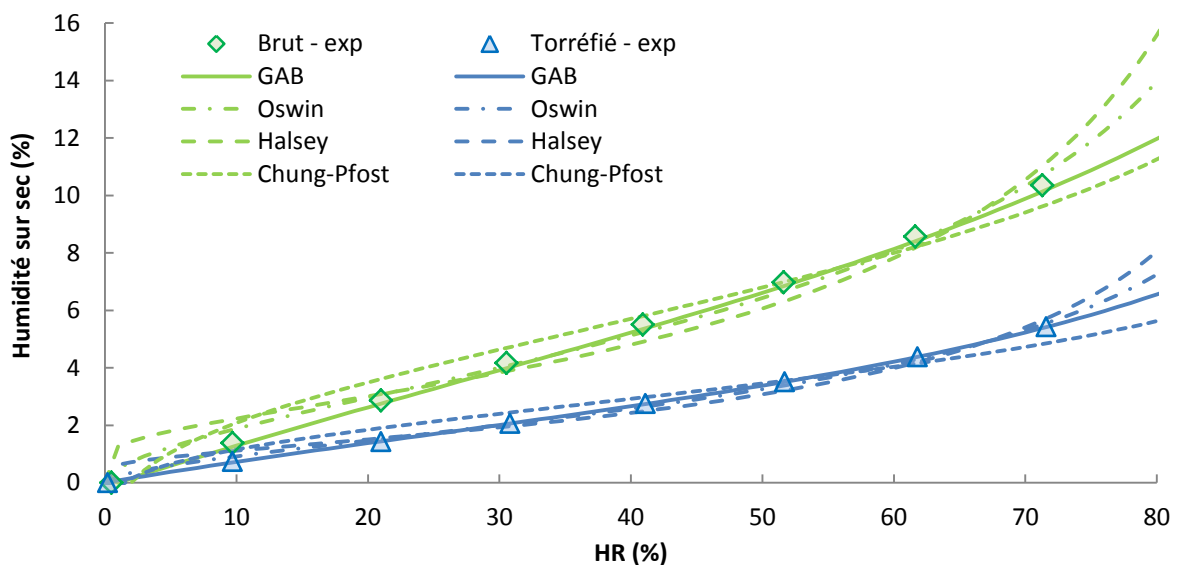


Figure 106 : Comparaison des résultats expérimentaux d'adsorption de vapeur d'eau avec les résultats des modèles pour le bois brut et le bois torréfié.

Ainsi, les modèles les plus fidèles aux résultats expérimentaux sont le modèle GAB et le modèle d'Oswin. Il faut cependant noter que les jeux de paramètres estimés ici sont adaptés sur la gamme allant de 0 à 70 %HR. Il serait intéressant de valider les modèles jusqu'à 90 %HR afin de représenter le comportement global des matériaux.

Afin de faciliter la comparaison des résultats de différents modèles, il est fréquemment proposé de tracer les résidus de l'ajustement en fonction de l'humidité d'équilibre [91]. Les résidus sont définis comme les différences entre les valeurs expérimentales et les valeurs prédites. La **Figure 107** représente les résidus pour les 4 modèles et les deux biomasses en fonction de l'humidité d'équilibre mesurée.

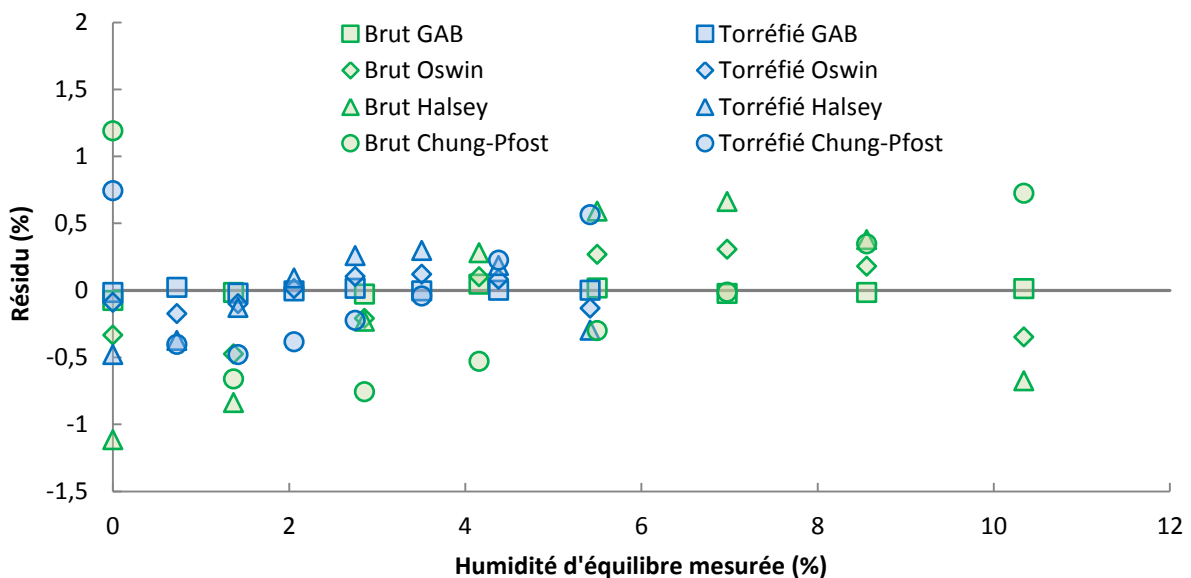


Figure 107 : Tracé des résidus en fonction de l'humidité d'équilibre mesurée.

L'objectif d'un tel tracé est d'identifier des tendances : un modèle est considéré comme adapté si la répartition des résidus est aléatoire. Le seul modèle ne montrant pas de réelle tendance est le modèle GAB. C'est de plus celui qui possède les plus faibles résidus pour les deux biomasses. Il peut être conclu que ce modèle est le plus pertinent pour représenter l'adsorption de vapeur d'eau des plaquettes brutes et torréfiées.

Pour ce modèle, l'analyse des paramètres déterminés lors de l'ajustement montre que la principale différence entre les deux biomasses réside dans la constante X_0 (voir **Tableau 27**). Cette constante est divisée par 2 après torréfaction, ce qui indique que la monocouche est saturée en eau à une plus faible humidité d'équilibre. La faible affinité du bois torréfié avec l'eau serait donc due à la diminution du nombre de groupements hydroxyles disponibles, même lorsque la perte de masse est faible.

IV. Evaluation de la broyabilité

Les mesures de broyabilité de la biomasse torréfiée, présentées dans l'état de l'art, n'ont pas permis de dégager de méthode optimale permettant la prise en compte simultanée de l'énergie consommée et de la granulométrie du broyat. Une nouvelle méthodologie sera donc proposée ici.

IV.1. Mise en place du dispositif expérimental

L'installation développée pour mesurer les énergies de broyage est présentée **Figure 108a**.

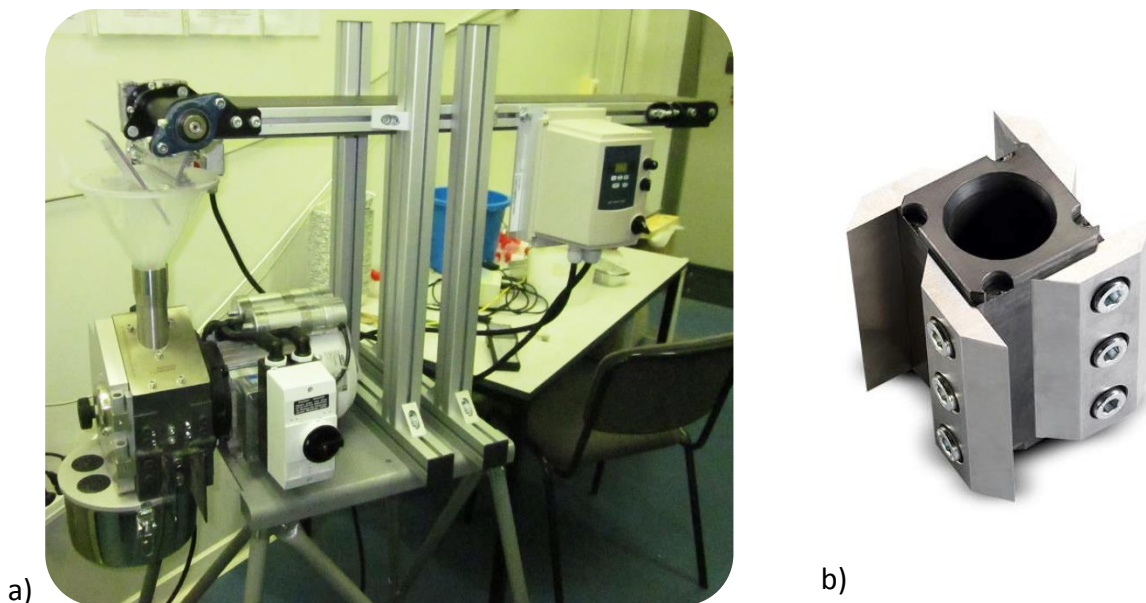


Figure 108 : a) Installation de mesure de l'énergie de broyage constituée d'un broyeur à couteaux (à gauche) alimenté par un convoyeur à bande (à droite) et d'un wattmètre (non photographié) et b) détail du rotor de broyage.

Le broyeur de laboratoire Pulverisette 15 (Fritsch, Idar-Oberstein, Allemagne) est équipé d'un rotor à 4 lames en acier (voir **Figure 108b**) et la chambre de broyage est également pourvue de 2 contre-couteaux fixes. Le rotor est entraîné par un moteur électrique de puissance maximale 2,1 kW. La puissance réellement consommée est mesurée en continu par un wattmètre numérique ISW 8350 (leS Instruments et Systèmes, Grigny, France). Un ordinateur permet l'acquisition des données (1 valeur par seconde).

Un convoyeur à bande BCO40 END ECO (Néolution, Mions, France) de longueur 1 m et de largeur 0,15 m a été installé pour alimenter le broyeur en continu. La bande en PVC est entraînée par un moteur équipé d'un motoréducteur et d'un variateur de fréquence permettant la régulation de la vitesse d'avance entre 0 et 0,6 m/min. Le produit à broyer

chute du convoyeur dans la trémie du broyeur (équipée d'une chicane anti-reflux) qui l'achemine jusqu'à la chambre de broyage. Le broyeur peut également être alimenté manuellement. En sortie du broyeur, différentes grilles peuvent être utilisées suivant la granulométrie souhaitée pour le broyat :

- Grilles à perforations trapézoïdales de 0,5 ou 1 mm,
- Grille à perforations carrées de 4 mm.

Enfin, le broyat est récupéré dans un pot fixé de manière étanche sous la grille.

IV.2. Etablissement du protocole

Deux méthodes ont été envisagées pour réaliser les mesures d'énergie de broyage. Les deux protocoles seront décrits, puis leurs résultats respectifs seront comparés afin de choisir la méthode la plus adaptée.

IV.2.1. Description des protocoles

La première méthode, dite à « **faible puissance** », consiste en l'**alimentation continue** en biomasse. Le mode opératoire est le suivant :

- 1) Démarrage de l'acquisition des mesures du wattmètre,
- 2) Mise en marche du broyeur et fonctionnement à vide pendant 100 s pour établir la ligne de base de la mesure de puissance,
- 3) Mise en mouvement du convoyeur à bande (la bande ayant préalablement été chargée d'un lit de plaquettes le plus homogène possible – en largeur et épaisseur – et dont la masse est connue),
- 4) Réglage de la vitesse d'avance de la bande afin d'éviter l'accumulation de plaquettes de bois à la base de la trémie,
- 5) Arrêt du convoyeur une fois celui-ci vide,
- 6) Arrêt du broyeur une fois la puissance consommée par le moteur redevenue stable,
- 7) Arrêt de l'acquisition du wattmètre.

Le deuxième protocole, dit à « **forte puissance** », est basé sur une **alimentation manuelle** de la biomasse. Seules les étapes 3 à 5 diffèrent du protocole précédent. Les plaquettes sont préalablement réparties en 6 échantillons de masse connue d'environ 50 g chacun. Ces échantillons sont alors chargés dans la trémie successivement et la biomasse est forcée dans

la chambre de broyage à l'aide d'un poussoir. La pression exercée sur le poussoir est ajustée en temps réel par l'opérateur afin d'atteindre une puissance instantanée – consommée par le moteur – située entre 1000 et 1200 W.

Quel que soit le protocole choisi, l'installation est vidée et nettoyée après chaque essai. La biomasse contenue dans le pot de récupération est conservée pour l'analyse granulométrique et celle située dans la chambre de broyage est jetée.

IV.2.2. Comparaison des résultats des deux méthodes

Les signaux de puissance enregistrés par l'intermédiaire du wattmètre pour les deux méthodes sont présentés **Figure 109**. La grille à perforations de 0,5 mm a été utilisée.

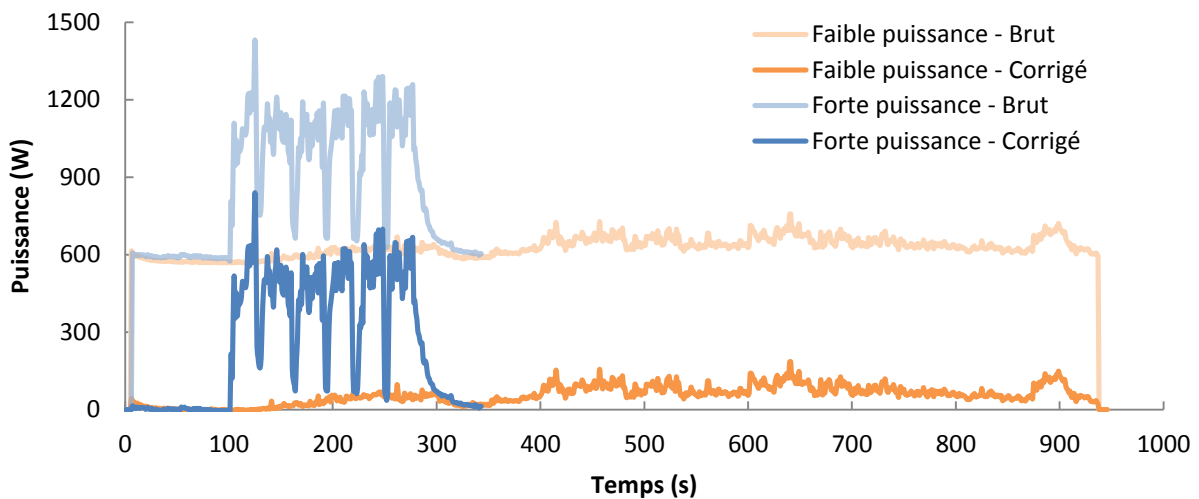


Figure 109 : Comparaison des signaux bruts et corrigés obtenus lors de la mesure d'énergie de broyage suivant les méthodes à faible et à forte puissances.

Les signaux bruts permettent l'évaluation de la consommation à vide du broyeur (appelée ligne de base) : environ 600 W. Une légère surconsommation est visible durant les quelques secondes consécutives à la mise en route du broyeur. Chaque signal est ensuite corrigé en soustrayant à l'ensemble de l'essai la valeur moyenne de la puissance à vide enregistrée entre 40 et 100 s. Les signaux corrigés sont également présentés **Figure 109**.

Pour choisir la méthode, un des premiers critères de sélection identifiés est le rapport $\frac{\text{puissance lors du broyage}}{\text{puissance à vide}}$. En moyenne, ce rapport est inférieur à 1,2 pour la méthode à faible puissance. En effet, lorsque l'alimentation du broyeur est continue, la pression exercée sur la biomasse située entre la trémie et la chambre de broyage est insuffisante pour forcer une quantité importante de plaquettes à pénétrer dans la chambre de broyage. De plus, des

voûtes ont tendance à se former à l'entrée de cette chambre ce qui limite encore le débit de broyage. Pour la méthode à forte puissance, le rapport $\frac{\text{puissance lors du broyage}}{\text{puissance à vide}}$ est environ égal à 2, ce qui est jugé acceptable. Pour cette méthode, les pics correspondant aux 6 échantillons sont clairement visibles et le temps écoulé entre ces pics est d'environ 5 s.

L'énergie consommée lors du broyage est calculée par intégration de la courbe de puissance corrigée par la méthode des trapèzes implémentée sous MATLAB®. Le résultat final est obtenu en divisant cette valeur par la masse totale de biomasse broyée.

Afin de permettre la sélection définitive de la méthode, les deux protocoles ont été testés à 5 reprises sur du bois brut ($H_s \approx 10\%$) et à 5 reprises sur un bois torréfié ayant subi une perte de masse ML d'environ 10%. Les résultats sont résumés dans le **Tableau 28**.

Tableau 28 : Énergies de broyage obtenues par les deux méthodes expérimentales avec du bois brut et du bois torréfié.

Biomasse	Faible puissance	Forte puissance
Bois brut ($H_b \approx 9\%$)	399 ± 47 kJ/kg	340 ± 9 kJ/kg
Bois torréfié ($ML \approx 10\%$)	152 ± 14 kJ/kg	109 ± 4 kJ/kg

Comme attendu, l'énergie nécessaire au broyage du bois torréfié est plus faible que celle nécessaire au broyage du bois brut. Cette tendance est observée quelle que soit la méthode utilisée. Cependant, il apparaît que l'incertitude de mesure liée à la méthode à faible puissance est 3 à 5 fois plus élevée que celle liée à la méthode à forte puissance. Ceci est probablement une conséquence du rapport $\frac{\text{puissance lors du broyage}}{\text{puissance à vide}}$. En effet, lorsque ce rapport est faible, les variations de puissance de la ligne de base ont un impact important sur les valeurs de puissance mesurées.

Enfin, il convient de noter que les énergies de broyage calculées lors de l'utilisation de la méthode à faible puissance sont plus élevées qu'avec la méthode à forte puissance. Une hypothèse pour expliquer cette observation est que le rendement du broyeur dépend de la puissance à laquelle il fonctionne. Un fonctionnement à 1200 W serait donc plus proche de la puissance nominale, permettant ainsi l'obtention d'un meilleur rendement. Il peut être conclu de cette observation qu'il est primordial de réaliser les mesures d'énergie de broyage dans une gamme de puissances aussi restreinte que possible.

En conclusion, la méthode à forte puissance semble la plus adaptée aux mesures d'énergie de broyage et seule cette méthode sera utilisée dans la suite de ces travaux.

IV.3. Broyabilité des différentes biomasses

IV.3.1. Comparaison biomasse brute / biomasse torréfiée

Les mesures ont été réalisées sur la biomasse brute et sur 11 biomasses torréfiées dont la perte de masse lors de la torréfaction est connue. Toutes les biomasses ont été préalablement séchées en étuve à 105 °C afin d'éliminer l'influence de l'humidité reprise pendant le stockage. Deux mesures de broyabilité sont ensuite réalisées pour chaque biomasse et les résultats présentés sont la moyenne des deux valeurs obtenues. Le broyat produit lors de ces deux essais est conservé pour être analysé. Les essais ont été réalisés avec une grille de broyage à perforations de 0,5 mm. Seule une biomasse torréfiée a également été broyée avec une grille à perforations de 1 mm. Cet essai sera clairement différencié des autres.

Les résultats des mesures sont présentés **Figure 110**.

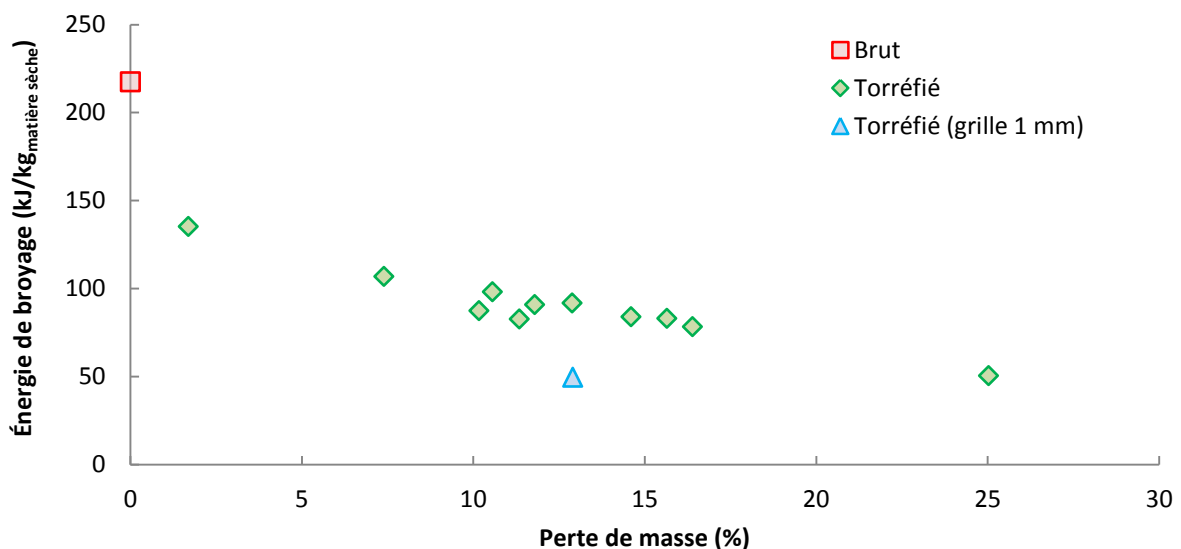


Figure 110 : Évolution de l'énergie nécessaire au broyage de la biomasse torréfiée en fonction de la perte de masse lors de la torréfaction.

L'énergie nécessaire au broyage diminue fortement dès les faibles pertes de masse. En effet, elle est de 218 kJ/kg_{matière sèche} pour les plaquettes brutes et chute à 135 kJ/kg_{matière sèche} pour les plaquettes ayant subi une perte de masse de 1,7 %. Ceci représente une diminution de 38 % de l'énergie de broyage. Le gain en broyabilité lorsque la perte de masse augmente est ensuite plus restreint et évolue linéairement. L'énergie nécessaire au broyage d'une

biomasse torréfiée avec une perte de masse de 25 % est tout de même divisée par 4 par rapport à la biomasse brute. Il faut également noter que l'utilisation d'une grille avec des perforations 2 fois plus larges permet de diviser par 2 l'énergie de broyage. Ceci démontre l'influence de la taille des particules en sortie du broyeur.

IV.3.2. Comparaison biomasse sèche / biomasse humide

A des fins de comparaison, il a été décidé de comparer ces énergies de broyage à celles de la biomasse humide. La biomasse brute a une humidité d'environ 12 % à la livraison et, pour obtenir d'autres points de comparaison, il a été décidé de ré-humidifier une partie de cette biomasse. La masse d'eau à ajouter a été calculée pour obtenir des humidités de 20, 30 et 40 %. L'eau a été répartie sur les plaquettes à l'aide d'un vaporisateur. Les plaquettes humides ont été placées dans des pots étanches pendant environ 4 semaines et agitées régulièrement. Ceci a permis au bois de se mettre à l'équilibre à l'humidité souhaitée. Il a été vérifié qu'à la fin de la période de stabilisation aucune eau sous forme liquide n'était présente dans les pots de conditionnement. L'humidité réelle des biomasses a été mesurée lors de leur utilisation pour les mesures d'énergie de broyage.

Les biomasses humides obtenues ne sont pas strictement identiques à des biomasses n'ayant jamais subi de séchage mais elles s'en approchent et devraient fournir des informations précieuses sur l'influence de l'humidité sur le broyage.

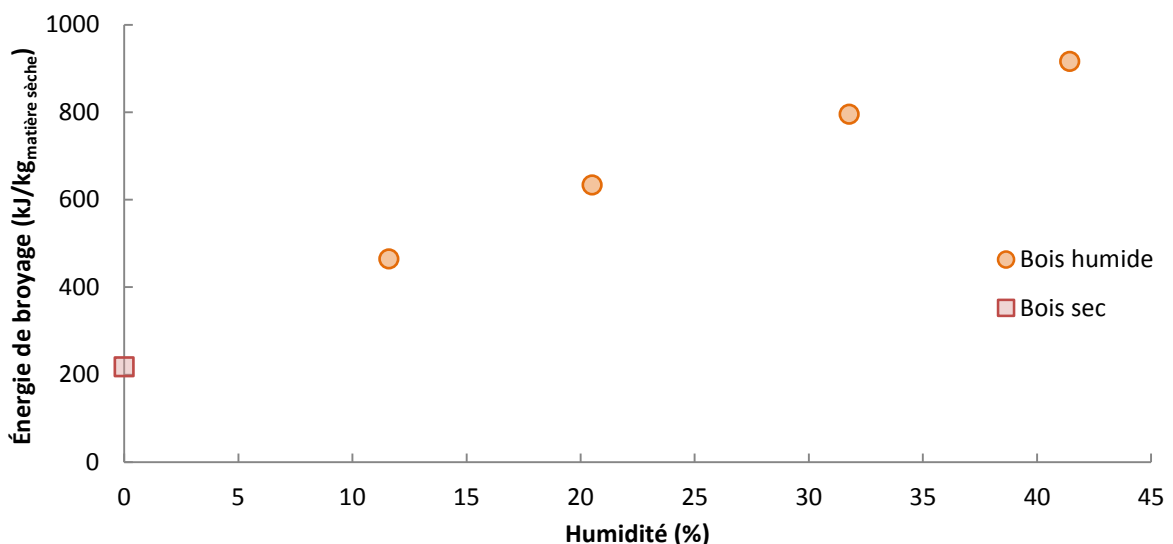


Figure 111 : Influence de l'humidité sur l'énergie de broyage de la biomasse brute.

La **Figure 111** représente l'évolution de l'énergie de broyage en fonction de l'humidité de la biomasse brute. Pour la comparaison, les énergies mesurées expérimentalement ont été ramenées au kilogramme de biomasse sèche. Il apparaît clairement qu'une augmentation de l'humidité accroît fortement l'énergie nécessaire au broyage. En effet, lorsque l'humidité augmente de 0 à 41 %, l'énergie de broyage est multipliée par un facteur 4,2.

Pour faciliter la comparaison entre le gain apporté par le séchage et celui dû à la torréfaction, la représentation de la **Figure 112** est proposée.

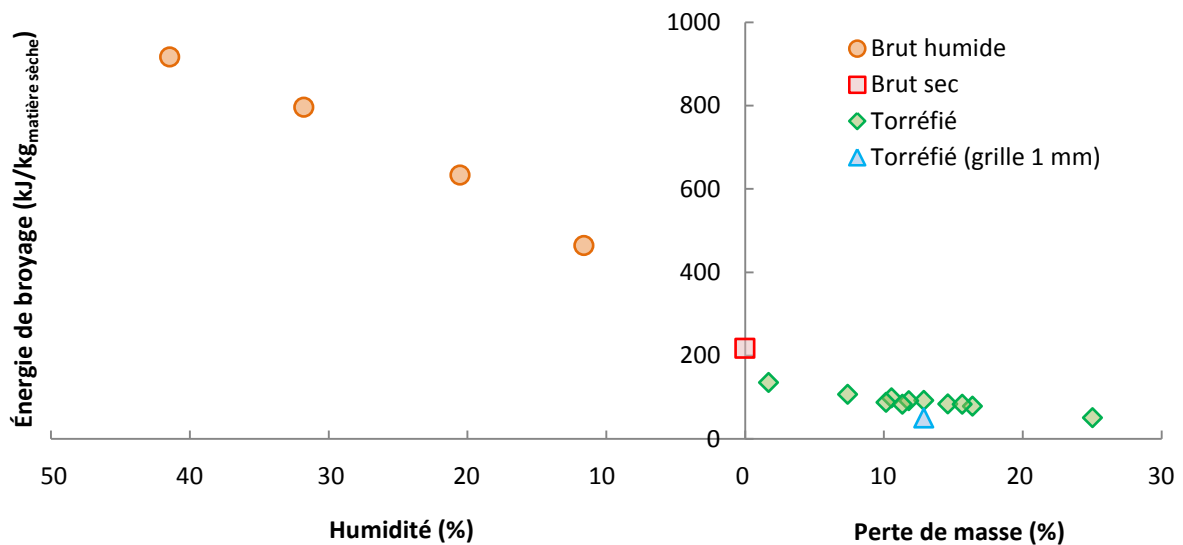


Figure 112 : Représentation simultanée de l'impact de l'humidité et de la perte de masse sur l'énergie de broyage.

Le séchage de la biomasse permet donc un gain bien supérieur à celui de la torréfaction en termes d'énergie de broyage. Il faut cependant noter que l'énergie mesurée avec ce dispositif expérimental n'est pas utilisée exclusivement pour la fragmentation des particules mais qu'une certaine quantité participe également à l'échauffement du broyeur. Dans le cas de l'étude du broyage de biomasse humide, une partie de l'énergie est probablement consommée pour un séchage partiel du bois. De plus, même si aucune obstruction de la grille de broyage n'a été clairement identifiée lors des essais, il semble probable que l'évacuation du broyat humide soit plus difficile que lorsque le broyat est sec. Ceci peut également provoquer une légère surconsommation énergétique. L'énergie mesurée n'est donc pas uniquement une énergie de fragmentation de la structure fibreuse.

IV.4. Prise en compte de la granulométrie du broyat

Les variations d'énergie de broyage mises en évidence sont classiquement accompagnées de variations de la granulométrie du broyat. La comparaison de la broyabilité de différentes biomasses doit donc prendre en compte l'évolution simultanée de ces deux grandeurs. Dans cette partie, l'équipement utilisé pour la mesure de la granulométrie du broyat sera présenté puis deux méthodes d'expression des résultats seront comparées.

IV.4.1. Mesure de la répartition granulométrique

Principe de la granulométrie laser

La mesure de la granulométrie du broyat a été réalisée à l'aide d'un granulomètre laser Mastersizer 3000 (Malvern Instruments Ltd, Malvern, Angleterre). Le principe est de faire passer un échantillon de particules dispersées (dans un milieu liquide ou gazeux) devant un rayon laser. Lorsque le rayon laser rencontre des particules, il est diffracté selon un angle dépendant de la taille des particules, et avec une intensité dépendant du nombre de particules. Plus les particules sont de petite taille, plus l'angle de diffraction est grand [198] et, plus il y a de particules, plus l'intensité reçue est importante. Des capteurs de précision permettent la mesure de l'intensité lumineuse en fonction de l'angle de diffraction.

La théorie de Mie est ensuite utilisée pour en déduire la taille des particules. Cette théorie permet la transformation du signal brut reçu par les capteurs en une distribution granulométrique de l'échantillon (en %vol) en assimilant les particules à des sphères de volume équivalent.

Le principal avantage de la théorie de Mie est qu'elle est applicable à une large gamme de tailles de particules, y compris à des particules dont la taille est inférieure à la longueur d'onde du laser. Son principal inconvénient est qu'elle assimile toutes les particules à des sphères. Pour des particules de formes irrégulières, il est donc impossible de savoir quelle dimension est mesurée. Cependant, un tel biais est inévitable, quelle que soit la méthode de mesure choisie, lorsque les particules sont de petite taille.

Protocole expérimental

Seuls quelques grammes sont nécessaires pour réaliser l'analyse au granulomètre laser. Afin d'obtenir des échantillons représentatifs de l'ensemble du broyat, un échantillonneur à rifles (voir **Figure 113a**) a été utilisé.

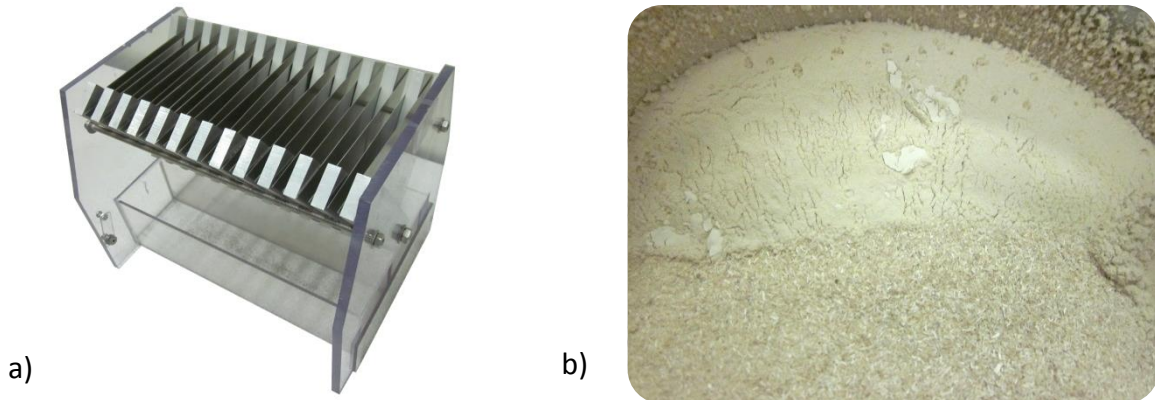


Figure 113 : a) Échantillonneur à rifles et b) dépôt de particules fines dans le bac de récupération du broyeur.

Pour chaque biomasse broyée, deux prélèvements ont ainsi été réalisés. Ils ont ensuite été séchés (pour éviter leur agglomération) et analysés par granulométrie laser en voie sèche : l'agent dispersant est donc l'air.

Il faut noter que pour les biomasses les plus humides (30 et 40 % d'humidité), des quantités importantes de particules fines (voir **Figure 113b**) ont été observées dans le pot de récupération du broyat. Leur forte volatilité n'a pas permis de les collecter intégralement. Néanmoins, ce biais ne devrait pas impacter sensiblement les résultats.

IV.4.2. Courbes granulométriques obtenues

Un exemple des résultats obtenus est proposé **Figure 114** pour la biomasse brute sèche, une biomasse brute humide et trois biomasses torréfiées.

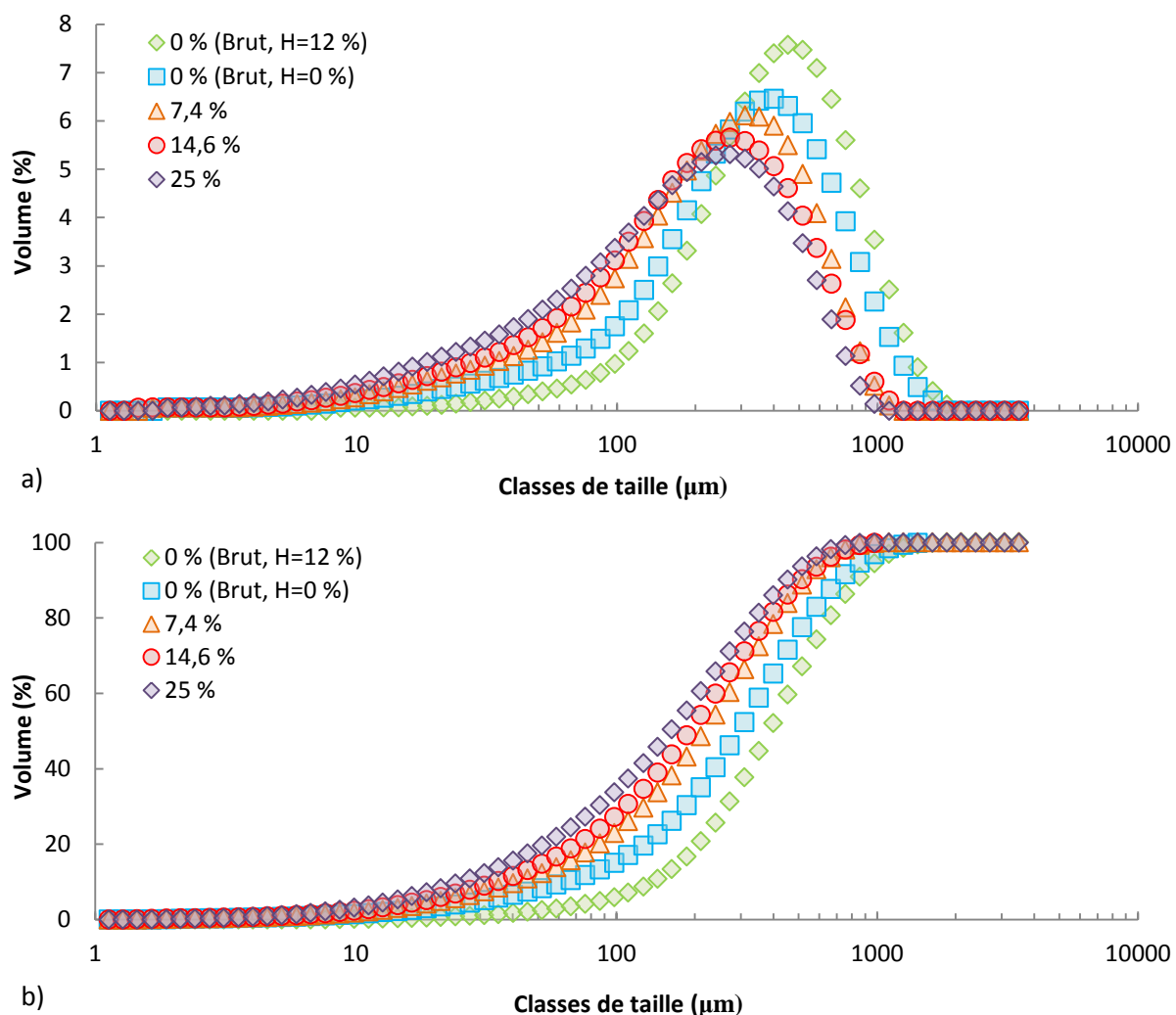


Figure 114 : Influence de la perte de masse lors de la torréfaction sur la granulométrie du broyat.
 a) Distribution granulométrique et b) distribution granulométrique cumulée.

La biomasse sèche a une distribution granulométrique décalée vers les petites tailles par rapport à la biomasse humide. Il en est de même lorsque la perte de masse augmente : plus la perte de masse est élevée, plus les particules sont fines. Ce décalage vers les particules fines est accompagné d'un étalement des courbes granulométriques.

A partir des courbes cumulées présentées **Figure 114b** peuvent être déduites plusieurs données chiffrées permettant de rendre compte de la taille des particules. C'est le cas notamment du diamètre médian d_{50} qui correspond au diamètre en dessous duquel sont situées 50 %vol des particules. A titre d'exemple, le d_{50} vaut 250, 219 et 183 μm respectivement pour les biomasses torréfiées ayant des pertes de masse de 7,4, 14,6 et 25,0 %.

IV.4.3. Prise en compte de la granulométrie dans l'expression de l'énergie de broyage

Expression de la surface créée

L'objectif du broyage est d'augmenter l'accessibilité de la matière aux gaz du procédé de conversion (O_2 , CO_2 , H_2O) et de faciliter les transferts au sein des particules. Ceci se traduit par une augmentation de la surface externe des particules. La méthode présentée ici se propose de rapporter l'énergie consommée par le broyeur à la surface externe de particules créée lors de la fragmentation. Cette surface est définie **Équation 109**.

$$S_{\text{créée}} = S_{\text{tot, broyat}} - S_{\text{tot, plaquettes}} \quad \text{Équation 109}$$

Où $S_{\text{tot, plaquettes}}$ et $S_{\text{tot, broyat}}$ sont les surfaces des particules avant et après broyage. Ces surfaces doivent être estimées.

La distribution granulométrique étant connue pour le **broyat**, la méthode suivante est proposée : en assimilant toujours les particules à des sphères (hypothèse entachée d'erreur mais cohérente avec le mode d'établissement de la distribution granulométrique), il est possible de calculer le nombre de particules de chaque diamètre équivalent composant un échantillon de volume V donné. La surface de ces sphères est calculée et utilisée pour déterminer la surface totale S des particules composant le volume V . Il ne reste alors qu'à utiliser la masse volumique des particules pour pouvoir calculer une surface totale $S_{\text{tot, broyat}}$ des particules par unité de masse (en $m^2/kg_{\text{matière sèche}}$). En pratique, l'**Équation 110** est utilisée.

$$S_{\text{tot, broyat}} = \frac{\sum_i x_i S_i / V_i}{\rho_{\text{part}}} \quad \text{Équation 110}$$

Où x_i est la fraction volumique de particules de diamètre d_i . S_i et V_i sont respectivement la surface et le volume de ces particules calculés suivant l'**Équation 111**.

$$\begin{cases} S_i = 4\pi \left(d_i/2\right)^2 \\ V_i = 4/3 \pi \left(d_i/2\right)^3 \end{cases} \quad \text{Équation 111}$$

Pour déterminer la surface des **particules brutes avant broyage** $S_{\text{tot, plaquettes}}$, il a été décidé d'utiliser la même méthode. Pour cela, il était nécessaire d'établir la distribution

granulométrique des plaquettes. Celles-ci étant trop grandes pour être analysables par granulométrie laser, les dimensions présentées sur la **Figure 38** du **Chapitre 2** ont été utilisées. Afin de déterminer une unique dimension pour chaque particule, comme c'est le cas du granulomètre laser, la moyenne des trois dimensions mesurées a été utilisée, comme proposé par Robbe et Roger [199]. La taille des particules a également été mesurée sur 300 particules de bois torréfié ayant subi une perte de masse de 25,0 %. Les dimensions obtenues sont légèrement plus petites que celles du bois brut et ont été utilisées pour calculer la surface des **particules torréfiées avant broyage**.

Les masses volumiques du bois brut et du bois torréfié (ML=25,0 %) secs ont également été mesurées comme présenté lors du **Chapitre 2** (sur 30 particules poncées, dépoussiérées, pesées et mesurées). Les résultats sont identiques pour ces deux matériaux : $685 \pm 39 \text{ kg/m}^3$ et $669 \pm 58 \text{ kg/m}^3$ pour le bois brut et le bois torréfié respectivement.

Toutes les données étant désormais disponibles, la surface créée ($S_{tot, broyat} - S_{tot, plaquettes}$) peut être calculée et les résultats sont présentés **Figure 115**.

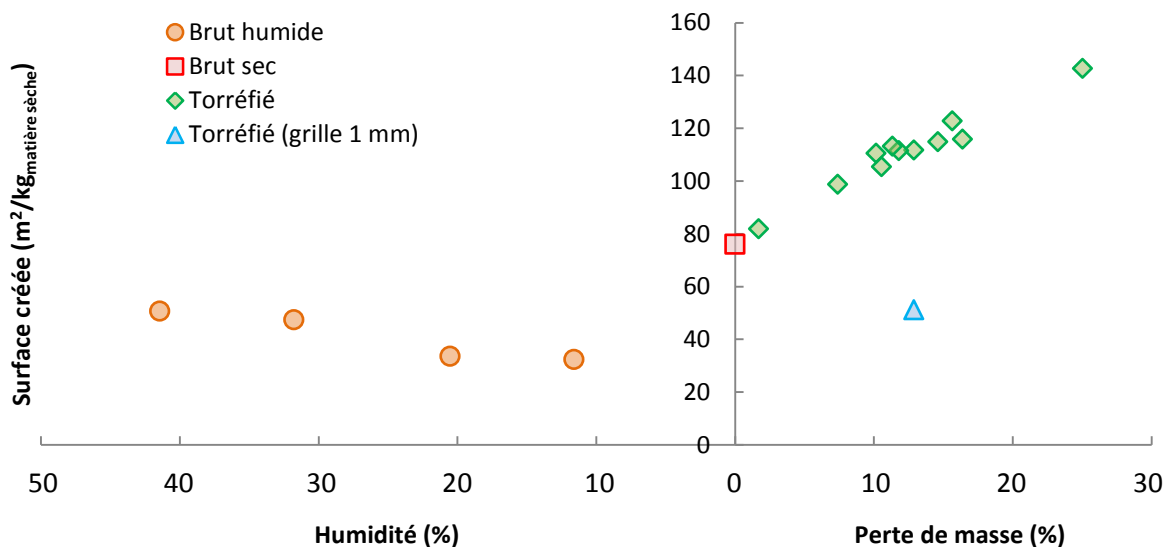


Figure 115 : Influence de l'humidité et de la perte de masse lors de la torréfaction sur la surface créée pendant l'étape de broyage.

L'évolution de la surface créée avec la perte de masse est cohérente : plus la biomasse est torréfiée, plus les particules créées sont petites, ce qui s'explique par la fragilisation de la structure. Cela mène donc à une importante création de surface. Il apparaît également que la surface créée est corrélée quasi-linéairement avec la perte de masse. Par contre, le comportement observé en fonction de l'humidité de la biomasse brute est plus inattendu.

En effet, il semble que plus l'humidité est élevée, plus la surface créée est importante. Deux hypothèses peuvent expliquer ce constat :

- Comme expliqué précédemment, les biomasses les plus humides ont mené à une production importante de particules fines lors du broyage, ce qui peut faire augmenter la surface totale des particules du broyat.
- Lorsque l'humidité est élevée, un fort retrait intervient pendant le séchage qui précède l'analyse granulométrique. Ainsi, des particules de même taille passant la grille de broyage à des humidités différentes auront des tailles variées lors de l'analyse granulométrique.

Ces surfaces ont permis de calculer l'énergie de broyage en $\text{kJ/m}^2_{\text{créé}}$. Cette grandeur classique est basée sur le concept d'énergie de rupture du matériau. Les résultats sont présentés **Figure 116**.

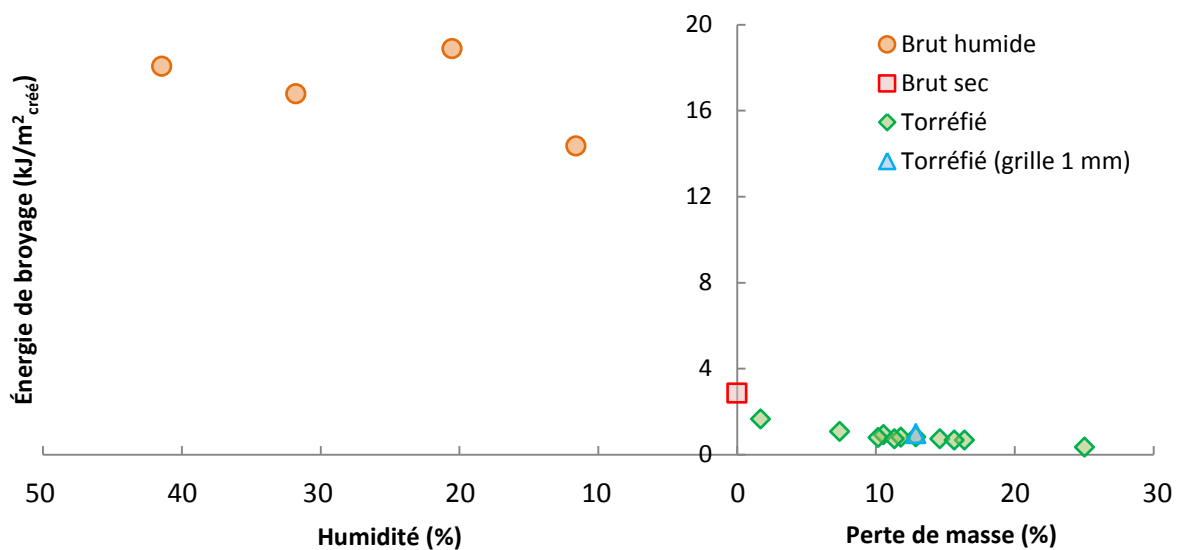


Figure 116 : Évolution de l'énergie de broyage avec l'humidité de la biomasse brute et la perte de masse de la biomasse torréfiée.

Ces résultats semblent montrer qu'au-delà d'une valeur de 20 %, l'humidité a peu d'influence sur l'énergie de broyage. Par contre, l'énergie de broyage est 5 fois plus élevée pour les plaquettes ayant une humidité de 12 % que pour les plaquettes sèches. De même, la méthode proposée ici montre que l'énergie de broyage est divisée par 8 entre la biomasse brute sèche et la biomasse torréfiée (avec $ML=25,0\%$) alors que le rapport entre ces deux valeurs n'était que de 4 lorsque la granulométrie n'était pas prise en compte. Enfin, la biomasse torréfiée et broyée avec une grille de 1 mm présente une énergie de broyage

similaire à la même biomasse broyée avec la grille 0,5 mm (0,97 et 0,82 kJ/m²_{créé} respectivement). Ceci tend à prouver que les résultats exprimés ici sont bien des propriétés intrinsèques aux biomasses.

Utilisation de la théorie de Von Rittinger

Pour évaluer la méthode proposée précédemment, la théorie de Von Rittinger rapportée par Temmerman *et al.* [200] a été également utilisée. Cette théorie, élaborée en 1867, part du constat que l'énergie de broyage est proportionnelle à la surface générée lors de la fragmentation. Ainsi, l'énergie E_{1-2} nécessaire pour fragmenter des particules de diamètre x_1 en particules de diamètre x_2 serait définie par l'Équation 112.

$$E_{1-2} = C_{VR} \left(\frac{1}{x_2} - \frac{1}{x_1} \right) \quad \text{Équation 112}$$

Où C_{VR} est une constante caractéristique du matériau. Pour appliquer cette expression à des particules de tailles diverses, il est nécessaire de définir x_1 et x_2 . Temmerman *et al.*, qui étudient le broyage de plaquettes de bois et de granulés dans un broyeur à marteaux, proposent d'utiliser le diamètre médian d_{50} défini plus haut. Ici, l'énergie de broyage et les tailles de particules sont connues, il est donc possible de déterminer la constante C_{VR} pour chaque biomasse. La Figure 117 rassemble les résultats obtenus.

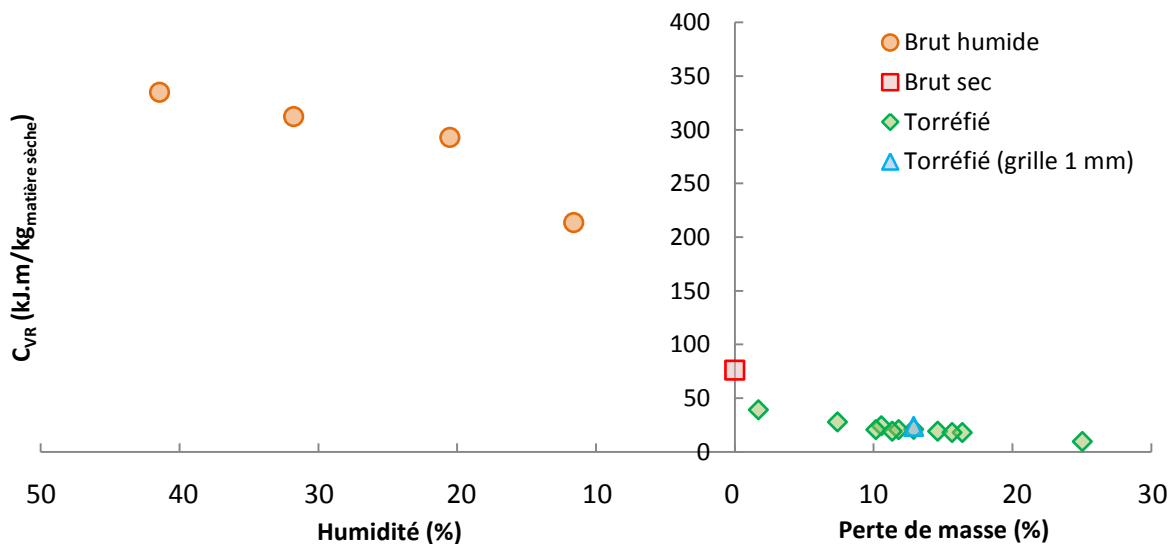


Figure 117 : Évolution de la constante de Von Rittinger avec l'humidité des plaquettes brutes et la perte de masse des plaquettes torréfiées.

La réponse de la constante de Von Rittinger à l'humidité de la biomasse est moins bruitée que l'allure observée précédemment. Cependant, le comportement global reste le même.

Ceci est en particulier vrai pour l'allure de la courbe d'évolution de la constante avec la perte de masse lors de la torréfaction. Le rapport des constantes à 0 et 25,0 % de perte de masse est aussi égal à 8. Il semble donc que ces deux méthodes mènent à des résultats similaires. Seules les expressions sont différentes : la méthode proposée dans ces travaux fait appel explicitement à une différence de surfaces entre les plaquettes avant et après broyage alors que dans l'expression de Von Rittinger, cette différence est ramenée à une différence de diamètres de particules. Ainsi, la méthode de Von Rittinger ne prend pas en compte l'étendue de la dispersion granulométrique.

V. Conclusions

Le nombre important d'échantillons qui ont pu être préparés, avec des degrés de torréfaction maîtrisés, a permis une étude fructueuse de l'évolution des différentes propriétés. Dans un premier temps, la composition de la biomasse torréfiée a été corrélée linéairement à la perte de masse et il a été montré que la torréfaction permet la production d'un matériau dont la composition se rapproche de celle du charbon. En particulier, la diminution de la teneur en matières volatiles et l'augmentation de la teneur en carbone fixe conduisent à une augmentation du pouvoir calorifique de la biomasse. Cette densification énergétique est donc un atout de poids pour la valorisation de la biomasse dans les procédés de production d'énergie comme la cocombustion. L'étude de la composition des fibres a mis en évidence que les hémicelluloses sont bien les polymères les plus dégradés lors de la torréfaction. D'autres composants de la matrice ligno-cellulosique subissent également des altérations qui modifient leurs propriétés. C'est notamment le cas de la cellulose dont une partie est rendue acido-insoluble lors des traitements aux plus hautes températures.

Des essais de sorption dynamique de vapeur d'eau ont également été menés. Ils ont montré que le bois présente une diminution de son caractère hygroscopique dès les faibles pertes de masse. En effet, trois biomasses torréfiées ayant des pertes de masse de 1,7 à 25,0 % ont montré des comportements identiques. A une humidité relative donnée, l'humidité d'équilibre de la biomasse torréfiée est deux fois plus faible que celle de la biomasse brute. La torréfaction permet également de diminuer l'amplitude du phénomène d'hystérésis. Enfin, des modèles ont été appliqués avec succès pour représenter les courbes de sorption des plaquettes brutes et torréfiées. Le modèle GAB, particulièrement représentatif des résultats expérimentaux, confirme que la diminution de l'affinité avec l'eau est due à un plus

faible nombre de sites actifs disponibles. Ceci conduit à la diminution de l'humidité d'équilibre à la saturation de la monocouche.

Pour finir, une installation permettant la mesure de l'énergie de broyage a été mise en place. Deux protocoles expérimentaux ont été évalués et le protocole le plus performant a été utilisé pour l'évaluation de la broyabilité des biomasses torréfiées et de la biomasse brute conditionnée à différentes humidités. L'étude granulométrique des broyats a fourni les données nécessaires à l'expression des résultats en prenant simultanément en compte l'énergie consommée par un broyeur et la taille des particules produites. Dans un premier temps, l'énergie consommée a été ramenée à la surface créée lors de la fragmentation puis ces résultats ont été comparés à une constante utilisée dans une corrélation issue de la littérature. Les deux expressions mènent à l'obtention de résultats similaires. En conclusion, la torréfaction diminue fortement l'énergie nécessaire au broyage des plaquettes de bois. En effet, le broyage de la biomasse brute consomme 8 fois plus d'énergie que le broyage d'une biomasse torréfiée ayant subi une perte de masse de 25,0 %. L'humidité est également un facteur extrêmement influant : le broyage d'une biomasse à 12 % d'humidité est 5 fois plus consommateur d'énergie que celui d'une biomasse sèche (0 % d'humidité).

L'énergie de broyage mesurée pour les plaquettes de bois à 12 % d'humidité est de $460 \text{ kJ/kg}_{\text{matière sèche}}$. Par comparaison avec l'énergie dépensée pour la torréfaction, variant entre 500 et $650 \text{ kJ/kg}_{\text{matière sèche}}$ suivant la perte de masse, la nécessité de l'étape de torréfaction n'apparaît pas évidente. Cependant, la rentabilité réelle de la torréfaction ne pourrait être évaluée qu'après estimation des gains dus à la densification énergétique et à la diminution de l'hygroscopicité. En effet, ces modifications ont un impact important sur les coûts de transport, les coûts de manutention et les rendements des procédés de conversion qu'il convient de prendre en compte pour analyser la filière de valorisation dans son ensemble.