

---

# Intégration énergétique du procédé de pyrogazéification couplé à la biométhanation

---

|       |   |     |
|-------|---|-----|
| 6.1   | Introduction .....  | 161 |
| 6.2   | Logiciel Aspen Plus .....                                       | 161 |
| 6.3   | Méthodologie.....   | 161 |
| 6.3.1 | Principaux équipements utilisés pour la modélisation. ....      | 162 |
| 6.3.2 | Modélisation des propriétés de la biomasse et du char .....     | 164 |
| 6.3.3 | Modélisation du séchage de la biomasse.....                     | 165 |
| 6.3.4 | Modélisation de la pyrolyse .....                               | 166 |
| 6.3.5 | Modélisation du craquage/reformage des matières volatiles ..... | 167 |
| 6.3.6 | Modélisation de l'épuration du syngaz .....                     | 169 |
| 6.3.7 | Modélisation de la biométhanation .....                         | 170 |
| 6.3.8 | Modélisation de la combustion du char.....                      | 173 |
| 6.3.9 | Intégration énergétique du procédé .....                        | 173 |
| 6.4   | Résultats.....  | 174 |
| 6.4.1 | Intégration énergétique.....                                    | 174 |
| 6.4.2 | Bilan matière du procédé de pyrogazéification.....              | 176 |
| 6.4.3 | Bilan de matière du procédé global.....                         | 177 |
| 6.4.4 | Performance du procédé global.....                              | 178 |
| 6.5   | Conclusion .....  | 179 |
|       | Bibliographie.....  | 180 |
|       | Annexe 1 : compléments de la simulation .....                   | 181 |
|       | Annexe 2 : composition des fumées.....                          | 182 |
|       | Annexe 3 : schéma global du modèle.....                         | 183 |

# **Chapitre 6 :**

## **Intégration énergétique du procédé de pyrogazéification couplé à la biométhanation**

### **6.1 Introduction**

L'objectif de ce chapitre est d'une part de proposer une intégration énergétique du procédé global, intégrant la pyrogazéification et la biométhanation, et d'autre part de quantifier la performance globale de la conversion de biomasse en méthane. Pour cela, un modèle est réalisé sur le logiciel Aspen plus V8.6.

### **6.2 Logiciel Aspen Plus**

Aspen Plus est un outil de modélisation largement utilisé en génie des procédés et génie chimique. Il permet de concevoir, d'optimiser et de suivre les performances des procédés. Il permet de réaliser un bilan de matière, un bilan d'énergie et un bilan d'exergie. Il est constitué de plusieurs blocs d'opérations unitaires. Ces blocs peuvent être assemblés pour modéliser et simuler le procédé souhaité. Aspen Plus a été utilisé dans la littérature pour simuler la pyrolyse et la gazéification de la biomasse afin de prédire les produits : gaz, goudrons et char [1–5]. La composition et les rendements des produits dans ces études sont modélisés : en utilisant des modèles d'équilibre thermodynamique (minimisation de l'énergie de Gibbs) ou en considérant la cinétique des réactions de dégradation et/ou de formation des produits.

### **6.3 Méthodologie**

Le modèle qui a été développé est constitué de 6 blocs (rectangles colorés) que nous divisons en deux parties (Figure 61) et en annexe 3 :

- La partie 1 est la chaîne de conversion de la biomasse en biométhane
- La partie 2 est l'intégration énergétique du procédé

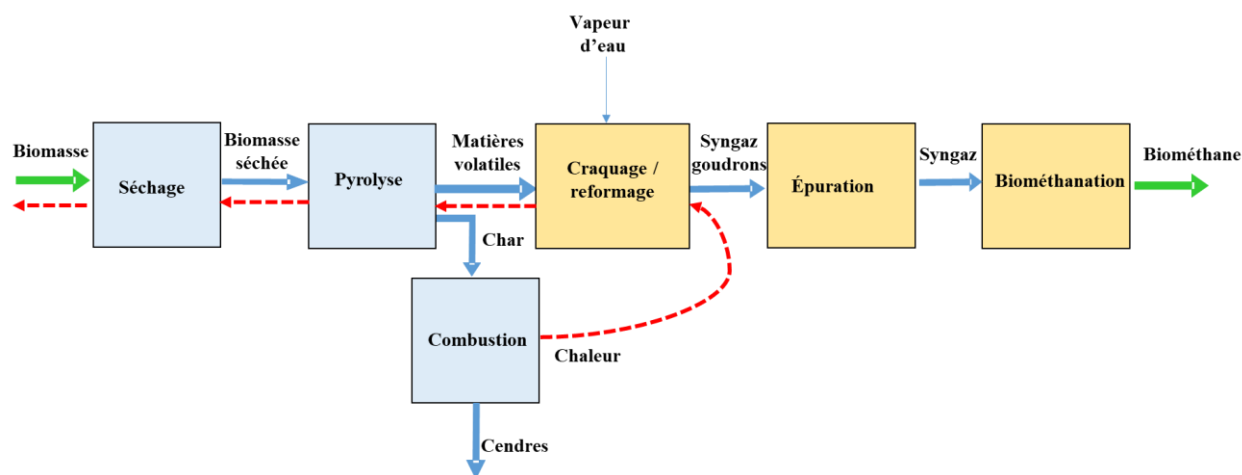


Figure 61 : Description du modèle

La partie 1 comprend les blocs du séchage de la biomasse, de la pyrolyse, du craquage et du reformage des matières volatiles, de l'épuration du syngaz et de la biométhanation du syngaz.

La partie 2 est constituée de la combustion du char issu de la pyrolyse de la biomasse et de l'apport de chaleur d'abord au procédé de craquage/reformage, ensuite au procédé de pyrolyse, puis au procédé de séchage et enfin au procédé de biométhanation.

L'upgrading du biométhane n'est pas inclus. Les différents blocs sont décrits dans la suite.

### 6.3.1 Principaux équipements utilisés pour la modélisation.

- Réacteur RSTOIC :

Il est utilisé pour modéliser une réaction lorsque la stœchiométrie est connue. Il a été utilisé pour modéliser le séchage et la biométhanation. Les coefficients stœchiométriques ont été spécifiés dans le réacteur.

- Réacteur de RYIELD :

Si les réactions et leurs stœchiométries sont inconnues, mais que les quantités des produits par unité de masse ou unité de mole du réactif sont connues, le réacteur RYIELD peut être utilisé. Il permet de spécifier les rendements ou de les calculer avec un sous-programme Fortran fourni par l'utilisateur. Il a été utilisé pour modéliser la pyrolyse et la décomposition du char.

- Réacteur Rplug :

Pour modéliser les réactions dont les stœchiométries et les cinétiques sous ASPEN plus, on utilise le réacteur Rplug ou réacteur piston. Les réactions chimiques doivent être définies et ajoutées au réacteur. La loi d'Arrhenius peut être utilisée pour calculer la vitesse de la réaction.

$$r = kT^n e^{\frac{-E}{RT}} \prod_{i=1}^N C_i^{\sigma_i} \quad 6.1$$

$r$  est la vitesse de réaction  $\text{kmol.s}^{-1} \text{ m}^{-3}$ ,  $k$  le facteur pré-exponentiel,  $T$  est la température absolue,  $E$  est l'énergie d'activation et  $R$  est la constante de gaz parfait,  $C_i$  est la concentration du composé  $i$ ,  $\sigma_i$  est l'exposant du composé  $i$ .

La longueur et le diamètre du réacteur sont spécifiés par l'utilisateur. Le temps de séjour est calculé par Aspen et il dépend du volume du réacteur et de la température. Ce réacteur a été utilisé pour modéliser le craquage/reformage des matières volatiles de la pyrolyse.

- Le réacteur de RGIBBS :

C'est un réacteur qui permet de minimiser l'enthalpie libre des produits. Les propriétés de l'état standard de chaque molécule sortant du réacteur sont utilisées. Ceci peut être réalisé sans avoir à indiquer les réactions mises en jeu et les constantes d'équilibre ou les cinétiques. Il a été utilisé pour simuler la combustion des produits issus de la décomposition du char.

- RDFRAC :

Ce réacteur permet de modéliser de façon rigoureuse des colonnes de distillation, d'absorption, etc. Les données d'entrée de ce modèle sont :

- le nombre d'étages et des spécifications supplémentaires donnant taux de reflux, débit de distillat, la puissance thermique du bouilleur ou du condenseur ;
- la position des alimentations et des soutirages ;
- le profil de pression dans la colonne.

Il a été utilisé pour l'épuration du syngaz.

- DSTWU :

C'est une colonne de distillation simplifiée qui permet de calculer le taux de reflux donné et de trouver, pour des performances de séparation imposées entre deux constituants clés, le nombre d'étages correspondant à un taux de reflux donné, ou le taux de reflux correspondant à un nombre d'étages. Le modèle de calcul est basé sur les équations de Gilliland et Underwood. Les données à spécifier sont :

- les performances de séparation (clé lourde et clé légère) ;
- soit le nombre d'étages, soit le taux de reflux ;
- la pression en tête et en pied de la colonne.

La colonne est supposée adiabatique. Elle a été utilisée pour régénérer le biodiesel.

- Échangeur de chaleur ou HEATER

Un *Heater* peut représenter n'importe quelle opération qui échange de la chaleur avec l'extérieur. Le modèle HEATER établit les bilans matière et énergie, indépendamment de la façon dont l'énergie est échangée avec l'extérieur.

- Échangeur de chaleur HEATX

Par rapport au HEATER, HEATX permet de tenir compte des surfaces et des coefficients d'échange thermique.

- Mélangeur (Mixer)

Ce module accepte un nombre illimité de débits d'entrée, et les combine en un débit de sortie unique et homogène. Il est supposé adiabatique.

- Diviseurs de débits (SPLIT)

Un diviseur de débit part d'un débit d'entrée qu'il sépare en un nombre illimité de débits de sortie, tous à la même température, la même pression et la même composition.

### **6.3.2 Modélisation des propriétés de la biomasse et du char**

Le logiciel intègre une base de données des composés prédéfinis avec des propriétés bien connues. Pour les composés qui ne sont pas prédéfinis, il revient à l'utilisateur d'utiliser les fonctions disponibles dans le logiciel. Pour définir la biomasse et le char, nous avons utilisé le

fonction « MIXCINC ». Cette fonction signifie composés conventionnels, solides conventionnels et non conventionnels, sans distribution de taille de particule. Les déchets verts et le char issu de leur pyrolyse ont été définis dans le modèle. Leurs caractéristiques sont données dans le Tableau 29. Les méthodes HCOALGEN et DGOALIGT permettent de calculer l'enthalpie et la densité des déchets verts et du bois en se basant sur les données du Tableau 29.

Le débit de la biomasse entrante considéré est de 0,75 kg/h avec une teneur en humidité de 20% sur base humide. Le choix du débit a été fait afin de reproduire les conditions expérimentales

Tableau 29 : Propriétés de déchets verts et du char (sur base sèche)

| Paramètres                    | Déchets<br>verts | Char | Paramètres | Déchets<br>verts | Char |
|-------------------------------|------------------|------|------------|------------------|------|
| Taux d'humidité               | -                | -    | C          | 48,8             | 76,5 |
| Taux de matières<br>volatiles | 79,3             | 9,0  | H          | 5,6              | 0,91 |
| Taux de cendres               | 2,7              | 12,4 | N          | 0,35             | 0    |
| Taux de carbone<br>fixe       | 18,0             | 78,6 | O          | 42,5             | 10,2 |

### 6.3.3 Modélisation du séchage de la biomasse

Les déchets verts avec un débit 0,75 kg/h et une humidité de 20% sur base humide sont mis en contact de l'air sec préchauffé à 200°C, puis introduits dans un réacteur adiabatique « RSTOIC » désigné par SECHAGE (Figure 62). Le débit de l'air de séchage est ajusté de manière à avoir des déchets verts avec une humidité de 7% sur base humide à la sortie du réacteur. Nous avons mis cette condition afin de correspondre aux conditions expérimentales. À la sortie du réacteur, un séparateur idéal permet de séparer l'humidité de la biomasse séchée. La biomasse conserve la même composition à la sortie du réacteur. Pour améliorer le rendement du séchage, nous avons permis pour le recyclage d'une partie de l'air humide. Grâce au diviseur

de débit « B6 », 1/3 de l'air humide est redigé vers le mixer « B8 ». L'air humide recyclé et l'air sec neuf sont mélangés avant d'être préchauffés.

Le préchauffage de l'air se fait avec la chaleur résiduelle des fumées de combustion du char.

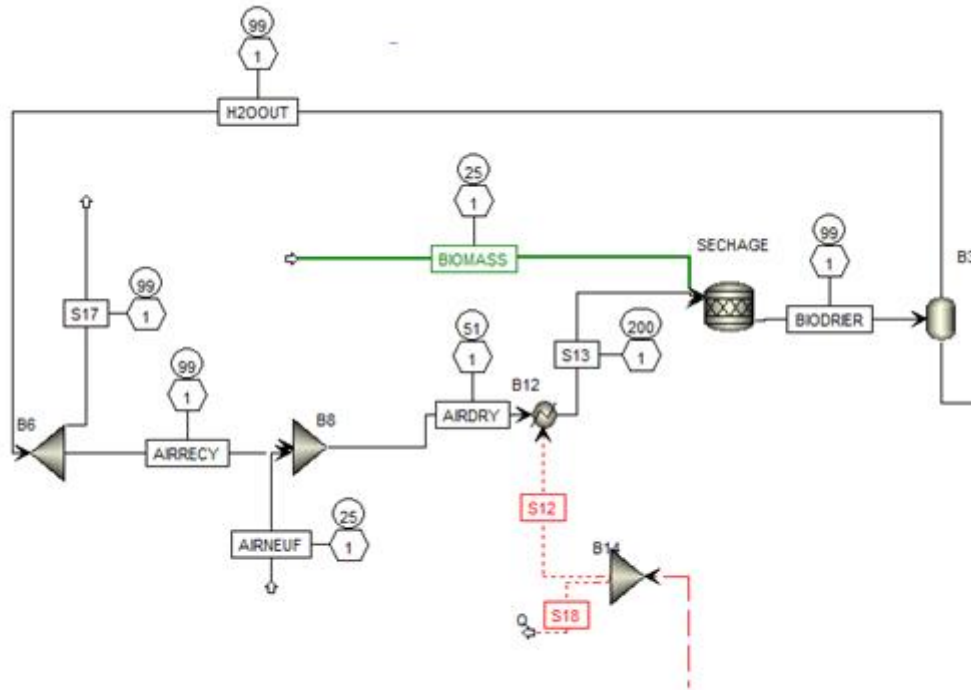


Figure 62 : Schéma détaillé du bloc « séchage »

### 6.3.4 Modélisation de la pyrolyse

La simulation de la pyrolyse des déchets verts séchés (BIOIN) a été modélisée avec le réacteur RYIELD que nous avons appelé PYROLYSE (Figure 63). Les déchets verts séchés sont décomposés en gaz incondensables, en goudrons et en char selon les coefficients de conversion massique déterminés expérimentalement. Ces données expérimentales proviennent du chapitre 3. Nous avons fait les hypothèses suivantes :

- Les gaz incondensables sont composés de :  $H_2$ ,  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $CH_4$ ,  $C_2H_4$  ;
- Les goudrons sont composés de :  $C_6H_6O$ ,  $C_6H_6$ ,  $C_7H_8$ ,  $C_{10}H_8$  .

Le réacteur est isotherme à  $800^\circ C$  et à pression atmosphérique.

Le séparateur idéal solide-gaz « SEP1 » placé après le réacteur de pyrolyse permet de séparer par gravité le char « SOLID » des matières volatiles « VAPORS » (gaz incondensables et goudrons ).

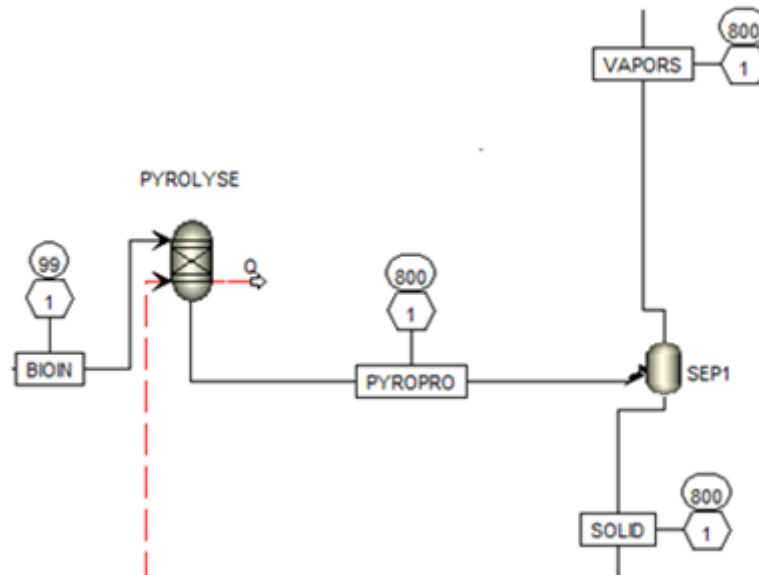


Figure 63 : Schéma détaillé du bloc « pyrolyse »

### 6.3.5 Modélisation du craquage/reformage des matières volatiles

Les matières volatiles (VAPORS) ont été introduites dans un réacteur piston isotherme appelé « REFORMAG » (Figure 64). Avant leur entrée dans le réacteur, elles passent par un échangeur de chaleur HEATX (ECHPRREF). Notre objectif était de préchauffer les matières volatiles de 800 à 850°C pour se mettre dans des conditions similaires aux expériences. Cependant, les conditions d'utilisation du logiciel n'ont pas permis d'avoir cette température. Une partie de la chaleur du syngaz est récupérée pour préchauffer les matières volatiles entrantes.



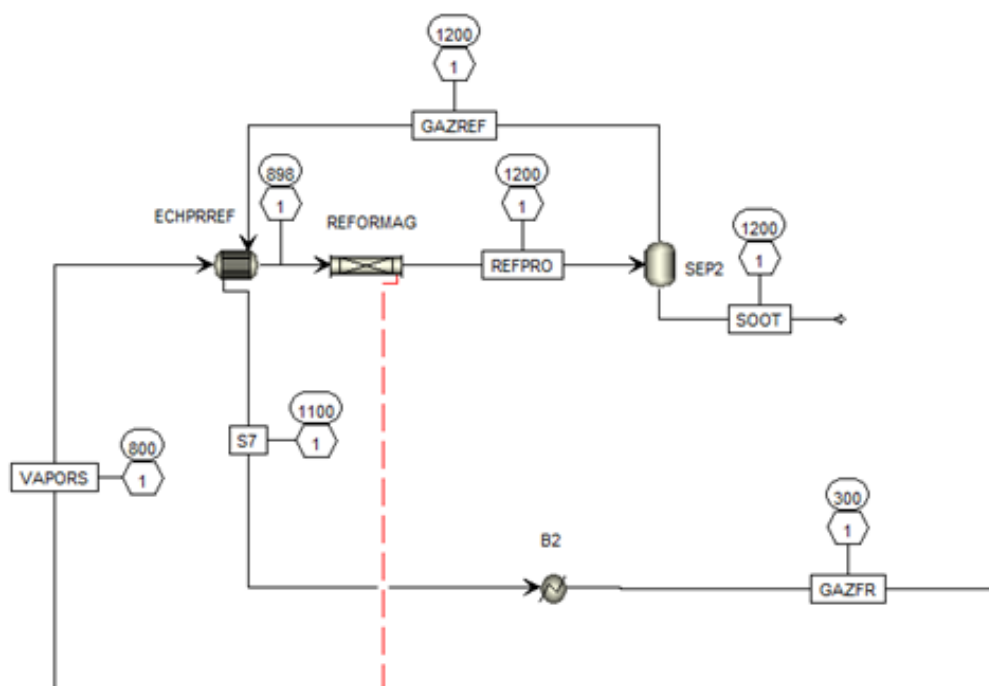


Figure 64 : Schéma détaillé du bloc « craquage/reformage des matières volatiles »

Les produits de la conversion des matières volatiles étant connus, nous avons cherché des réactions chimiques qui permettent de les retrouver à partir du modèle. Ce sont les 10 réactions identifiées dans différentes sources bibliographiques et résumées dans le Tableau 30. Nous avons établi un schéma simple de craquage/reformage des hydrocarbures légers ( $\text{CH}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$ ,  $\text{C}_2\text{H}_4$ ) et des goudrons ( $\text{C}_6\text{H}_6\text{O}$ ,  $\text{C}_6\text{H}_6$ ,  $\text{C}_7\text{H}_8$ ,  $\text{C}_{10}\text{H}_8$ ) présents dans les matières volatiles. Il est décrit dans la Figure 65. Dans ce schéma, les suies sont assimilées au carbone solide. Les réactions ont été implémentées dans le réacteur REFORMAG de diamètre 75 mm et isotherme sur 1 m. Les zones non isothermes en amont et en aval n'ont pas été prises en compte.

Nous avons vérifié le modèle avec deux températures 1200°C et 1300°C et comparé les résultats à ceux obtenus expérimentalement. Rappelons que le temps de séjour des gaz dans le réacteur REFORMAG est calculé par le logiciel en fonction du volume et de la température du réacteur.

Le syngaz est refroidi à 300°C à la sortie de l'échangeur de chaleur (ECHPRREF) avant d'être introduit dans le bloc d'épuration. La chaleur est récupérée par l'échangeur de chaleur (HEATER) B2.

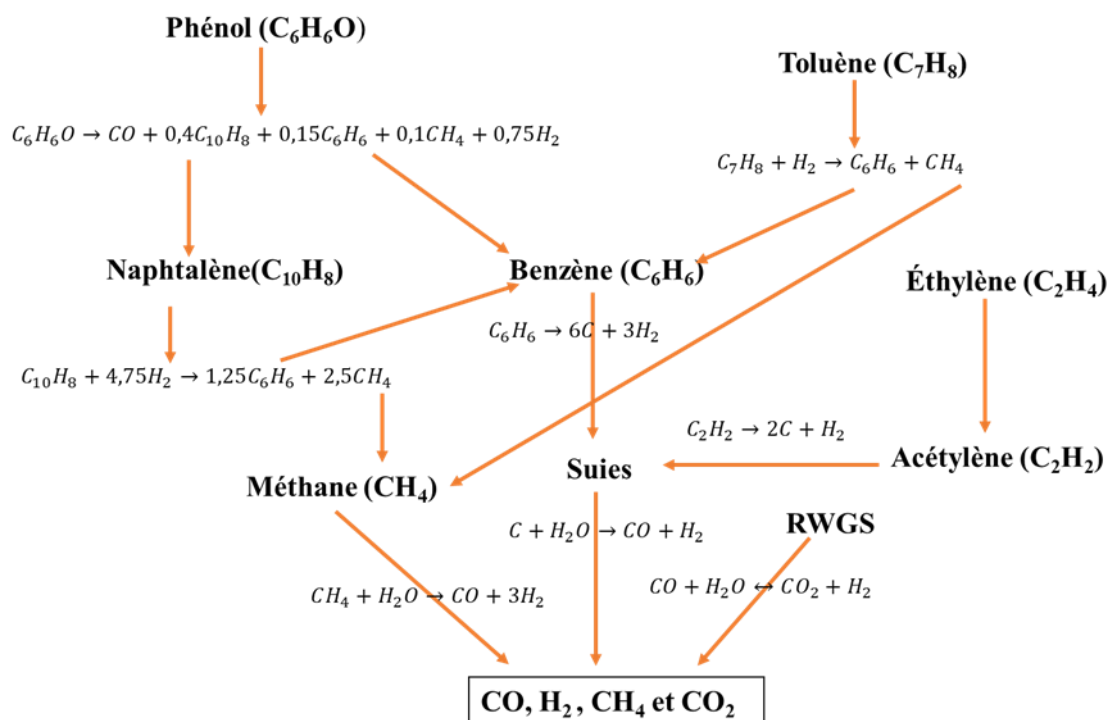


Figure 65 : Schéma proposé pour décrire les réactions de craquage/reformage des hydrocarbures légers et des goudrons

### 6.3.6 Modélisation de l'épuration du syngaz

Le syngaz à la sortie du réacteur REFORMAG est chargé en goudrons. Dans notre approche, nous avons choisi de l'épurer avant de l'introduire dans le procédé de biométhanation. Pour cela, nous avons choisi comme solvant le biodiesel. Ce dernier est représenté dans le logiciel par le Méthyl-Oléate. Le modèle de colonne de lavage (RADFRAC) appelé ici LAVEUR a été utilisé pour épurer le syngaz (Figure 66). Il est alimenté en tête par le biodiesel et en pied par le syngaz chargé de goudrons. Le rapport des débits massiques entre biodiesel et gaz à épurer est de 3. Dans la colonne, le contact entre les phases gaz et liquide permet le refroidissement du gaz. La colonne est considérée adiabatique. Le syngaz épuré est transféré au réacteur de méthanation.

Le biodiesel chargé en goudrons est distillé dans une seconde colonne (DSTWU) appelé B4 afin de régénérer celui-ci (Figure 66). La colonne est considérée adiabatique, mais il faut un appoint de puissance au rebouilleur et une puissance de refroidissement au condenseur. Au pied de la colonne de distillation, une partie du biodiesel est recyclée et l'autre partie est purgée afin

d'éviter l'accumulation des goudrons dans le biodiesel. L'appoint de biodiesel est géré par un sous-programme sur Fortran. En tête de la colonne, les goudrons en phase vapeur sont rejetés.

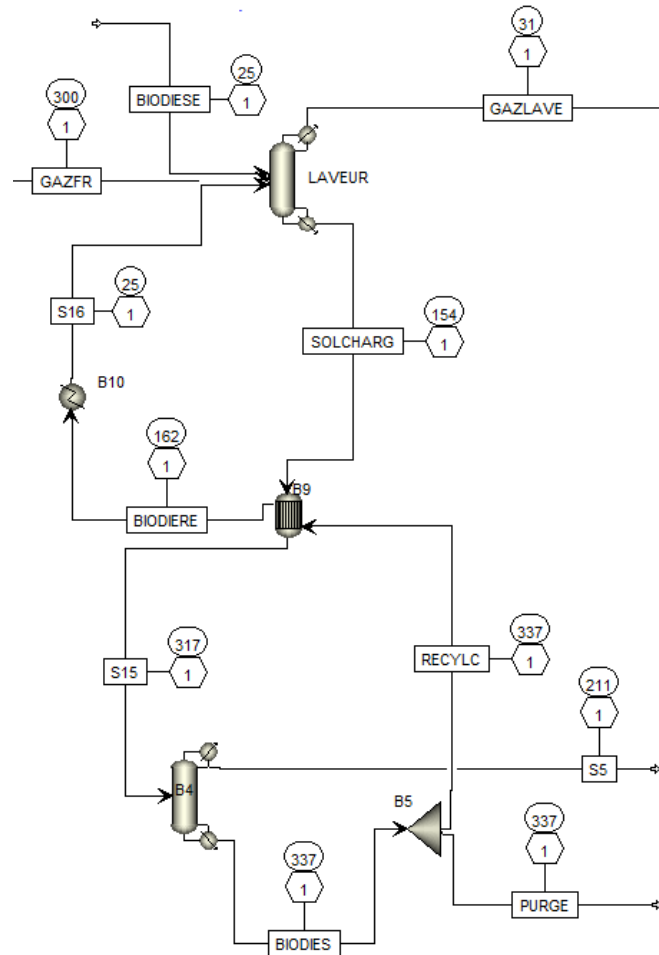


Figure 66 : Schéma détaillé du bloc « épuration du syngaz et de régénération du biodiesel »

### 6.3.7 Modélisation de la biométhanation

Comme cela a été dit dans le chapitre 1, la méthanation biologique peut se faire par la voie directe ou indirecte. La voie indirecte implique la formation d'acétate. Une forte concentration d'acétate dans le milieu peut inhiber l'activité de certains microorganismes, et par conséquent réduire la production de méthane [6]. Dans cette étude, la voie directe a donc été privilégiée et la biométhanation pourrait se réaliser à travers les réactions 6.2 et 6.3.



La démarche suivante reste théorique et elle est basée sur celle utilisée par Hoogendoorn et al [6]. Nous avons supposé que la biométhanation a lieu dans des conditions thermophiles, c'est-à-dire à 55°C. Le syngaz épuré entrant dans le procédé de biométhanation est composé de :  $H_2$ ,  $CO$ ,  $CO_2$  et  $CH_4$ . Nous avons utilisé deux réacteurs stœchiométriques désignés par METHANA 1 et METHANA 2. La Figure 67 présente les étapes de biométhanation. Dans le réacteur METHANA 1, nous avons réalisé la conversion totale de  $CO$  en  $H_2$  et  $CO_2$  avec un ajout d'eau supplémentaire (6.2). METHANA 2 est utilisé pour convertir  $H_2$  avec la réaction 6.3.

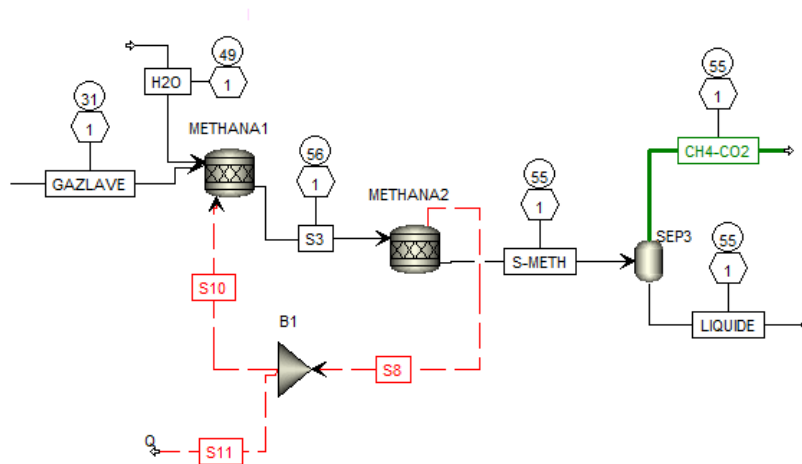


Figure 67 : Schéma détaillé du bloc de la biométhanation du syngaz

À la sortie du réacteur de méthanation, le séparateur « flash » permet de séparer l'eau du gaz ( $CH_4 + CO_2$ ). La séparation du  $CO_2$  est possible, mais n'a pas été envisagée dans le modèle. La chaleur est extraite du réacteur METHANA 2 pour être fournie au réacteur METHANA 1.

Tableau 30 : Réactions et vitesses de réactions utilisées dans le modèle

| Concentration kmol m <sup>-3</sup> , Constante kmol.m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> , Energie d'activation kJ/mol |  |  |                            |
|---|--|--|----------------------------|
| N°  | Réactions  | Vitesses de réactions  | Références                 |
| 1   | $C_{10}H_8 + 4,75H_2 \rightarrow 1,25C_6H_6 + 2,5CH_4$                   | $r_1 = 10^8 e^{\frac{-324}{RT}} [C_{10}H_8]^{0,4} [H_2]^1$                                       | [7]                        |
| 2   | $C_7H_8 + H_2 \rightarrow C_6H_6 + CH_4$                                 | $r_2 = 1,04 \times 10^{12} e^{\frac{-247}{RT}} [C_7H_8]^1 [H_2]^{0,5}$                           | [8]                        |
| 3   | $C_6H_6O \rightarrow CO + 0,4C_{10}H_8 + 0,15C_6H_6 + 0,1CH_4 + 0,75H_2$ | $r_4 = 1 \times e^{\frac{-75}{RT}} [C_6H_6]^{0,75} [H_2]^{-2,2}$                                 | [5]                        |
| 4   | $C_6H_6 \rightarrow C + 3H_2$  | $r_4 = 1 \times e^{\frac{-75}{RT}} [C_6H_6]^{0,75} [H_2]^{-2,2}$                                 |                            |
| 5   | $CH_4 + H_2O \rightarrow CO + 3H_2$                                      | $r_5 = 3,110 \times 10^3 e^{\frac{-124,7}{RT}} [CH_4]^1 [H_2O]^1$                                | [9]                        |
| 6   | $C + H_2O \rightarrow CO + H_2$  | $r_6 = 3,6 \times 10^3 e^{\frac{-310}{RT}} [C]^1 [H_2O]^1$                                       | [7]<br>(Constante ajustée) |
| 7   | $C_2H_4 \rightarrow C_2H_2 + H_2$  | $r_7 = 3,8 \times 10^4 e^{\frac{-200}{RT}} [C_2H_4]^{0,5}$                                       | [8]                        |
| 8   | $C_2H_2 \rightarrow 2C + H_2$  | $r_8 = 5,5 \times 10^3 e^{\frac{-165}{RT}} [C_2H_2]^{1,9} [H_2]^{-2,1}$                          |                            |
| 9   | $CO + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2$                                       | $r_9 = 2,778 \times 10^2 e^{\frac{-12,56}{RT}} [CO]^1 [H_2O]^1$                                  | [9]                        |
| 10  | $CO_2 + H_2 \rightarrow CO + H_2O$                                       | $r_{10} = 6,4 \times 10^{12} e^{\frac{-326}{RT}} [CO]^1 [H_2]^{0,5}$<br>$T \subset 1023 - 1523K$ | [5]                        |

### 6.3.8 Modélisation de la combustion du char

Le char produit lors de la pyrolyse des déchets verts a été utilisé pour apporter de la chaleur aux procédés de craquage/reformage, de pyrolyse et de séchage. La Figure 68 présente les détails de la modélisation de la combustion du char. Les caractéristiques du char sont données dans le Tableau 29. Le réacteur RYIELD appelé DECOMB décompose le char en C pur, en H<sub>2</sub>, en O<sub>2</sub> et en cendres. Cette étape est endothermique. Puis les produits issus de la combustion du char sont brûlés avec un courant d'air dans le second réacteur qui est basé sur le principe de la minimisation de l'énergie GIBBS, désigné par COMBUSTI. La chaleur résiduelle des cendres n'est pas valorisée.

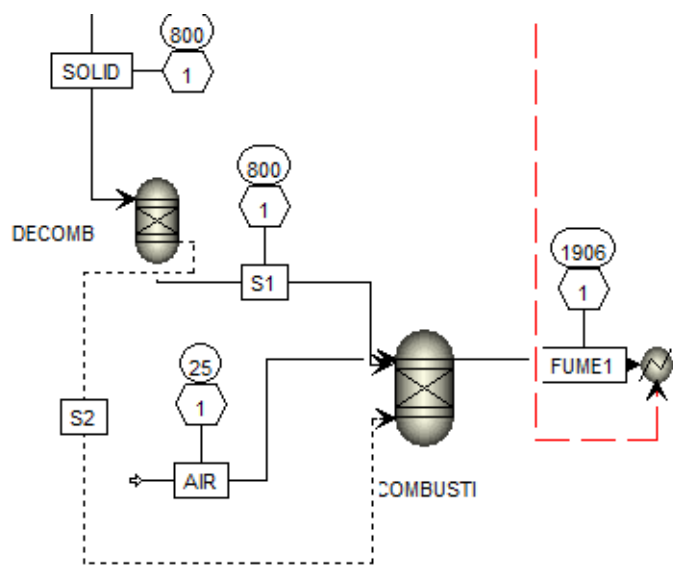


Figure 68 : Schéma détaillé du bloc combustion du char

### 6.3.9 Intégration énergétique du procédé

Dans ce travail, la chaleur des fumées de combustion du char est récupérée pour assurer l'intégration énergétique du procédé de pyrogazéification. Le procédé de biométhanation est autonome énergétiquement. L'intégration du procédé est assurée par un réseau d'échangeurs de chaleur (HEATER) connecté à la sortie du réacteur de combustion du char (Figure 69). QREF, QPYRO et QSEC représentent la chaleur fournie aux procédés de craquage/reformage, de pyrolyse et de séchage respectivement.

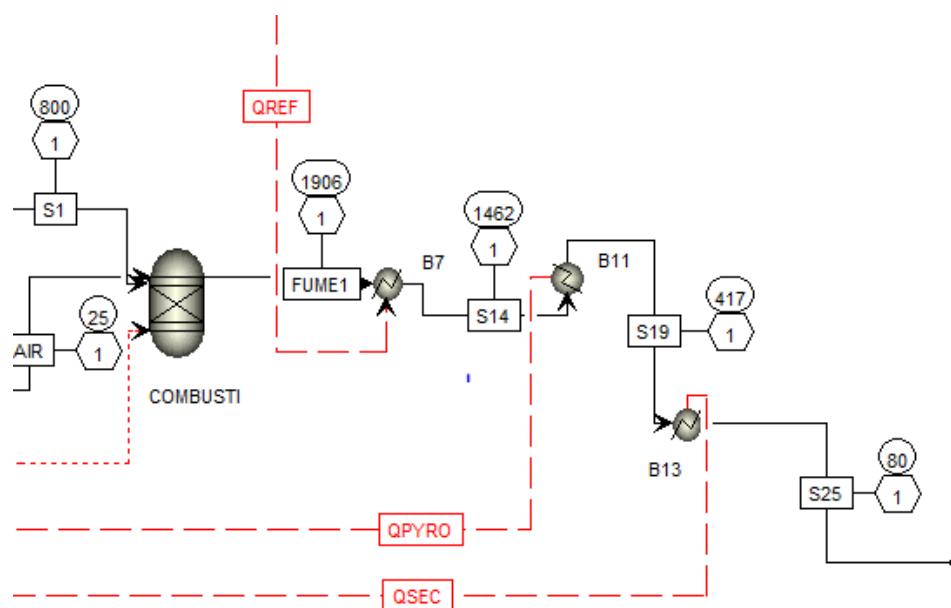


Figure 69 : Schéma détaillé de l'intégration énergétique du procédé de pyrogazéification

## 6.4 Résultats

### 6.4.1 Intégration énergétique

L'intégration énergétique de pyrogazéification a été réalisée avec la pyrolyse à 800°C et le craquage/reformage à 1200°C. La combustion du char a été modélisée avec un excès d'air de 13%. La composition des fumées de combustion est présentée en annexe 2. Le refroidissement du syngaz avant épuration permet aussi de récupérer une énergie valorisable. Le Tableau 31 résume les différentes énergies disponibles. L'énergie récupérée du refroidissement du syngaz représente environ 9% de l'énergie contenue dans la biomasse et celle de la combustion du char est 31%.

Tableau 31 : Récapitulatif des énergies disponibles

| Bloc               | Source                    | Q(MJ/kg<br>biomasse sèche) | $\Delta T(^{\circ}C)$ |
|--------------------|---------------------------|----------------------------|-----------------------|
| Craquage/reformage | refroidissement du syngaz | 1,5                        | 1200 à 300            |
| Combustion du char | fumées                    | 5,6                        | 1906 à 80             |

Nous avons identifié les besoins énergétiques des étapes de séchage, de pyrolyse et de craquage/reformage. Le Tableau 32 donne un récapitulatif des besoins en énergie dans les trois blocs.

Tableau 32 : Récapitulatif des besoins en énergie

| Bloc               | $\Delta T(^{\circ}C)$ | Q (MJ/kg biomasse sèche) |
|--------------------|-----------------------|--------------------------|
| Séchage            | 25 à 200              | 0,96                     |
| Pyrolyse           | 99 à 800              | 3,2                      |
| Craquage/reformage | 898 à 1200            | 1,5                      |

Nous pouvons constater que si l'on valorise seulement le char issu de la pyrolyse, l'énergie disponible pour le séchage de la biomasse avec une teneur en humidité de 20% est juste suffisante. Si l'humidité de la biomasse est supérieure à 20%, l'énergie de la combustion du char ne suffit pas pour le séchage. On pourrait utiliser l'énergie récupérée du refroidissement du syngaz pour faire le complément.

Une autre solution est de recirculer une partie de l'air humide afin de minimiser l'énergie consommée par le séchage de la biomasse. Nous avons réalisé une analyse de sensibilité de la consommation d'énergie en fonction du taux de recirculation de l'air humide. Comme on peut le voir sur la Figure 70, la consommation d'énergie pour le séchage diminue avec le taux de recirculation. Il serait donc intéressant pour les procédés à petite et moyenne échelles de prévoir une recirculation de l'air humide afin de minimiser la consommation d'énergie lors du séchage.

L'intégration énergétique étant réalisée, nous pouvons examiner les performances du procédé étudié.



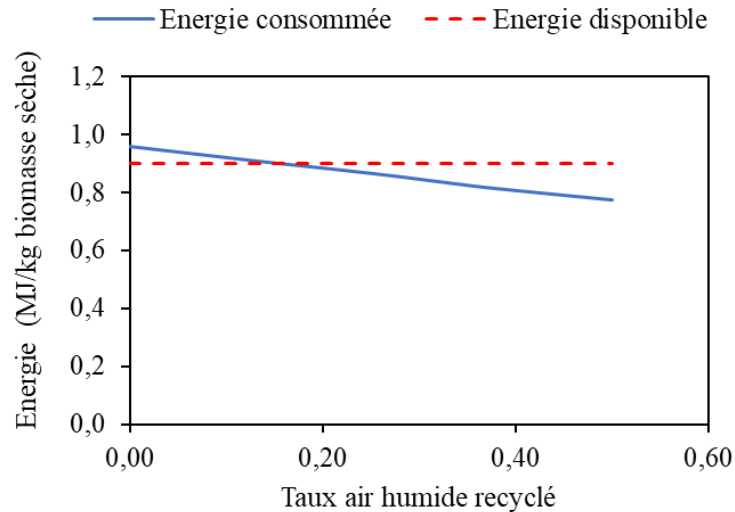


Figure 70 : Energie consommée en fonction du taux de recirculation de l'air humide et énergie disponible

#### 6.4.2 Bilan matière du procédé de pyrogazéification

Les résultats du modèle ont été confrontés à ceux obtenus expérimentalement. Le Tableau 33 montre les rendements massiques en produits, en sortie du réacteur craquage/reformage, selon l'expérience et le modèle. La Figure 71 présente la composition du syngaz. Le modèle représente de manière satisfaisante les rendements massiques en produits ainsi que la composition du syngaz. Les légers écarts que l'on peut observer sont probablement dus aux erreurs introduites par la modélisation des réactions chimiques dans le réacteur piston.

Tableau 33 : Bilans massiques selon l'expérience et le modèle

| Produits / %<br>massique sur<br>base sèche | Expérience |        | Modèle |        |
|--|------------|--------|--------|--------|
|  | 1200°C     | 1300°C | 1200°C | 1300°C |
| Syngaz                                     | 54,65      | 55,21  | 54,82  | 57,97  |
| Goudrons                                   | 5,58       | 2,53   | 5,07   | 2,94   |
| Eau  | 9,11       | 11,99  | 10,93  | 10,05  |
| Suies                                      | 9,81       | 9,31   | 8,21   | 8,08   |
| Char                                       | 20,96      | 20,96  | 20,98  | 20,98  |

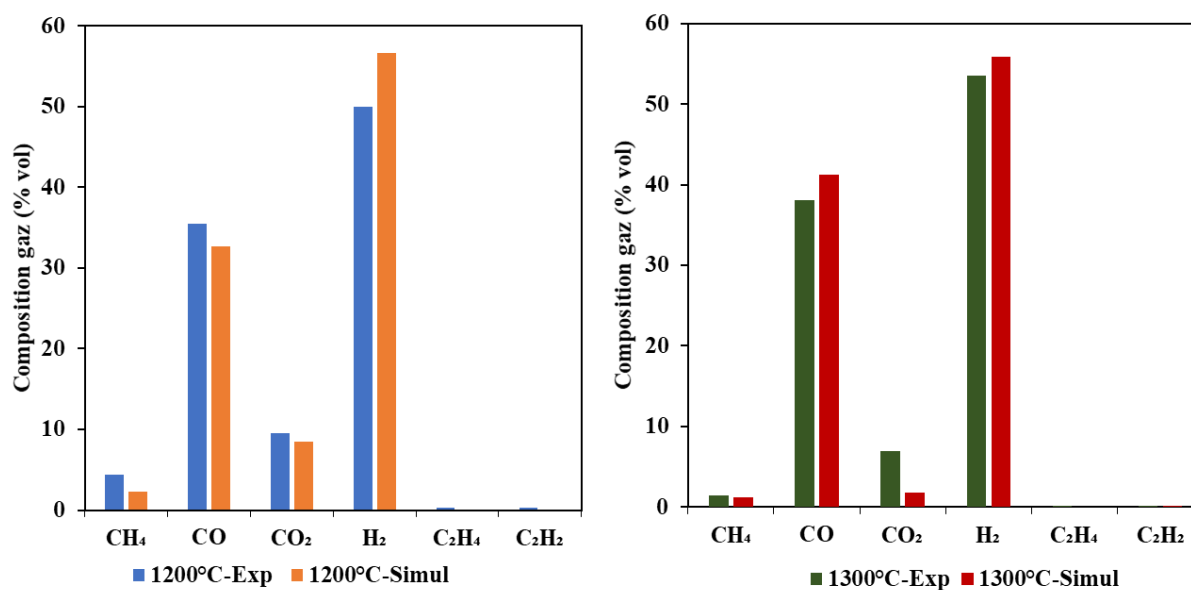


Figure 71 : Composition du syngaz selon l'expérience et le modèle

### 6.4.3 Bilan de matière du procédé global

Le bilan de matière est ici réalisé pour le procédé de pyrogazéification (pyrolyse à 800°C et craquage/reformage à 1200°C) puis de méthanation biologique. Le bilan de matière du procédé global est donné dans le Tableau 34.

Tableau 34 : Bilan matière du procédé global

|         |                   | Débit (kg/h) |
|---------|-------------------|--------------|
| Entrées | Déchets verts     | 0,75         |
|         | Air               | 4,71         |
|         | Eau Méthanation   | 0,14         |
|         | Biodiesel         | 0,03         |
| Sorties | Biométhane        | 0,10         |
|         | Dioxyde carbone   | 0,20         |
|         | Eau résiduelle    | 0,26         |
|         | Cendres           | 0,02         |
|         | Fumées            | 1,55         |
|         | Goudrons          | 0,03         |
|         | Biodiesel purgé   | 0,03         |
|         | Suies             | 0,05         |
|         | Air humide rejeté | 3,40         |

Ce bilan matière permet de calculer les caractéristiques du procédé global.

#### 6.4.4 Performance du procédé global

La production de biométhane calculée est de  $159 \text{ g}_{CH_4}/\text{kg}$  de déchets verts secs. Le rendement énergétique en méthane est donc :

$$\eta_{CH_4} = \frac{\dot{m}_{CH_4} \times PCI_{CH_4}}{\dot{m}_{Biomasse\_s\grave{e}che} \times PCI_{Biomasse}} \times 100 = 44,3\% \quad 6.4$$

Le Pouvoir Calorifique Inférieur de déchets verts étant de 17,94 MJ/kg et celui du méthane de 50,03 MJ/kg.

Le rendement en carbone du procédé global est de :

$$\eta_C = \frac{\dot{m}_{C,sor}}{\dot{m}_{C,ent}} = 23,6\% \quad 6.5$$

Où  $\dot{m}_{C,sor}$  et  $\dot{m}_{C,ent}$  sont les débits massiques de carbone dans le méthane et dans la biomasse respectivement.

Le rendement énergétique en méthane et le rendement en carbone obtenu sont inférieurs obtenu à ceux par Duret et al [10]. Ces derniers ont réalisé une modélisation du procédé de pyrogazéification allothermique (FICFB) couplé à la méthanation avec une intégration énergétique. Ils ont obtenu un rendement énergétique en méthane de 57,9% (sur PCI bois sec et sans les cendres) et un rendement en carbone de 34,7%. La différence entre les deux rendements vient du fait que dans notre procédé une partie du carbone de la biomasse est perdue dans les suies, dans le CO<sub>2</sub>, les goudrons et le char.

## 6.5 Conclusion

La modélisation du procédé global a permis d'estimer un rendement énergétique de conversion des déchets verts en biométhane de 44% (sur PCI de la biomasse sèche) et un rendement en carbone de 24%. La combustion du char de pyrolyse fournit bien la chaleur nécessaire au procédé de pyrogazéification et rend l'ensemble autotherme. Nous avons montré que la récupération de l'énergie du char est possible en mettant en cascade le réacteur de reformage, puis le réacteur de pyrolyse et enfin le sécheur.

Ces résultats encouragent le développement de la biométhanation couplée à la pyrogazéification de la biomasse. Ceci permettrait d'élargir sensiblement le potentiel de production de biométhane et ainsi d'atteindre les objectifs de la Loi de Transition Énergétique pour la Croissance Verte. Opérer à petite échelle permettrait de limiter les distances de collecte de la biomasse et de distribution du biométhane.

## Bibliographie

- [1] J. F. Peters, S. W. Banks, A. V. Bridgwater, and J. Dufour, *A Kinetic Reaction Model for Biomass Pyrolysis Processes in Aspen Plus*, Appl. Energy **188**, 595 (2017).
- [2] P. Kaushal and R. Tyagi, *Advanced Simulation of Biomass Gasification in a Fluidized Bed Reactor Using ASPEN PLUS*, Renew. Energy **101**, 629 (2017).
- [3] L. P. R. Pala, Q. Wang, G. Kolb, and V. Hessel, *Steam Gasification of Biomass with Subsequent Syngas Adjustment Using Shift Reaction for Syngas Production: An Aspen Plus Model*, Renew. Energy **101**, 484 (2017).
- [4] A. G. Adeniyi, J. O. Ighalo, and F. A. Aderibigbe, *Modelling of Integrated Processes for the Pyrolysis and Steam Reforming of Rice Husk (Oryza Sativa)*, SN Appl. Sci. **1**, 1 (2019).
- [5] L. Abdelouahed, O. Authier, G. Mauviel, J. P. Corriou, G. Verdier, and A. Dufour, *Detailed Modeling of Biomass Gasification in Dual Fluidized Bed Reactors under Aspen Plus*, Energy and Fuels.
- [6] H. Alwin and V. K. Han, *Transportation Biofuels Novel Pathwats for the Production of Ethanol, Biogas and Biodiesel* (2009).
- [7] A. Jess, *Mechanisms and Kinetics of Thermal Reactions of Aromatic Hydrocarbons From Pyrolysis of Solid Fuels*, Fuel **75**, 1441 (1996).
- [8] M. Materazzi, P. Lettieri, L. Mazzei, R. Taylor, and C. Chapman, *Tar Evolution in a Two Stage Fluid Bed-Plasma Gasification Process for Waste Valorization*, Fuel Process. Technol. (2014).
- [9] A. Fourcault, F. Marias, and U. Michon, *Modelling of Thermal Removal of Tars in a High Temperature Stage Fed by a Plasma Torch*, Biomass and Bioenergy **34**, 1363 (2010).
- [10] A. Duret, C. Friedli, and F. Maréchal, *Process Design of Synthetic Natural Gas (SNG) Production Using Wood Gasification*, J. Clean. Prod. **13**, 1434 (2005).

## Annexe 1 : compléments de la simulation

Simulation de l'effet de l'ajout de vapeur d'eau sur les produits de la pyrogazéification à 1200°C

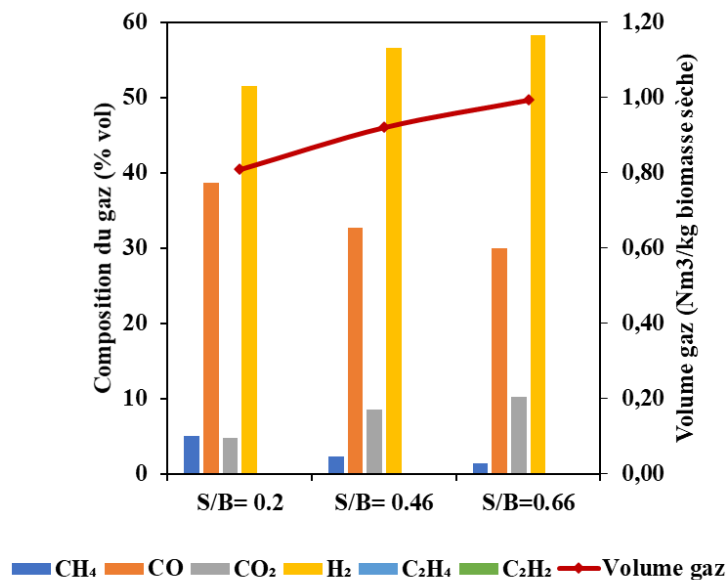


Figure 72 : Composition de gaz

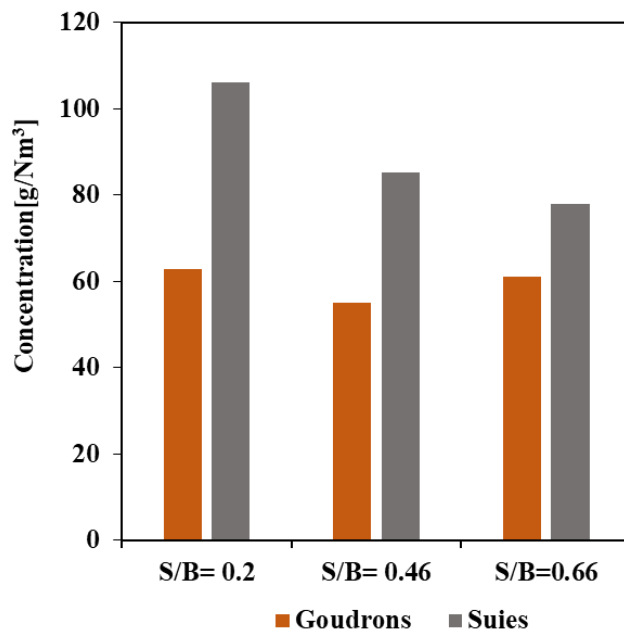


Figure 73 : Concentration en suies et en goudrons

## Annexe 2 : composition des fumées

Tableau 35 : Composition des fumées de combustion du char à 800°C

| Composés         | % vol |
|------------------|-------|
| CO               | 0.39  |
| CO <sub>2</sub>  | 15.93 |
| H <sub>2</sub>   | 0.01  |
| H <sub>2</sub> O | 1.15  |
| NO <sub>2</sub>  | 0.00  |
| NO               | 0.59  |
| O <sub>2</sub>   | 4.49  |
| N <sub>2</sub>   | 77.45 |

### Annexe 3 : schéma global du modèle

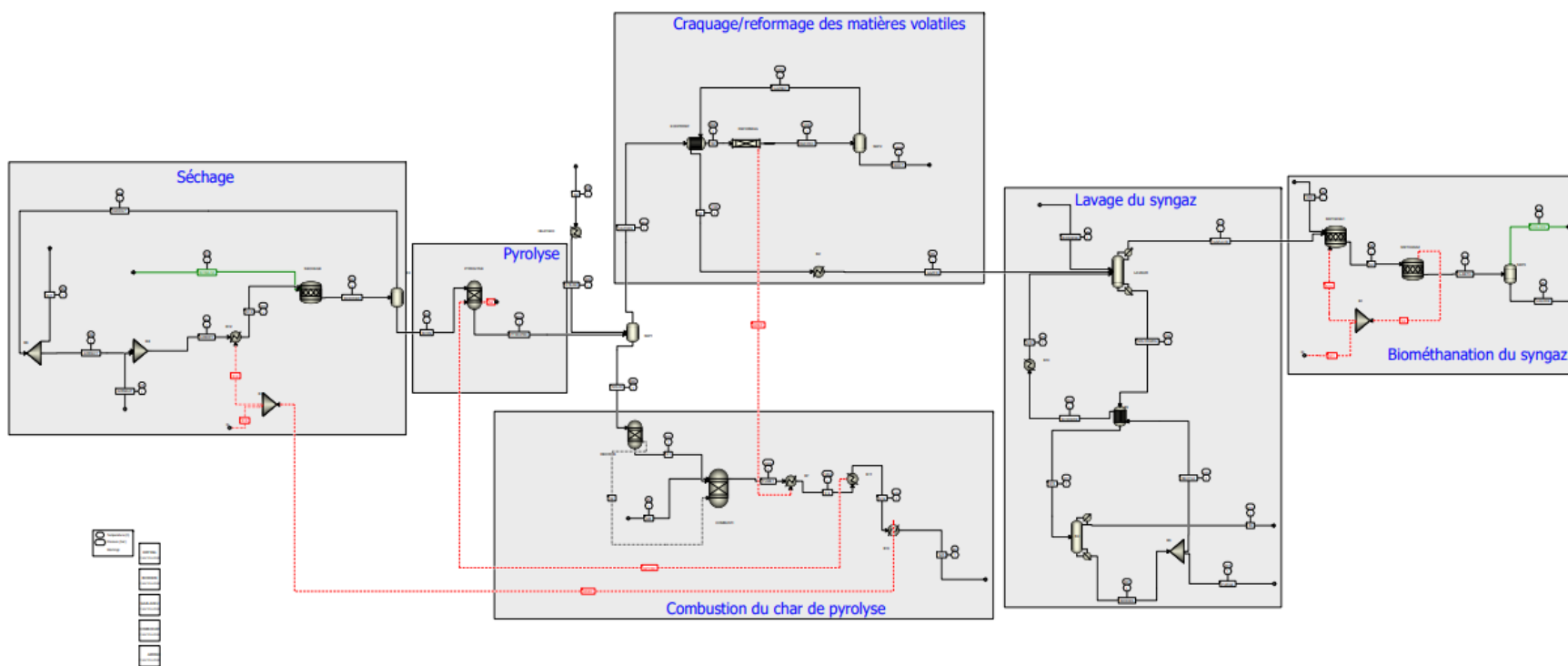


Figure 74 : Schéma global du modèle