Les propriétés du bois torréfié

Les mécanismes de torréfaction ayant été décrits, leur impact sur les propriétés de la biomasse va être évalué.

II.6.1. Affinité avec l'eau et résistance à la biodégradation

L'effet du traitement thermique sur l'affinité de la biomasse avec l'eau a été discuté précédemment. Cependant, dans une optique de recherche de conditions optimales de torréfaction, il est nécessaire de quantifier cet effet. Dans la littérature, deux méthodes ont été utilisées :

- L'immersion : l'humidité des biomasses est mesurée après 2 heures d'immersion dans l'eau [85,86]. Les résultats obtenus montrent que la reprise d'humidité diminue lorsque la perte de masse lors de la torréfaction augmente. Cette méthode est cependant assez peu représentative d'une utilisation réelle de la biomasse, qui est généralement stockée à l'abri de l'eau liquide.
- La méthode par adsorption de vapeur d'eau, connue également sous le nom de « méthode des solutions salines »: la biomasse est placée dans des bocaux étanches ; l'humidité relative de l'air contenu dans ces bocaux est contrôlée à l'aide d'une solution saline saturée en sel. L'humidité d'équilibre des échantillons est déterminée lorsque leur masse est stabilisée. Comme l'humidité d'équilibre est fortement dépendante de la température ambiante [87], il est nécessaire de contrôler la température durant la stabilisation. L'évolution de l'humidité d'équilibre de la biomasse en fonction de l'humidité relative de l'air est alors appelée isotherme de sorption. L'influence de la torréfaction a été étudiée par plusieurs auteurs [88–91]. Les résultats obtenus pour du pin sylvestre brut et traité à 200 °C sont présentés Figure 11. Le phénomène d'hystérésis est visible sur l'ensemble des courbes : les humidités d'équilibre lors de la désorption sont plus élevées que celles lors de l'adsorption. Il est également possible de constater que pour une humidité relative donnée, l'humidité d'équilibre du bois torréfié est plus faible que celle du bois brut. Cependant, il faut noter que d'après certains auteurs [88,91], les courbes de sorption de biomasses torréfiées à des températures supérieures à 200 °C sont confondues. Ceci traduirait donc qu'un minimum d'hygroscopicité serait atteint dès les basses températures de torréfaction.



Figure 11 : Isothermes de sorption de pin sylvestre brut (à gauche) et de pin sylvestre traité à 200 °C (à droite) (d'après [92]).

La reprise d'humidité limitée après traitement thermique serait une des raisons de la résistance des bois torréfiés aux attaques fongiques [91]. En effet, une certaine teneur en eau est nécessaire au développement des moisissures. Les autres causes de la résistance aux dégradations fongiques seraient :

- Les modifications chimiques de l'hémicellulose et de la lignine qui les rendraient non dégradables par les champignons [93],
- L'action fongicide d'une partie des extractibles produits [32,94].

II.6.2. Broyabilité

Comme mentionné précédemment, les hémicelluloses permettent de relier les fibres de cellulose aux lignines. Elles sont donc un composé essentiel à la cohésion de la biomasse. C'est pourquoi leur destruction fragilise le matériau. Ceci présente un intérêt particulier lorsque la biomasse doit être broyée. Un nombre important d'études se sont donc attachées à quantifier le gain sur la broyabilité du matériau. Ces études, présentées dans le **Tableau 4**, peuvent être classées dans trois catégories, suivant le protocole utilisé :

 Protocole adapté du domaine du charbon : pour estimer la broyabilité du charbon, le Hardgrove Grindability Index (HGI) a été développé. Le charbon subit une phase de pré-broyage puis la fraction la plus grossière (> 600 μm) est broyée dans un broyeur à boulets (pendant 60 tours). La valeur de l'index est ensuite calculée à partir de la fraction massique passant à travers un tamis de 75 μm d'ouverture. Le HGI évalue donc la broyabilité de la partie la moins fragile du charbon. Bergman *et al.* [22] rapportent que, dans le cas de la biomasse torréfiée, une grande partie est broyée finement dès la phase de pré-broyage. Utiliser le HGI dans le cas de la biomasse mènerait ainsi à des résultats défavorables et non représentatifs du matériau dans son ensemble. Le principal avantage de cette méthode est donc qu'elle permet une comparaison rapide avec le charbon. Le HWI (Hybrid Work Index) est une version dérivée du HGI.

- Protocole basé sur une mesure de l'énergie nécessaire au broyage : la puissance consommée par un broyeur est mesurée en continu. Par intégration de cette puissance au cours du temps, il est possible de calculer l'énergie nécessaire au broyage d'une quantité de biomasse donnée. L'utilisation de cette méthode nécessite de soustraire la consommation du broyeur à vide. Le principal inconvénient de cette méthode est que les valeurs obtenues sont fortement dépendantes du type de broyeur utilisé [95]. Les résultats ne peuvent donc être utilisés qu'à titre comparatif. Enfin, il faut noter que les résultats d'énergie de broyage ne prennent pas en compte la granulométrie du broyat. C'est pourquoi la répartition granulométrique est souvent présentée à part. Repellin *et al.* [96] proposent donc de diviser l'énergie de broyage par la fraction volumique de broyat ayant une taille de particules inférieure à 200 µm. Cependant, l'étendue de la dispersion granulométrique n'est pas prise en compte par cette méthode.
- Protocole par comparaison de la répartition granulométrique : les biomasses sont broyées dans des conditions fixées (durée du broyage, vitesse de rotation) et les répartitions granulométriques des broyats sont comparées. C'est la méthode la plus utilisée car la plus facile à mettre en œuvre mais les résultats restent qualitatifs.

Ces méthodes présentent chacune leurs avantages et leurs inconvénients. Elles ont tout de même permis de montrer que la torréfaction diminue fortement l'énergie de broyage, et ce pour de nombreuses biomasses.

	Biomasse	Type de broyeur	Mesure de la granulométrie	Type de résultat	Référence
Protocole adapté du domaine du charbon	Saule, miscanthus	Broyeur à boulets	Tamisage	HGI modifié	[97]
	Paille de blé, pin, épicéa	Broyeur à boulets avec torréfaction simultanée	Tamisage	HGI	[47]
	Pin	Broyeur planétaire	Tamisage	HWI	[98]
	Hêtre	Broyeur à rouleaux Tamisage		HGI modifié	[77]
	Saule, eucalyptus, feuillus, résineux	Broyeur à boulets	Tamisage	HGI modifié	[85]
Protocole avec mesure de l'énergie nécessaire au broyage	Hêtre, épicéa	Broyeur ultra- centrifuge	Granulométrie laser	Critère original	[96]
	Pin sylvestre	Broyeur ultra- centrifuge	-	Energie de broyage	[99]
	Résidus de taille, saule, bois de démolition	Broyeur à couteaux	-	Energie de broyage	[13]
	Pin	Broyeur à couteaux	Analyse d'images	Energie de broyage	[100]
	Coquilles de noix de palme	Broyeur à couteaux	-	Energie de broyage	[101]
	Paille de coton, paille de maïs	Broyeur à couteaux	Granulométrie laser	Energie de broyage	[102]
ç	Peuplier	Mixeur de laboratoire	Tamisage	Tamisage Répartition granulométrique	
partitic	Lauan	Mixeur de laboratoire	Répartitio Tamisage granulométri		[44]
otocole avec comparaison de la rég granulométrique	Eucalyptus	Broyeur à couteaux	Tamisage	Répartition granulométrique	[104]
	Paille de riz, paille de colza	Broyeur à boulets	Tamisage	Répartition granulométrique	[45]
	Bouleau	Broyeur à boulets	Tamisage	Répartition granulométrique	[88]
	Chêne, écorce de pin, noyaux d'olive, paille	Mixeur de laboratoire	Tamisage	Répartition granulométrique	[105]
	Paille de blé, paille d'orge	Broyeur à couteaux	Tamisage	Répartition granulométrique	[106]
Pro	Genévrier, acacia	Broyeur à boulets	Tamisage	Répartition granulométrique	[84]

Tableau 4 : S	vnthèse des étuc	des sur la bro	vahilité du l	pois torréfié.
Tubicuu + . J	ynthese aes etat	ics sur iu bro	yubiiite uu t	jois tone fic.

II.6.3. Densification énergétique

La dégradation des composés de la biomasse a également des conséquences sur ses compositions immédiate et élémentaire. Par définition, les matières dégagées à basse température sont des matières volatiles. Ceci explique la diminution de la teneur en matières volatiles couramment observée lorsque la sévérité du traitement augmente [86,107]. Il y a alors concentration du carbone fixe et des cendres.

La composition élémentaire de la biomasse évolue également lors de la torréfaction. Un exemple de l'évolution des ratios molaires H/C et O/C est proposé sur le diagramme de Van Krevelen **Figure 12**.



Figure 12 : Diagramme de Van Krevelen de différentes espèces de résineux bruts et torréfiés [108].

Pour les différentes biomasses considérées, les ratios H/C et O/C diminuent lorsque la température augmente. Ceci est dû au départ des groupements hydroxyles –OH, ce qui appauvrit la biomasse en oxygène et hydrogène. Il y a donc concentration du carbone.

Cette augmentation de la teneur en carbone permet d'augmenter le pouvoir calorifique de la biomasse. La torréfaction est donc un procédé de densification énergétique. Cependant, certaines études proposent de pelletiser le bois torréfié afin d'obtenir une densité énergétique apparente encore plus élevée. Cette étape supplémentaire a tout d'abord été proposée par Bergman *et al.* [17] qui n'explicitent pas les conditions de production des pellets torréfiés. Les pellets obtenus sont plus denses énergétiquement (18,4 GJ/m³ contre 10,5 GJ/m³ pour les pellets de bois brut) et 1,5 à 2,5 fois plus résistants à l'écrasement. La reprise d'humidité des pellets torréfiés est également plus faible que celle des pellets de bois brut.

Cependant, une étude plus récente proposée par Stelte *et al.* [109] présente des résultats contradictoires. Tout d'abord, la pression nécessaire pour pelletiser la biomasse torréfiée est bien plus élevée que pour la biomasse brute (**Figure 13a**), ce qui engendre une augmentation de la consommation énergétique du procédé.



Figure 13 : a) Pression nécessaire à la pelletisation (P_x) et b) Force de compression à la rupture de pellets d'épicéa brut et torréfiés à 250, 275 et 300 °C (d'après [109]).

Ensuite, le comportement de ces pellets a été testé en compression (**Figure 13b**) et il apparait clairement que leur résistance diminue lorsque la sévérité du traitement augmente. Une des causes de ces problèmes serait le manque d'humidité car l'eau agit normalement comme agent plastifiant. Elle abaisse la température de transition vitreuse des polymères du bois (principalement hémicellulose et lignine) ce qui leur permet de se réarranger et de former des liaisons entre les différentes particules. D'autre part, la déshydroxylation des hémicelluloses lors de la torréfaction limite la possibilité de liaisons hydrogènes lors de la pelletisation. Une solution serait donc d'ajouter un agent liant à la biomasse torréfiée. Järvinen *et al.* [90] ont exploré cette voie sans succès en ajoutant de la farine de blé à des plaquettes de bois, cependant, Reza *et al.* [110] ont réussi à améliorer la qualité de pellets torréfiés en ajoutant de la biomasse traitée par voie hydrothermale.

Une autre solution pour pallier ces problèmes de résistance serait d'ajouter de l'eau à la biomasse torréfiée et/ou d'augmenter la température de la presse [82,108,111].

II.6.4. Utilisation du bois torréfié

Utilisation en cocombustion

Le principe de la cocombustion est de remplacer une partie du charbon par de la biomasse dans les centrales thermiques existantes pour réduire les émissions de CO₂ d'origine fossile. Cependant, les propriétés de la biomasse ne sont pas toujours compatibles avec les réacteurs de combustion conçus pour le charbon. C'est pourquoi le taux de substitution du charbon par la biomasse est classiquement inférieur à 10 % [5]. Le **Tableau 5** présente les principales propriétés de la biomasse, leur effet sur la cocombustion et leur évolution lorsque la biomasse est torréfiée.

Propriété	Biomasse brute [5]	Effet sur la cocombustion	Biomasse torréfiée	Réf.
Humidité	Élevée	Problèmes de stockage, de transport, PCI faible, volume de fumées élevé, température de combustion réduite	Réduite	[88–91]
Broyabilité	Faible	Difficulté à broyer sous forme pulvérulente	Élevée	[13]
Teneur en matières volatiles	Élevée	Dévolatilisation à basse température, réaction de combustion rapide, raccourcissement de la flamme pouvant détériorer le brûleur	Réduite	[5,112– 114]
Teneur en cendres	Faible	Phénomènes d'abrasion réduits	Faible	[112–114]
Teneur en soufre	Faible	Emissions de SO ₂ réduites	Faible	[115]
Teneur en azote	Faible	Emissions de NO et NO ₂ réduites	Faible	[115]
Teneur en métaux alcalins (Na et K)	Élevée	Diminution température de fusibilité des cendres, risques d'encrassement, corrosion	Plus élevée	[116,117]
Teneur en chlore	Variable	Emission de HCl, problèmes de corrosion	Réduite	[118,119]
Teneur en métaux lourds	Faible	Problématique pour la valorisation des cendres	Faible	[119]

Tableau 5 : Propriétés de la biomasse brute et leurs effets sur le procédé de cocombustion.

 Mise en parallèle avec les propriétés de la biomasse torréfiée.

L'humidité, au-delà de l'effet direct sur le contenu énergétique de la biomasse, représente un réel désavantage. En effet, une forte humidité initiale mène à la production d'un important volume de fumées. Ceci favorise le ré-envol des cendres abrasives et donc la dégradation des conduites. Le teneur en cendres est également un critère important lors de la sélection de la biomasse : il faut noter que si les taux de cendres sont classiquement faibles pour le bois (< 2 %), ils peuvent être élevés pour certaines biomasse, notamment les résidus agricoles (> 10 %) [114].

La teneur en matières volatiles élevée de la biomasse brute est problématique car elle est à l'origine de la dégradation rapide de la biomasse à basse température. Sa diminution lors de la torréfaction limite la réactivité de la biomasse lors de la combustion [112–114]. Ceci permet de réduire l'écart de comportement avec le charbon et donc de faciliter la maîtrise du procédé de combustion.

Certains éléments contenus dans la biomasse voient leur concentration évoluer lors de la torréfaction. C'est le cas pour le chlore qui est majoritairement évacué lors du prétraitement ce qui limite les dégagements de chlorure d'hydrogène corrosif lors de la combustion. Par contre, les éléments alcalins (principalement K et Na) sont plus concentrés dans la biomasse torréfiée que dans la biomasse brute. Ceci engendre notamment une diminution de la température de fusibilité des cendres et peut induire un plus fort encrassement.

La torréfaction permet donc de faciliter l'utilisation de la biomasse dans les unités de cocombustion et limite les émissions de gaz polluants. Les principales incertitudes concernent désormais les phénomènes d'encrassement et la recherche d'un optimum de torréfaction permettant d'augmenter le rendement de toute la chaine de valorisation de la biomasse.

Utilisation en gazéification

Les études sur la gazéification de biomasse torréfiée sont peu nombreuses. Prins *et al.* [120] ont montré que l'efficacité de la gazéification augmente lorsque la teneur en oxygène de la biomasse diminue. Ceci pourrait donc faire de la torréfaction un prétraitement adapté pour l'injection en gazéifieur. Cependant, l'efficacité globale de la chaine de production ne pourrait être améliorée que si la chaleur produite lors de la gazéification sert à alimenter le réacteur de torréfaction et si les matières volatiles de la torréfaction sont réutilisées dans le gazéifieur.

Couhert *et al.* [121] ont démontré expérimentalement que, lors de la gazéification sous vapeur d'eau en lit à flux entrainé à 1400 °C, la biomasse torréfiée permet l'obtention de meilleurs rendements en CO et H_2 que la biomasse brute. A 1200 °C, la réactivité des chars produits à partir de biomasse torréfiée est cependant plus faible que celle des chars de la biomasse brute. Ceci a été confirmé par Fisher *et al.* [112] et implique que le dimensionnement des unités de gazéification nécessitera la prise en compte d'un éventuel prétraitement.

Enfin, plusieurs études [117,122] ont montré que les propriétés de la biomasse n'évoluent pas nécessairement de manière monotone lorsque la température de torréfaction augmente. La **Figure 14** illustre ce comportement.



Figure 14 : Evolution de la surface spécifique et du diamètre moyen des pores avec l'augmentation de la température de torréfaction (d'après [122]).

Lorsque la température de torréfaction augmente jusqu'à 250 °C, la surface spécifique de la biomasse augmente également. Au-delà de cette température, la surface spécifique diminue. Ces phénomènes ne sont pas encore tout à fait maîtrisés mais leur prise en compte est indispensable lors du choix d'un pré-traitement. En effet, ces études concluent à un optimum de torréfaction à 250 °C pendant 30 min, notamment afin de maximiser la surface spécifique.

II.7. Les différentes technologies de torréfaction

Ces dernières années, de nombreuses compagnies ont investi dans le développement de procédés de torréfaction [123]. Les principales technologies connues à ce jour sont présentées dans le **Tableau 6**. Les avantages et inconvénients de chacune de ces technologies sont également évoqués. Il faut noter que, du point de vue du produit, les paramètres les plus importants sont l'efficacité des transferts thermiques et la qualité du mélange car ils sont indispensables à l'obtention d'un produit torréfié homogène. La source d'énergie (électrique ou thermique) et la capacité à passer à l'échelle industrielle sont également des critères indispensables pour la sélection d'une technologie.

Technologie	Compagnies	Avantages	Limitations	
Four tournant	Torr-coal Andritz Atmosclear ETPC-Umea University BIO3D Stramproy Torkapparater Earth Care Products	 Technologie éprouvée Contrôle du temps de séjour Mélange efficace Large gamme granulométrique 	 Transferts thermiques Contrôle de la température Production de particules fines Nombreuses parties mobiles Changement d'échelle 	
Lit fluidisé	River Basin Energy	 Technologie éprouvée Transferts thermiques Changement d'échelle Chauffage uniforme Mélange efficace 	 Contrôle de la température Contrôle du temps de séjour 	
	Buhler		• Contrôle de la	
Lit mobile	ECN	 Transferts thermiques Contrôle du temps de séjour 	température • Peu de mélange • Passage préférentiel	
	Thermya		des gaz	
	BioLake BV	 Technologie éprouvée Transferts thermiques 	• Contrôle de la	
Réacteur à vis	BTG	 Controle du temps de séjour Mélange efficace 	 Nombreuses parties mobiles Changement d'échalle 	
	Foxcoal	 Large gamme granulométrique 	Changement d'echelle	
Micro-ondes	CanBiocoal	 Transferts thermiques Contrôle de la 	 En cours de développement 	
	Rotawave	température	Energie électrique	
Four à soles multiples	CMI-NESA	 Technologie éprouvée Transferts thermiques Contrôle du temps de séjour 	 En cours de développement 	
	Integro Earth Fuels	 Mélange efficace Large gamme granulométrique Changement d'échelle 	 Nombreuses parties mobiles 	
	Agri-Tech producers	_		
	4EnergyInvest	• Technologie éprouvée	Contrôle de la	
Réacteur à bande	New Earth Stramproy Green	 Contrôle du temps de séjour 	température Changement d'échelle 	
REVE [105] (lit vibrant)	REVTECH Process Systems	 Flexibilité Transferts thermiques 	 En cours de développement Energie électrique 	
TORBED [124] (cyclone)	Topell Energy	 Temps de séjour court Réacteurs compacts Transferts thermiques élevés 	 Particules de petite taille 	

Tableau 6 : Présentation des principales technologies de torréfaction et leurs propriétés (d'après [9,124,125]).

Parmi ces technologies, les plus représentées sont les lits mobiles, les fours à soles multiples et les fours tournants. Les réacteurs à soles multiples présentent en effet de nombreux avantages dont une bonne maîtrise de la température et du temps de séjour ainsi qu'un mélange efficace alors que les lits mobiles et les fours tournants sont des technologies déjà utilisées à l'échelle industrielle.

Cependant, malgré le nombre croissant de projets d'unités à l'échelle de démonstrateur ou à l'échelle industrielle [124], peu de données sont disponibles sur la conduite de procédés de torréfaction en continu. Le **Tableau 7** recense les études de pilotes continus parues à ce jour.

Technologie	Débit d'étude	Type d'étude	Référence
Réacteur à vis (chauffage indirect)	3-8 kg/h	 Etude expérimentale (influence de la température, du temps de séjour, du débit d'alimentation et de l'humidité de la biomasse) Bilan énergétique du procédé Identification de chaleurs de réaction 	[77]
Lit mobile	3-8 kg/h	Développement d'un modèlePeu de résultats expérimentaux	[60]
REVE	40-80 kg/h	 Etude expérimentale (influence de la température, du temps de séjour et du débit d'alimentation) 	[105]
Réacteur à vis (chauffage indirect)	6 kg/h	 Etude expérimentale (influence de la température) Modèle cinétique déterminé en ATG Application de ce modèle au profil de température mesuré expérimentalement 	[64]
Four tournant (chauffage indirect)	Four tournant hauffage indirect) 6 kg/h • Uniquement composition de la biomasse torréfiée en fonction de la température		[126]
Lit mobile (chauffage direct ou indirect)	2 kg/h	Dimensionnement du pilotePas d'étude expérimentale	[127]

 Tableau 7 : Études à l'échelle pilote continu publiées.

Il apparait que ces études mettent en avant soit l'aspect expérimental, soit l'aspect modélisation. Aucune étude ne propose de réelle confrontation entre un ensemble de données expérimentales et le modèle numérique d'un procédé.

Malgré la difficulté que représente la prise en compte de l'ensemble des phénomènes intervenant lors de la torréfaction, la modélisation d'un procédé continu permettrait d'identifier les facteurs ayant une influence sur la biomasse. Après validation, le modèle pourrait également servir de base à l'optimisation des conditions de torréfaction. De tels résultats seraient donc de première importance car la recherche de paramètres opératoires optimaux a récemment été identifiée comme l'un des défis majeurs dans le domaine de la torréfaction [9].

III. Les fours tournants

La technologie choisie pour cette étude est le four tournant. Le principal avantage de cette technologie est sa simplicité. D'après Boateng [128], le premier dépôt de brevet de four tournant remonte à 1885. Il aurait été déposé par un ingénieur anglais pour la production de ciment. Les fours tournants ont depuis été largement utilisés à l'échelle industrielle à diverses températures :

- Fabrication de clinker (1500 °C)
- Réduction des oxydes de fer (1400 °C)
- Calcination du coke de pétrole (1250 °C)
- Défluoration de l'hexafluorure d'uranium (700 900 °C)
- Production de charbons actifs (400 800 °C)
- Séchage (jusqu'à 550 °C)

C'est donc une technologie robuste qui permet de traiter une large gamme de produits. De plus, les fours tournants sont déjà utilisés pour traiter de la biomasse *via* les opérations de séchage ou de production de charbons actifs.

III.1. Principe

Un four tournant est constitué d'un cylindre dont le diamètre peut atteindre plusieurs mètres et la longueur plusieurs dizaines de mètres. La circulation de la matière d'une extrémité à l'autre du cylindre est permise par son inclinaison par rapport à l'horizontale qui peut varier entre 0 et 5 ° et par sa mise en rotation à des vitesses habituellement comprises entre 0,5 et 30 tr/min.

Les fours tournants peuvent être classés en deux principales catégories en fonction du mode d'apport de la chaleur à la charge :

Four tournant à chauffage indirect : la chaleur est apportée à la charge à travers la paroi du cylindre. Pour ce faire, les flammes produites par une rampe de brûleurs peuvent être mises en contact avec la paroi externe du cylindre (Figure 15a) ce qui permet sa montée en température. Cependant, la plupart des fours tournants à chauffage indirect sont constitués d'une double paroi dans laquelle circulent des gaz de combustion (Figure 15b).



Figure 15 : Représentation schématique des principaux modes de chauffage indirect : a) chauffage par rampe de brûleurs externes et b) chauffage par circulation de fluide caloporteur en double paroi.

Lorsque le chauffage est indirect, les principaux modes de transferts thermiques mis en jeu sont la conduction et le rayonnement. De faibles débits de gaz de balayage sont alors utilisés à l'intérieur du cylindre afin d'évacuer les gaz produits. Dans le cas où ces gaz peuvent être valorisés, le chauffage indirect présente l'intérêt de ne pas les diluer ce qui facilite leur traitement ultérieur.

 Four tournant à chauffage direct (Figure 16): la chaleur est apportée à la charge par l'intermédiaire d'un gaz chaud, classiquement composé de gaz de combustion. Le débit du gaz de balayage est donc important car il joue également le rôle de fluide caloporteur. Les principaux modes de transfert thermique sont alors la convection et le rayonnement.



Figure 16 : Représentation schématique d'un four tournant à chauffage direct contre-courant.

La circulation du gaz chaud et de la charge peuvent être à co-courant ou à contrecourant (cas de la **Figure 16**). Dans le cas de la circulation à co-courant, la montée en température de la charge est plus rapide car elle est mise en contact avec les gaz les plus chauds dès son entrée dans le cylindre.

Quel que soit le mode d'apport de chaleur, la maîtrise du transport de la charge est indispensable à la conduite du procédé. En effet, la circulation de la charge à l'intérieur du cylindre conditionne le temps de passage du matériau et l'efficacité du brassage mais également les surfaces d'échange entre le lit de particules, la paroi du cylindre et la phase gaz.

III.2. L'écoulement de la charge

III.2.1. Le comportement transversal

L'écoulement de la charge le long du four dépend du mouvement des particules dans une section transversale du cylindre. Les différents types de mouvements décrits par Henein *et al.* [129,130] puis par Mellmann [131] sont présentés dans le **Tableau 8**.



 Tableau 8 : Modes d'écoulement en four tournant (d'après [131]).

Le **régime de glissement** est obtenu lorsque les frottements entre la paroi et la charge sont insuffisants. Deux cas existent :

- Le *sliding* : le lit n'est pas du tout entrainé par la rotation du cylindre. Ce mouvement est obtenu pour les coefficients de friction paroi-solide les plus faibles et ne permet aucun brassage de la charge.
- Le surging : la charge est entrainée de manière périodique jusqu'à un angle de déflection à partir duquel elle glisse et revient à sa position initiale. Ce mouvement ne permet qu'un brassage limité de la charge.

Le **régime d'avalanche** est obtenu quand les forces de friction sont du même ordre de grandeur que les forces de gravité et permettent l'adhésion du lit à la paroi. Trois mouvements sont alors possibles :

- Le slumping : le lit est entrainé par la paroi jusqu'à ce que l'angle de repos dynamique soit atteint. Les particules en partie haute s'écoulent alors périodiquement en « avalanche » à la surface du lit. La couche composée de ces particules est appelée couche active. La couche inférieure, composée des particules suivant le mouvement de la paroi, est appelée couche passive.
- Le rolling : ce mouvement est observé lorsque la vitesse de rotation du cylindre est plus élevée. La couche active est alors alimentée en continu. C'est le mode d'écoulement le plus utilisé dans les fours tournants car il permet un bon mélange de la charge [132,133].
- Le cascading : pour les vitesses plus importantes, les particules sont éjectées de la couche passive et « cascadent » légèrement avant de réintégrer la couche active.
 Ceci mène à une déformation de la surface du lit.

Le **régime de cataracte** se met en place pour les vitesses les plus élevées (supérieures à 30 tr/min [134]) :

- Le cataracting : les particules sont éjectées du lit et traversent une partie de la phase gaz avant de le réintégrer. Le brassage est intense mais les vitesses à mettre en œuvre sont souvent trop importantes pour des installations industrielles.
- Le *centrifuging* : ce mode est obtenu pour les vitesses de rotation extrêmes. La charge est alors plaquée à la paroi et le mélange est très limité.

Comme précisé précédemment, la majorité des fours tournants fonctionnent en mode *rolling*. En conséquence, seul ce mode sera considéré dans la suite de cette étude.

III.2.2. Le comportement axial

La compréhension du comportement transversal d'un matériau granulaire dans un cylindre en rotation permet d'identifier les mécanismes de progression des particules dans la direction axiale.

Lors de leur passage dans la couche passive, les particules sont solidaires de la paroi (voir **Figure 17**). Elles ont toutes la même vitesse angulaire ce qui justifie le fait que cette couche soit qualifiée de région piston. La couche passive n'est donc pas le siège de phénomènes de mélange ni de transport axial.



Figure 17 : Représentation schématique d'une section transversale de four tournant en mode rolling.

Où *R* est le rayon du cylindre (m), ω la vitesse de rotation (tr/s), θ l'angle de charge (rad), *h* la hauteur de lit (m) et β l'angle de repos dynamique (rad).

Lorsque les particules « roulent » dans la couche active, elles sont soumises à la gravité et progressent axialement. La distance axiale parcourue reste cependant faible en comparaison avec la distance parcourue dans le plan transversal (il y aurait un facteur 50 entre ces deux distances d'après Hanrot [135]). Il est dès lors possible d'identifier les principaux paramètres de fonctionnement qui influencent la vitesse axiale des particules et donc le temps de passage des particules dans le cylindre :

- La vitesse de rotation qui impose la fréquence de passage des particules dans la couche active,
- L'inclinaison du cylindre qui définit la distance parcourue à chaque passage dans la couche active,
- Le débit d'alimentation dont l'influence est discutée [136].

Afin de calculer les surfaces d'échange entre les différentes phases (gaz, solide et paroi du cylindre), il est nécessaire de déterminer le profil de chargement. Le profil de chargement est défini comme l'évolution de la hauteur de lit h (représentée **Figure 17**) ou du taux de remplissage local H_z le long du cylindre.

La hauteur de lit peut être calculée, à une position donnée z (m) de l'axe du four, à partir de l'angle de charge θ par la relation présentée **Équation 2**.

$$h(z) = R\left(1 - \cos\frac{\theta(z)}{2}\right)$$
 Équation 2

Le taux de remplissage local H_z (%) est le rapport entre la section occupée par le solide et la section totale du cylindre. Il est calculé suivant l'**Équation 3**.

$$H_{z}(z) = \frac{\theta(z) - \sin \theta(z)}{2\pi} \times 100$$

$$= \frac{2 \cos^{-1} \left(1 - \frac{h(z)}{R}\right) - \sin \left(2 \cos^{-1} \left(1 - \frac{h(z)}{R}\right)\right)}{2\pi} \times 100$$
Équation 3

La présence ou non de diaphragme (réduction locale du diamètre du cylindre) influe sur le profil de chargement comme présenté **Figure 18**.



Figure 18 : Allure du profil de chargement a) sans diaphragme et b) avec diaphragmes (d'après [134]).

En modifiant le profil de chargement, ces diaphragmes ont également un impact sur le taux de remplissage moyen et sur le temps de passage. Ils sont généralement placés en entrée et/ou en sortie mais sont parfois utilisés à des positions intermédiaires afin de modifier l'écoulement des particules dans une zone particulière du four.

Connaissant l'angle de charge (ou la hauteur du lit) à une position axiale donnée, les surfaces d'échange suivantes peuvent être calculées :

- S_s : surface transversale de la phase solide
- S_g : surface transversale de la phase gaz
- S_l : surface libre du lit (surface de contact entre la phase gaz et la phase solide)
- S_{pc} : surface de paroi couverte par le lit
- S_{pd} : surface de paroi découverte (surface de contact entre la paroi et la phase gaz).

Pour un volume de contrôle de longueur Δz , ces surfaces sont calculées suivant l'Équation 4 :

$$\begin{split} S_{s} &= \frac{R^{2}}{2}(\theta - \sin \theta) \\ S_{g} &= R^{2} \left(\pi - \frac{1}{2}(\theta - \sin \theta) \right) \\ S_{l} &= 2(2Rh - h^{2})^{1/2} \Delta z \\ S_{pc} &= R\theta \Delta z \\ S_{pd} &= R(2\pi - \theta) \Delta z \end{split}$$
Équation 4

Il faut également noter que certains fours tournants sont équipés de releveurs comme présenté **Figure 19**.



Figure 19 : Vues en coupe de cylindres équipés de releveurs a) droits et avec angles à b) 105 °; c) 90 ° et d) 75 ° (d'après [137]).

Les releveurs permettent d'augmenter l'adhésion de la charge à la paroi et le brassage mais également de favoriser le contact entre les particules et le gaz dans le cas des fours tournants avec chauffage direct. En effet, les particules sont soulevées et tombent ensuite en « pluie » dans la phase gaz. La forme et le nombre de releveurs influencent le transport de la charge [138] car cela conditionne la quantité de matière transportée à chaque rotation et l'angle à partir duquel les releveurs se vident [139].

III.2.3. Les modèles d'écoulement

L'écoulement d'un milieu granulaire le long d'un four tournant dépend donc des propriétés du solide, des caractéristiques du cylindre et des paramètres de fonctionnement. La nécessité de contrôler cet écoulement a ainsi mené au développement de modèles numériques de transport. Plusieurs méthodes ont été utilisées [140].

La **méthode de Monte-Carlo** permet de simuler le comportement individuel des particules. Des fonctions de probabilité sont utilisées pour décrire les différentes possibilités de mouvement : probabilité de passer dans la couche active, longueur parcourue dans la

couche active, angle de descente lors du roulement... Le choix des probabilités considérées ainsi que les valeurs qui leur sont associées influencent donc fortement les résultats obtenus. Cette méthode peut permettre une description fine de l'évolution du lit mais est très coûteuse en temps de calcul et n'est par conséquent pas utilisée pour les modélisations à l'échelle pilote ou à l'échelle industrielle [140].

La **méthode DEM** (Discret Element Method). Là encore, les particules sont modélisées séparément et une approche mécanique permet de simuler leurs interactions. Les trajectoires des particules sont ainsi calculées et il est possible d'en déduire le comportement global du lit. La modélisation du comportement de plusieurs millions de particules est désormais possible [141] mais les temps de calcul importants qui en découlent rendent cette méthode peu adaptée à la modélisation de procédés industriels [140].

Les **corrélations empiriques** sont les plus fréquentes. Elles permettent généralement de relier le temps de passage τ aux paramètres opératoires et éventuellement au produit utilisé. Le temps de passage est le ratio entre la masse retenue dans le cylindre et le débit massique d'alimentation \dot{Q} (Équation 5).

$$\tau = \frac{m_{retenue}}{\dot{Q}} \qquad \qquad \text{Équation 5}$$

Les corrélations présentées dans la suite de cette partie sont retranscrites sous la forme proposée par les auteurs. Les unités ne sont pas nécessairement en accord avec le système international.

La première corrélation (Équation 6) a été établie par Sullivan et al. [142] pour les cylindres sans diaphragme de sortie.

$$\tau = 1,77 \frac{L\sqrt{\beta}}{2R\omega\alpha} \qquad \qquad \text{Équation 6}$$

Dans cette corrélation, les caractéristiques du cylindre sont prises en compte *via* sa longueur et son rayon (*L* et *R*). L'angle de repos dynamique β est caractéristique du solide et les paramètres opératoires sont la vitesse de rotation et l'inclinaison (ω et α).

De nombreux auteurs se sont ensuite attachés à proposer des relations prenant en compte d'autres paramètres. C'est notamment le cas de Chatterjee *et al.* [143] qui considèrent que

le débit volumique de solide \dot{Q}_v a une influence sur le temps de passage. La relation proposée est présentée **Équation 7**.

$$\tau = K \frac{L^3}{\dot{Q}_v} \left(\frac{\beta}{\alpha}\right)^{1,054} \left(\frac{\dot{Q}_v}{L^3\omega}\right)^{0,981} \tag{Équation 7}$$

Où *K* est une constante. Il faut cependant noter que, d'après cette expression, l'influence du débit d'alimentation en solide est faible en comparaison avec les autres paramètres de fonctionnement.

Sai et *al.* [144] établissent également une expression du temps de passage. Les matériaux utilisés sont du sable, du charbon et de l'ilménite. La corrélation proposée (**Équation 8**) présente l'avantage de prendre en compte la hauteur du diaphragme (h_d) disposé en sortie du cylindre.

$$\tau = 1315,2 \frac{h_d^{0,24}}{\alpha^{1,02} \omega^{0,88} \dot{Q}^{0,072}} \mbox{Équation 8} \label{eq:tau}$$

Où \dot{Q} est le débit massique de solide (kg/h). Le temps de passage est ici considéré comme indépendant du matériau utilisé.

Plus récemment, Thibault *et al.* [137] étudient l'écoulement de farine de poisson, farine de soja, sable et sciure dans un sécheur rotatif. Les influences respectives du produit, du débit d'alimentation en solide et en gaz, de l'inclinaison et de la vitesse de rotation du cylindre sont étudiées. Les résultats expérimentaux ont tout d'abord été exploités sous forme d'une corrélation présentée **Équation 9**.

$$\tau = \rho_s \left(\frac{0,151}{\dot{Q}^{0,81} \omega^{0,60}} \right) (1 - 11,97\alpha) (1 - 5,40\dot{G})$$
 Équation 9

Où ρ_s est la masse volumique du solide et \dot{G} est le débit massique de gaz. Il faut cependant noter que malgré la présence de releveurs qui augmentent le contact entre le gaz et les particules, l'effet du débit de balayage sur le temps de passage reste faible en comparaison avec les autres paramètres.

Une autre solution proposée par Thibault *et al.* pour modéliser le temps de passage est d'utiliser un réseau de neurones comme présenté **Figure 20**.



Figure 20 : Schéma de principe du réseau de neurones utilisé pour la modélisation du temps de passage (d'après [137]).

Les données d'entrée sont les mêmes que lors de l'établissement de l'Équation 9 et la sortie est le temps de passage. Le nombre n de neurones de la couche intermédiaire est dans un premier temps considéré comme un paramètre d'ajustement. Dès n=2, les résultats prédictifs du réseau de neurones sont meilleurs que ceux de la corrélation précédente. Quand n augmente, l'écart entre le modèle et les résultats expérimentaux diminue. Les auteurs concluent à un nombre de neurones optimal situé entre 5 et 6 pour éviter le surajustement et minimiser l'écart à l'expérience. L'inconvénient de ce genre de modèles est qu'ils ne mettent pas en évidence de manière explicite l'influence des paramètres opératoires.

Pour finir, un des modèles les plus utilisés est celui proposé par Saeman [145]. Etabli à partir de calculs théoriques, il permet de calculer le profil de chargement le long d'un cylindre sans diaphragme de sortie et sans releveur. Ce modèle a été développé et comparé aux résultats expérimentaux obtenus avec du sable, qui est souvent considéré comme un matériau modèle. Afacan et Masliyah [146] ont ensuite adapté ce modèle à d'autres configurations de cylindres (avec releveurs, avec diaphragme) mais toujours en utilisant du sable. Le modèle se présente sous la forme d'une équation différentielle – présentée **Équation 10** – décrivant l'évolution de la hauteur du lit le long du cylindre.

$$\frac{dh(z)}{dz} = \frac{3\dot{Q}_v \tan(\beta)}{4\pi\omega R^3} \left(\frac{2h}{R} - \frac{h^2}{R^2}\right)^{-3/2} - \frac{\tan(\alpha)}{\cos(\beta)}$$
 Équation 10

Pour résoudre cette équation, la hauteur du lit en sortie du cylindre est considérée égale à la hauteur du diaphragme h_d ou au diamètre moyen des particules d_p (en l'absence de

diaphragme). Ce modèle a également été récemment validé par Gao *et al.* [147] avec des particules sphériques, des particules cylindriques et des particules allongées quadrilobes. Un exemple des résultats obtenus est donné **Figure 21**.



Figure 21 : Profil de chargement lors d'expériences avec des particules sphériques pour deux débits d'alimentation. h/R est le ratio hauteur du lit / rayon du cylindre et x est la distance à la sortie (d'après [147]).

Les prédictions du modèle (traits continus) sont en adéquation avec les valeurs expérimentales, excepté à la sortie du cylindre pour le faible débit d'alimentation. Il faut cependant noter que, là encore, les particules utilisées sont calibrées. La validité de ce modèle avec un solide granulaire irrégulier n'a pas été prouvée.

III.2.4. Les phénomènes de ségrégation

Comme mentionné précédemment, la plupart des relations permettant de calculer le temps de passage des particules dans un cylindre en rotation ont été établies pour des milieux modèles. Cependant, il a été observé que, pour des solides granulaires moins homogènes, des phénomènes de ségrégation se mettent en place. Les études sur la ségrégation sont classiquement menées dans des cylindres transparents fonctionnant en mode batch [148] mais les résultats sont similaires à ceux obtenus dans des cylindres à alimentation continue [149].

Les principales causes de la ségrégation sont la dispersion de la taille des particules ou de leur densité. Leur état de surface et leur humidité seraient également des facteurs déterminants [148].

Par observation du comportement du sable, Das Gupta *et al.* [150] concluent que la ségrégation axiale est la conséquence de deux phénomènes :

• La ségrégation par flottement : les grosses particules « flottent » en surface du lit, restant ainsi dans la couche active,

La ségrégation radiale : les petites particules percolent entre les grosses particules.
 Un « cœur » de particules de petite taille se forme alors en dessous de la couche active, comme présenté Figure 22.

Ces particules ne passent donc plus par la couche active ce qui limite leur déplacement dans la direction axiale.



Figure 22 : Schéma de la ségrégation radiale pour un solide constitué de particules de différentes tailles (d'après [132]).

Enfin, d'après Boateng et Barr [132] et Bridgwater *et al.* [151], la principale cause de la ségrégation axiale serait la **ségrégation de trajectoire** : la distance parcourue par une particule lors de son passage dans la couche active serait proportionnelle au carré du diamètre de la particule.

Il est donc admis que la ségrégation axiale est la conséquence de l'effet conjugué de ces différents types de ségrégations. Il faut cependant noter que la ségrégation n'est pas nécessairement défavorable. En effet, les particules de grandes tailles sont situées à la périphérie du lit, proches des sources de chaleur (gaz et/ou paroi). Elles reçoivent donc plus d'énergie que les petites particules qui réagiraient plus vite à la même température. Identifier l'existence ou non de phénomènes de ségrégation peut donc s'avérer primordial pour aborder les problématiques d'homogénéité du traitement.

L'écoulement d'un milieu granulaire dans un four tournant est donc un procédé complexe mettant en jeu plusieurs phénomènes qui doivent être pris en compte simultanément afin de modéliser précisément le traitement. Les principaux phénomènes ayant été décrits, la partie suivante s'intéresse au concept de distribution des temps de séjour qui est un outil classiquement utilisé pour l'étude des écoulements dans les réacteurs.

III.3. La Distribution des Temps de Séjour en four tournant

Jusqu'ici, seul le temps de passage a été pris en compte. L'écoulement est donc considéré comme piston ce qui signifie que toutes les particules ont la même vitesse. L'écart de cette hypothèse à la réalité doit être quantifié. Pour cela, des expériences de distribution des temps de séjour (DTS) peuvent être réalisées.

III.3.1. Principes de la DTS

La DTS est un outil qui permet de caractériser l'hydrodynamique d'un réacteur et d'évaluer l'écart par rapport aux écoulements idéaux obtenus dans un **réacteur piston** et dans un **réacteur parfaitement agité**. Dans le cas d'un écoulement granulaire en four tournant, l'objectif est donc d'estimer le temps passé par chaque particule dans le cylindre. Pour ce faire, un stimulus est imposé en entrée du cylindre et la réponse en sortie est analysée.

Le stimulus consiste en l'injection d'un traceur sous forme d'une impulsion ou d'un échelon [152]. Ce traceur doit être facilement détectable et marquer le flux sans le perturber. Il doit donc avoir les mêmes propriétés que le solide tracé et être inerte. En four tournant, l'impulsion est couramment utilisée car elle demande de faibles quantités de traceur.

En sortie du cylindre, la concentration C(t) en traceur est mesurée au cours du temps. La fonction de distribution des temps de séjour E(t) peut alors être calculée suivant l'Équation 11.

$$E(t) = \frac{C(t)}{\int_0^{\infty} C(t)dt}$$
 Équation 11

Le temps de séjour moyen \bar{t}_s et la variance de la distribution σ^2 sont déduits de cette fonction grâce à l'**Équation 12** et à l'**Équation 13** respectivement.

$$\bar{t}_{s} = \int_{0}^{\infty} tE(t)dt$$

$$\sigma^{2} = \int_{0}^{\infty} t^{2}E(t)dt - \bar{t}_{s}^{2}$$
Équation 13

Il est possible d'adimensionnaliser les courbes en traçant la fonction E_{ad} en fonction du temps adimensionnel t_{ad} . Ces termes sont calculés suivant les **Équations 14 et 15**.

$$E_{ad} = \overline{t}_s. E(t)$$
 Équation 14

$$t_{ad} = t/t_{c}$$
 Équation 15

Ceci permet de comparer des écoulements ayant des bases temporelles différentes.

III.3.2. Résultats classiquement obtenus

La **Figure 23** présente une fonction de distribution des temps de séjour obtenue lors de l'écoulement de sable en four tournant [153].



Figure 23 : Fonction de distribution des temps de séjour obtenue par traçage de sable en four tournant (d'après [153]).

Le temps de séjour moyen est ici de 16,8 min ce qui correspond bien au pic de la fonction. La courbe est plutôt symétrique ce qui tend à prouver que la dispersion axiale est faible et qu'il n'y a pas de défaut majeur d'écoulement [154]. Cependant, il a été montré que certains paramètres comme la composition ou l'humidité du produit peuvent mener à l'obtention de courbes non symétriques [155,156]. Ceci traduit alors une plus forte dispersion des temps de séjour ce qui peut conduire à un manque d'homogénéité du traitement.

Un autre résultat de la DTS est la comparaison du temps de séjour moyen et du temps de passage. De manière générale [157], un écart important entre ces deux valeurs met en évidence un disfonctionnement :

- Si $\bar{t}_s < \tau$, cela peut être dû à l'existence d'un **volume mort** dans le cylindre,
- Si $\bar{t}_s > \tau$, cela peut être dû à un phénomène de **court-circuit** dans le cylindre.

Les résultats de cette comparaison dans le cas des fours tournants ne sont pas tranchés. Certaines études ne trouvent pas de réelle différence entre \bar{t}_s et τ [158] alors que d'autres mettent en évidence que des écarts significatifs entre ces deux valeurs peuvent apparaître pour les temps de séjour élevés [159]. L'étude du temps de séjour moyen permet également de quantifier l'influence des paramètres opératoires du four. Un exemple tiré de l'étude de Li *et al.* [153] est donné **Figure 24**.



Figure 24 : Influence de la vitesse de rotation et de la rugosité de la paroi du cylindre sur le temps de séjour moyen de déchets municipaux dans un four tournant (d'après [153]).

Ces courbes montrent, d'une part, qu'un cylindre lisse mène à des temps de séjour plus faibles qu'un cylindre dont la paroi est rendue rugueuse (ici par de la toile émeri) et, d'autre part, que le temps de séjour moyen diminue quand la vitesse de rotation augmente. Ceci est cohérent avec les relations de temps de passage présentées précédemment. Une augmentation de l'inclinaison mène également à une diminution du temps de séjour [160].

Bien que l'influence du débit d'alimentation en solide soit controversée (§III.2.3), il semblerait qu'une augmentation de ce débit d'alimentation provoque une augmentation du temps de séjour. Cette augmentation serait cependant très limitée lorsqu'un faible débit de gaz de balayage est utilisé [160].

III.3.3. Les modèles de DTS

Les deux principaux modèles utilisés pour représenter l'allure des courbes de DTS sont :

• Le modèle d'écoulement piston avec dispersion axiale qui quantifie la déviation par rapport à un écoulement piston. L'Équation 16 permet de calculer la fonction de distribution des temps de séjour pour ce modèle.

$$E_{p}(t) = \frac{1}{2\bar{t}_{s}} \sqrt{\frac{Pe}{\pi}} \exp\left(-\frac{Pe(\bar{t}_{s}-t)^{2}}{4\bar{t}_{s}^{2}}\right)$$
 Équation 16

Le paramètre d'ajustement est le nombre de Péclet *Pe*. Plus ce nombre est élevé, plus l'écoulement est proche d'un écoulement piston.

• Le modèle de **mélangeurs en cascade** qui quantifie la déviation par rapport à un mélangeur parfait. L'**Équation 17** permet de calculer la fonction de distribution des temps de séjour pour ce modèle.

$$E_{m}(t) = \left(\frac{J}{\overline{t}_{s}}\right)^{J} \frac{1}{(J-1)!} t^{J-1} exp\left(-J\frac{t}{\overline{t}_{s}}\right)$$
 Équation 17

Le paramètre d'ajustement est le nombre de réacteurs en cascade *J*. Plus ce nombre est élevé, plus le comportement de l'écoulement s'éloigne de celui d'un mélangeur parfait.

Dans la littérature, deux méthodes ont été utilisées pour déterminer les paramètres des modèles présentés **Équations 16 et 17**:

• La **définition théorique** des nombres *Pe* et *J* :

Pe =
$$2 \frac{\bar{t}_s^2}{\sigma^2}$$
 Équation 18
 $J = \frac{\bar{t}_s^2}{\sigma^2}$ Équation 19

• L'ajustement des paramètres : *Pe* et *J* sont alors déterminés afin de minimiser l'écart entre l'expérience et les résultats du modèle.

En four tournant, Pe et J sont classiquement supérieurs à 50 et 25 respectivement, ce qui confirme la faible dispersion axiale [152].

A partir du nombre *Pe* il est possible de calculer un coefficient de dispersion axiale D_{ax} (m²/s). Ce coefficient satisfait l'**Équation 20**.

$$D_{ax} = \frac{uL}{Pe} = \frac{L^2}{\overline{t}_s \times Pe}$$
Équation 20

Où u est la vitesse axiale moyenne et L la longueur du cylindre. Une étude détaillée de ce coefficient [140] a permis de montrer qu'il augmente quand la vitesse de rotation augmente ou quand le taux de remplissage diminue.

Enfin, le nombre de mélangeurs en série J est indépendant du débit d'alimentation en solide. Le ratio entre la longueur du cylindre L et le nombre de mélangeurs en série J définit la longueur moyenne d'un mélangeur. Cette longueur correspond approximativement à 10 % du diamètre du cylindre.

III.4. Les transferts thermiques en four tournant

Lors de la modélisation d'un procédé de traitement thermique en four tournant, plusieurs types de transferts thermiques doivent être pris en compte. Les principaux sont représentés **Figure 25**.



Figure 25 : Principaux transferts thermiques intervenant dans une section de four tournant.

Où :

- ϕ_{ps}^{c} est le flux échangé par contact paroi-solide
- ϕ_{as}^{cv} est le flux échangé par convection gaz-solide
- ϕ_{gp}^{cv} est le flux échangé par convection gaz-paroi
- ϕ_{ps}^{r} est le flux échangé par rayonnement paroi-solide
- φ^r_{pp} est le flux échangé par rayonnement paroi-paroi
- ϕ^r_{gp} est le flux échangé par rayonnement gaz-paroi
- ϕ_{gs}^r est le flux échangé par rayonnement gaz-solide

Les différents types de transferts vont être présentés succinctement.

III.4.1. Transferts convectifs

Les deux flux convectifs intervenant dans la section du four tournant sont des flux de convection forcée dus au gaz de balayage (auquel peuvent venir s'ajouter les matières volatiles produites). Leur expression générale est présentée **Équation 21**.

$$\varphi^{cv} = h^{cv} S \Delta T$$
 Équation 21

Où *S* est la surface d'échange, ΔT la différence de température entre le gaz et la paroi ou le solide et h^{cv} le coefficient de transfert thermique.

Ce coefficient est calculé de la manière suivante :

$$h^{cv} = \frac{Nu. \lambda_g}{D_h}$$
Équation 22

Où Nu est le nombre de Nusselt, λ_g la conductivité thermique du gaz et D_h le diamètre hydraulique dont l'expression, déterminée par Tscheng et Watkinson [161] dans le cas d'un four tournant, est présentée **Équation 23**.

$$D_{h} = R\left(\frac{2\pi - \theta + \sin\theta}{\pi - \frac{\theta}{2} + \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)}\right)$$
 Équation 23

La difficulté réside donc dans l'estimation du nombre de Nusselt correspondant aux transferts entre le gaz et la paroi et entre le gaz et le lit de particules.

Transferts gaz-paroi

Parmi les corrélations établies, les plus fréquemment utilisées ont été proposées par Tscheng et Watkinson [161] et par Gorog *et al.* [162]. Elles sont présentées **Équation 24** et **Équation 25** respectivement.

$$Nu_{gp} = 1,54. Re^{0.535} Re_{\omega}^{-0.292}$$
 Équation 24

$$Nu_{gp} = 0,036. Re^{0.8} Pr^{0,33} \left(\frac{D}{L}\right)^{0,055}$$
 Équation 25

Où Re est le nombre de Reynolds, Re_{ω} le nombre de Reynolds rotationnel et Pr le nombre de Prandtl définis **Équation 26**.

$$\begin{cases} \text{Re} = \frac{\rho_g v_g D_h}{\mu_g} \\ \text{Re}_{\omega} = \frac{\rho_g \omega D_h^2}{\mu_g} \\ \text{Pr} = \frac{\mu_g C_{p,g}}{\lambda_g} \end{cases}$$
Équation 26

 ρ_g , v_g , μ_g et $C_{p,g}$ sont respectivement la masse volumique, la vitesse axiale, la viscosité dynamique et la capacité thermique massique du gaz.

Il faut noter que ces corrélations ont été établies pour des nombres de *Re* élevés, correspondant à des écoulements de gaz turbulents. Seghir-Ouali *et al.* [163] ont donc développé une corrélation adaptée à des écoulements laminaires :

$$Nu_{gp} = 0.01963. Re^{0.9285} + 8.5101. 10^{-6} Re_{\omega}^{1.4513}$$
 Équation 27

Cette corrélation a été validée pour des nombres Re compris entre 0 et 3.10⁴ et pour des nombres Re_{ω} compris entre 1,6.10³ et 2,77.10⁵.

Transferts gaz-solide

Les corrélations les plus couramment employées pour évaluer le coefficient de transfert convectif gaz-solide ont également été établies par Tscheng et Watkinson [161] et par Gorog *et al.* [162]. L'Équation 28, proposée par Tscheng et Watkinson, a été établie dans un domaine couvrant les régimes d'écoulement laminaire et turbulent. Celle proposée par Gorog *et al.* (Équation 29) permet directement le calcul du coefficient de transfert gaz-solide et a été établie pour des nombre de Re situés entre 2.10⁵ et 5.10⁵.

$$\begin{split} \mathrm{Nu}_{gs} &= 0,46.\,\mathrm{Re}^{0,535}\mathrm{Re}_{\omega}^{0,104} \left(\frac{\mathrm{H}_{z}}{100}\right)^{-0,341} & \text{Équation 28} \\ \mathrm{h}_{gs}^{cv} &= 0,4 \left(\frac{\dot{\mathrm{m}}_{g}}{\mathrm{S}_{g}}\right)^{0,62} & \text{Équation 29} \end{split}$$

Où \dot{m}_g est le débit massique de gaz (en kg/h). L'intérêt de ces relations réside principalement dans le fait qu'elles ont été développées spécifiquement pour représenter le comportement des fours tournants. L'utilisation de la relation de Tscheng et Watkinson semble particulièrement faire consensus lors de l'élaboration de modèles de fours tournants à une dimension [164].

III.4.2. Transferts radiatifs

Bien que les transferts radiatifs soient souvent considérés comme négligeables pour des températures inférieures à 300-400 °C [165], certains développements permettent de prendre en compte ce mode de transfert de manière simple. De plus, tenir compte du rayonnement dans un modèle de torréfaction pourrait s'avérer indispensable lors de l'exploitation de ce modèle aux températures de traitement les plus élevées.

Les travaux menés par Gorog *et al.* [166] ont permis de tirer plusieurs conclusions sur le comportement radiatif des fours tournants. Ils ont notamment conclu que les transferts par

rayonnement dus aux gradients de température dans la direction axiale peuvent être négligés. Ainsi, lors de la modélisation du procédé, le rayonnement est considéré comme significatif uniquement dans un plan transversal, ce qui simplifie considérablement les équations [167]. Ensuite, la paroi du cylindre et le lit de particules peuvent être considérés comme des surfaces grises et diffusantes. Enfin, ils proposent l'expression des facteurs de forme entre la paroi p et le solide s :

 $\begin{cases} F_{ss} = 0 \\ F_{sp} = 1 \\ F_{ps} = \frac{S_l}{S_{pd}} \\ F_{pp} = 1 - \frac{S_l}{S_{pd}} \end{cases}$

Équation 30

Basé sur ces remarques, Descoins [134] propose un modèle simplifié de rayonnement dans un four tournant pilote. La méthode des radiosités est alors employée [168]. La radiosité J^r est définie comme la somme de l'émittance de la surface et du flux réfléchi par unité de surface et s'écrit sous la forme :

$$J^r = \varepsilon \sigma T^4 + (1 - \varepsilon) E^r$$
 Équation 31

Où ε , *T*, *E*^{*r*} sont l'émissivité, la température et l'éclairement de la surface et σ la constante de Stefan-Boltzmann.

La densité de flux nette perdue par la surface (Équation 32) est égale à la différence entre la radiosité (densité de flux quittant la surface par émission et réflexion) et son éclairement (densité de flux arrivant sur la surface).

$$\frac{\Phi_{net}^{r}}{S} = J^{r} - E^{r} = \frac{\epsilon}{1 - \epsilon} (\sigma T^{4} - J^{r})$$
 Équation 32

La radiosité prend en compte plusieurs composantes. Si on considère une surface *i* échangeant avec *n* surfaces d'indices *j* :

$$J_i^r = \epsilon_i \sigma T_i^4 + (1 - \epsilon_i) \sum_{j=1}^n F_{ij} \tau_g J_j^r + (1 - \epsilon_i) \epsilon_g \sigma T_g^4$$
 Équation 33

Le premier terme correspond au flux émis par la surface S_i . Le deuxième correspond au flux émis par la surface S_j , traversant le gaz et étant réfléchi par S_i . Enfin, le troisième est le flux émis par le gaz et étant réfléchi par S_i .

Par hypothèse, le gaz est considéré comme gris donc sa transmitivité τ_g vérifie l'Équation 34.

$$\tau_g = 1 - \epsilon_g$$
 Équation 34

En appliquant l'Équation 33 à la surface de cylindre S_{pd} et à la surface de solide S_l , il est possible d'obtenir un système de deux équations :

$$\begin{bmatrix} A_{ss} & A_{sp} \\ A_{ps} & A_{pp} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} J_s^r \\ J_p^r \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} B_s \\ B_p \end{bmatrix}$$
 Équation 35

Avec :

$$\begin{cases} A_{ss} = 1 - (1 - \epsilon_s) F_{ss} (1 - \epsilon_g) \\ A_{sp} = -(1 - \epsilon_s) F_{sp} (1 - \epsilon_g) \\ A_{ps} = -(1 - \epsilon_p) F_{ps} (1 - \epsilon_g) \\ A_{pp} = 1 - (1 - \epsilon_p) F_{pp} (1 - \epsilon_g) \\ B_s = \epsilon_s \sigma T_s^4 + (1 - \epsilon_s) \epsilon_g \sigma T_g^4 \\ B_p = \epsilon_p \sigma T_p^4 + (1 - \epsilon_p) \epsilon_g \sigma T_g^4 \end{cases}$$
 Équation 36

Ce système comporte deux inconnues J_s^r et J_p^r . Après résolution, les flux nets échangés par le solide et la paroi peuvent être calculés suivant l'**Équation 37**.

$$\begin{cases} \frac{\varphi_{s}^{r}}{S_{l}} = \frac{\epsilon_{s}}{1 - \epsilon_{s}} \left(\sigma T_{s}^{4} - J_{s}^{r} \right) \\ \frac{\varphi_{p}^{r}}{S_{pd}} = \frac{\epsilon_{p}}{1 - \epsilon_{p}} \left(\sigma T_{p}^{4} - J_{p}^{r} \right) \end{cases}$$
 Équation 37

Enfin, le flux net du rayonnement de la phase gazeuse est calculé grâce à l'Équation 38.

$$\phi_{
m g}^{
m r} = -(\phi_{
m s}^{
m r} + \phi_{
m p}^{
m r})$$
 Équation 38

Cette méthode est donc simple à mettre en œuvre et peu coûteuse en temps de calcul ce qui en fait une méthode de choix pour la modélisation d'un procédé complexe.

III.4.3. Transferts paroi-solide

L'estimation du terme de transfert paroi-solide est cruciale, notamment lors de la modélisation d'un four tournant à chauffage indirect. Dans la littérature, une quantité limitée d'études se sont attachées à développer des corrélations pour représenter ce mode de transfert.

Wes *et al.* [169] considèrent que les particules sont en contact avec la paroi. La théorie de la pénétration (prenant en compte la conduction solide-solide, la convection dans la porosité du lit de particules et le rayonnement) est alors utilisée pour quantifier les transferts de

chaleur de la couche de contact vers l'intérieur du lit. L'expression pour le coefficient d'échange pariétal h_{ps}^c prend alors la forme suivante :

$$h_{ps}^{c} = 2 \sqrt{\frac{\lambda_{s} \rho_{s} C_{p,s}}{\pi t_{c}}}$$
 Équation 39

Où t_c est le temps de contact entre une particule et la paroi dont l'expression proposée par Li *et al.* [170] est présentée **Équation 40**.

$$t_{c} = \frac{\theta/2}{2\pi\omega} \qquad \qquad \text{Équation 40}$$

Lehmberg *et al.* [171] supposent l'existence d'une fine couche de gaz entre la paroi du cylindre et le lit de particules. L'épaisseur de cette couche augmente avec le diamètre des particules. L'expression alors déterminée est présentée **Équation 41**.

$$h_{ps}^{c} = \sqrt{\frac{\lambda_{s}\rho_{s}C_{p,s}}{t_{c}}} \left(\frac{2}{\sqrt{\pi}} - \frac{1}{h\sqrt{a_{s}t_{c}}} + \frac{1}{h\sqrt{a_{s}t_{c}}} \exp(h^{2}a_{s}t_{c}) \operatorname{erfc}(ha_{s}t_{c}) \right)$$
 Équation 41

Avec *h* le coefficient de transfert relatif à la paroi et a_s la diffusivité du lit (m².s⁻¹). Bien que cette expression soit plus réaliste, en prenant en compte la résistance due à la couche de gaz entre la paroi et le lit, son utilisation est complexe.

Ding *et al.* [165] soulignent cependant que la prise en compte de cette couche de gaz est indispensable pour éviter la surévaluation du coefficient de transferts. Une conclusion identique est tirée par Li *et al.* [170] qui proposent alors la relation suivante :

$$h_{ps}^{c} = \left(\chi d_{p}/\lambda_{g} + \left(2\sqrt{4\lambda_{s}\rho_{s}C_{p,s}\omega/\theta}\right)^{-1}\right)^{-1}$$
 Équation 42

Où χ est l'épaisseur de la couche de gaz entre la paroi et le lit de particules. Ce paramètre a ensuite été identifié pour ajuster les résultats du modèle aux résultats expérimentaux. Il a alors été observé que χ augmente de 0,096 à 0,198 quand le diamètre des particules d_p (ici du sable) augmente de 157,5 à 1038 µm.

Ce modèle a récemment été comparé à d'autres modèles tirés de la littérature par Herz *et al.* [172,173]. Pour cette comparaison, des résultats obtenus dans un cylindre chauffé électriquement ont été confrontés aux résultats numériques. Les paramètres testés sont la vitesse de rotation (1 à 6 tr/min), le taux de remplissage moyen (10 à 20 %), la nature du

solide (sable, billes de verre, billes de cuivre) et la taille des particules (0,5 à 2,5 mm pour les billes de verre). Le seul modèle permettant de bien représenter les résultats expérimentaux, quel que soit le facteur étudié, est le modèle proposé par Li *et al*..

IV.Conclusions

Au vu de l'état de l'art, il apparaît que les principaux mécanismes de la torréfaction ont été identifiés à l'échelle de la particule. Les études menées sur la cellulose, l'hémicellulose et la lignine ont mis en évidence les réactions qui occasionnent des changements de composition de la biomasse. Les principaux gaz produits lors de la décomposition de ces composés ont été déterminés. Cependant, les interactions entre les polymères n'ont jusqu'à présent fait l'objet que d'hypothèses. Il en est de même pour l'influence des cendres, dont l'effet catalytique lors du traitement thermique a été évoqué par plusieurs auteurs.

Étant donné la complexité de ces réactions, les modèles cinétiques permettant de décrire la perte de masse de la biomasse lors de la torréfaction sont en grande majorité théoriques. Ils sont en effet construits en considérant des pseudo-composants sans fondement chimique. Parmi les nombreux modèles présentés, certains se sont distingués par leur capacité à représenter fidèlement les courbes de perte de masse et par leur simplicité de mise en œuvre. Le seul modèle basé sur des bilans chimiques n'a que récemment été adapté à la torréfaction et sa complexité le rend difficilement applicable à des biomasses variées.

Les nombreuses études sur les chaleurs de torréfaction se sont heurtées à de sérieuses difficultés qui mènent à des résultats peu précis. Néanmoins, cela a permis de montrer que des exothermicités apparaissent dans certaines conditions. L'hypothèse la plus souvent avancée pour expliquer ce phénomène est que les réactions les plus exothermiques sont les réactions de formation du char secondaire lors du contact avec les matières volatiles. Les facteurs favorisant l'apparition de ces réactions restent peu connus.

Enfin, les principales propriétés de la biomasse torréfiée ont été mesurées. Les changements de composition, élémentaire et immédiate, permettent l'obtention d'un solide plus dense énergétiquement et présentant des propriétés favorables à sa valorisation en cocombustion ou en gazéification. Dû à la décomposition des hémicelluloses, la biomasse torréfiée est également plus friable que la biomasse brute. Un des enjeux actuels pour évaluer la rentabilité du procédé de torréfaction est désormais de quantifier précisément la diminution

de l'énergie nécessaire au broyage. Ceci nécessiterait de prendre en compte simultanément l'énergie consommée lors de l'étape de broyage mais également la granulométrie du broyat.

Malgré la forte croissance récente du secteur de la torréfaction qui a permis l'émergence de nombreux projets industriels, peu de données sont disponibles sur la conduite de procédés continus. Plusieurs technologies ont tout de même été identifiées pour réaliser la torréfaction. Les fours tournants, en particulier, présentent l'avantage d'être de conception simple et d'être couramment utilisés à l'échelle industrielle.

L'étude de la torréfaction en four tournant passe par la modélisation du procédé. Une telle modélisation est nécessairement basée sur le couplage entre les transferts de chaleur et de matière. Les différents phénomènes qui doivent être pris en compte sont le transport des particules le long du four, les transferts de chaleur, le séchage de la biomasse et les cinétiques de torréfaction.

Différents modèles ont été établis pour l'écoulement de milieux modèles le long de cylindres rotatifs. Ces modèles considèrent que l'écoulement de la charge et de type piston. Cependant, différents phénomènes peuvent intervenir et invalider cette hypothèse. C'est notamment le cas lorsque certaines caractéristiques du solide (comme une forte humidité) modifient l'écoulement ou lorsque des phénomènes de ségrégation se mettent en place.

L'étude des transferts de chaleur a permis l'identification des coefficients de transferts par convection et par contact paroi-solide. Là encore, les mesures expérimentales sont complexes ce qui rend la validité des modèles difficile à établir. Il semble cependant que certains fassent consensus. Le rayonnement n'est classiquement considéré prépondérant que pour les fortes températures mais un modèle simple a été présenté. Ceci permettra de limiter au maximum les sources d'incertitude.