



Rapport Final du 13 Novembre 2023

PyrOxy : Pyrolyse oxydante de la biomasse lignocellulosique pour la production de biochar et de gaz de synthèse



Source : iE, HEIG-VD, Yverdon-Les-Bains



Date : 13 novembre 2023

Lieu : Yverdon-Les-Bains

Prestataire de subventions :

Office fédéral de l'énergie OFEN
Section Recherche énergétique et cleantech
CH-3003 Berne
www.ofen.admin.ch

Cofinancement :

Canton de Vaud, dossier E.2020.17959

Bénéficiaires de la subvention :

HEIG-VD/IE¹
Avenue des Sports 20, CH-1401 Yverdon-les-Bains www.heig-vd.ch

Auteur(s) :

Fouzia El abdellaoui, HEIG-VD/IE, fouzia.elabdellaoui@heig-vd.ch
Roger Röthlisberger, HEIG-VD/IE, roger.roethlisberger@heig-vd.ch

Suivi du projet à l'OFEN :

Sandra Hermle, sandra.hermle@bfe.admin.ch

Numéro du contrat de l'OFEN : SI/501972-01

Les auteurs sont seuls responsables du contenu et des conclusions du présent rapport.

¹ L'octroi de la subvention a été fait à l'institut de Génie Thermique qui a, entre temps, été intégré au nouvel institut des Énergies.



Résumé

Ce projet avait pour but d'étudier expérimentalement un réacteur de pyrolyse oxydante de biomasse lignocellulosique destiné à produire simultanément du biochar (non-activé et activé) et à traiter le gaz de synthèse généré par les composants volatiles pour en réduire la teneur en goudrons. L'objectif était d'obtenir une qualité de gaz suffisante pour produire efficacement de l'électricité dans un moteur à combustion interne à pistons conventionnel, tout en valorisant la chaleur produite. La composition du gaz de synthèse et du biochar obtenus par pyrolyse oxydante sont comparables avec ceux publiés dans la littérature. En raison de pertes de chaleur excessives liées à l'architecture du système, il n'a pas été possible d'étudier de manière détaillée les effets de l'interaction entre le gaz de synthèse et le biochar sur leurs compositions respectives dans le cadre du traitement du gaz de synthèse. La relativement faible température de réaction atteinte, inférieure de plusieurs centaines de degrés à celle de 700 à 800°C préconisée dans la littérature, n'a pas permis de mettre en évidence des tendances claires. Toutefois, de nombreuses connaissances essentielles ont été acquises et pourront être mises à profit pour la réalisation d'un nouveau réacteur combiné ainsi que pour améliorer la caractérisation et l'analyse des produits générés.

Summary

The aim of this project was to experimentally study a lignocellulosic biomass oxidative pyrolysis reactor designed to simultaneously produce biochar (non-activated and activated) and upgrading the syngas generated by the volatile components to reduce its tar content. The objective was to obtain an appropriate gas quality to efficiently generate electricity in a conventional internal combustion piston engine, while recovering the heat produced. The composition of the syngas and biochar obtained by oxidative pyrolysis are comparable with those published in the literature. Due to excessive heat losses associated with the system architecture, it was not possible to study in detail the effects of the interaction between syngas and biochar on their respective compositions in the syngas upgrading process. The relatively low reaction temperature achieved, several hundred degrees lower than the 700-800°C recommended in the literature, did not allow to identify clear trends. However, a great deal of essential knowledge has been acquired and can be used to build a new combined reactor and to improve the characterisation and analysis of the products generated.



Table des matières

Résumé.....	3
Summary	3
1 Introduction.....	6
1.1 Contexte et arrière-plan	6
1.2 Justification du projet.....	6
1.3 Objectifs du projet.....	7
2 Description des installations.....	8
3 Procédure et méthode.....	10
3.1 Dispositifs expérimentaux.....	10
3.1.1 Réacteurs de la pyrolyse oxydante et de traitement des gaz	10
3.1.2 Mesure des températures.....	10
3.1.3 Régulation des débits d'air	10
3.1.4 Mesure de la pression	11
3.1.5 Système d'acquisition de données	11
3.1.6 Extraction du biochar	12
3.1.7 Circuit d'échantillonnage des goudrons et des gaz incondensables	12
3.1.8 Mesure des gaz incondensables	13
3.2 Substrats de biomasse lignocellulosique	13
3.3 Fonctionnement du système combiné.....	14
3.4 Analyse de la biomasse et des produits de pyrolyse oxydante.....	14
3.4.1 Biomasse lignocellulosique	14
3.4.2 Biochar.....	15
3.4.3 Goudrons	15
3.4.4 Gaz incondensables	16
4 Résultats et commentaires.....	16
4.1 Réacteur de pyrolyse oxydante	16
4.1.1 Caractéristiques des substrats de biomasse lignocellulosique	16
4.1.2 Besoin en air.....	17
4.1.3 Température de fonctionnement	17
4.1.4 Produits de la pyrolyse oxydante	19
4.1.5 Gaz permanents	19
4.1.6 Condensats.....	20
4.1.7 Caractéristiques du biochar.....	21
4.2 Système combiné avec traitement du gaz de synthèse	22
4.2.1 Essais préliminaires du réacteur de traitement du gaz de synthèse	22
4.2.2 Problèmes rencontrés	23
4.2.3 Effet du réacteur de traitement du gaz de synthèse	24



4.3	Système combiné alternatif	28
4.3.1	Principe de fonctionnement	28
4.3.2	Description de l'installation et de son fonctionnement	28
4.3.3	Analyse des résultats de mesure	30
5	Conclusions et résumé	30
6	Aperçu et mise en œuvre prochaine	31
7	Coopération nationale et internationale.....	31
8	Communication	31
9	Publications	32
10	Bibliographie.....	32
11	Annexes	33



1 Introduction

1.1 Contexte et arrière-plan

Malgré les importants efforts de développement consentis à ce jour, les technologies de la pyrolyse et de la gazéification à petite échelle n'ont pas encore atteint un niveau suffisant de maturité technique, économique et environnementales.

A notre connaissance la technologie Xylowatt via le réacteur « NOTAR » est le seul système qui permettent de produire un gaz de synthèse propre en terme de teneur en goudrons grâce à un procédé de gazéification étagé dans un seul réacteur, constitué essentiellement d'une première zone de pyrolyse oxydante pour produire du biochar libre de goudrons et des gaz de pyrolyse, d'une deuxième zone pour le craquage thermique des goudrons à haute température (1200°C) et d'une troisième zone de gazéification du biochar pour produire des gaz de synthèse destinés à la tri-génération (électricité, chaleur et froid). Bien que la technologie soit commercialisée, les températures de fonctionnement très élevées du réacteur et la gestion des cendres produites affectent négativement le rendement global de l'installation et les coûts d'exploitation, respectivement.

Les procédés de production simultanée de biochar et de gaz via la pyrolyse ou la gazéification de la biomasse ont suscité un intérêt comme technique prometteuse pour répondre aux problématiques énergétiques et environnementales. Le procédé Syncraft pour la tri-génération (biochar, électricité et chaleur) a fait ses épreuves sur le marché. Cependant, la possibilité d'utiliser le biochar produit pour améliorer la fertilité des sols et comme substrat de culture reste à confirmer en raison de la présence d'hydrocarbures aromatique polycycliques (HAP) (Hupfaut Benjamin et al., 2016 ; Huemer Markus et al., 2015). Le procédé Pyreg pour la carbonisation (pyrolyse) de bois permet de produire 300 tonnes/an du biochar avec des spécifications alternativement adaptées au traitement des eaux usées, à la filtration des gaz ou à l'amendement des sols (Wiedner Katja et al. 1998). La technologie BIOMACON CHB pour la cogénération (chaleur et biochar) transforme les plaquettes forestières par pyrolyse en biochar avec différentes capacités (140-2000 tonnes) et en gaz de bois (syngas). Ce dernier est ensuite brûlé pour produire chaleur et électricité. Mais comme le système Pyreg, la qualité des gaz en termes de teneur en goudrons n'est pas suffisante. La teneur en goudrons du gaz de synthèse reste le problème majeur de ces installations qui sont généralement couplées à des systèmes à combustion externe pour produire l'électricité (turbine, cycle ORC, moteur Stirling...).

Ce projet vise à produire du biochar et un gaz de synthèse avec une basse teneur en goudrons au travers d'un procédé alternatif principalement basé sur une pyrolyse oxydante suivi d'un craquage catalytique du gaz de synthèse au moyen du biochar produit. Le processus comprend une injection d'air pour l'oxydation partielle des gaz de pyrolyse oxydante et de vapeur d'eau pour en adapter la composition et activer le biochar utilisé pour le craquage des goudrons. Confiné dans un réacteur combiné, ce processus a pour but de produire simultanément du biochar non-activé et activé ainsi qu'un gaz de synthèse approprié pour une utilisation dans un moteur à combustion interne conventionnel.

1.2 Justification du projet

Comme le montre plusieurs études, la conversion thermochimique de la biomasse via la pyrolyse ou la gazéification sont des technologies prometteuses pour une production simultanée de biochar, d'électricité et de chaleur (Zhao Ming et al., 2016 ; Colontoni Andrea et al., 2016 ; Woolf Dominic et al., 2016). Cependant, l'efficacité de production dépend directement de la tolérance de la technologie à la variabilité des propriétés de la biomasse : nature, granulométrie, taux de cendres et humidité. La biomasse lignocellulosique est une des ressources les plus abondantes sur terre, et en fonction de sa provenance relativement peu coûteuse. Le bois ainsi que les résidus de la foresterie (rémanents de



coupe et chablis) et de l'agriculture (comme les pailles ou les coques de fruit) ou encore les déchets de l'entretien paysager ou des réserves naturelles (branchages ou phragmites) sont des ressources particulièrement adaptées à la production de biochar activé (Ioannidou, O et al., ; Manoj Tripathi et al.,2016). Couplé à une cogénération d'énergie, ces technologies offrent des alternatives intéressantes pour une exploitation efficace des résidus de bois en Suisse (Vadenbo Carl et al., 2018 ; Burg Vanessa et al.,2018) et pourrait ainsi contribuer de manière significative à la transition énergétique planifiée par les autorités fédérales.

Le type de pyrolyse détermine la quantité et la qualité du biochar et de gaz produits. L'oxydation partielle durant la pyrolyse par l'injection d'un faible débit d'air s'avère une méthode simple et efficace pour optimiser le processus dans un réacteur à lit fixe et rendre son fonctionnement autothermique (Elias Daouk,2015). Comparé à la pyrolyse en milieu inerte qui produit environ 31% de goudrons par unité de masse de bois sec, la pyrolyse oxydante en produit seulement 8-10% (Elias Douak,2015). Ceci est la conséquence de l'oxydation des goudrons qui a lieu dans la zone d'oxydation et dans le lit de biochar durant la pyrolyse. D'autres études récentes ont montré que l'efficacité d'adsorption du biochar issu de la pyrolyse et de la gazéification, utilisé pour le craquage catalytique des goudrons contenu dans le gaz de synthèse à des températures 600-800°C, était similaire à celle du charbon activé conventionnellement par vapeur d'eau et dioxyde de carbone (Feng Dongdong et al.,2018). Compte tenu de cela, le couplage entre l'unité de pyrolyse oxydante et un filtre de gaz de synthèse alimenté par une partie de biochar produit, combiné à une injection d'air et de vapeur d'eau pour augmenter la température de la zone d'oxydation partielle et maintenir son activation, représente potentiellement une solution innovante à même de produire simultanément du gaz de synthèse suffisamment pauvre en goudrons pour une poly-génération décentralisée d'électricité et de chaleur par un moteur à combustion interne à pistons conventionnel et de biochar, (activé et non-activé).

1.3 Objectifs du projet

L'objectif de ce projet est de mettre en place en laboratoire un procédé combiné de pyrolyse oxydante et de traitement des gaz à petite échelle, pour en évaluer les performances. Par ailleurs, le but est de finaliser le modèle de simulation numérique et le mettre à contribution pour l'optimisation des paramètres de réglage du réacteur combiné (Pyrolyse oxydante et traitement successif du gaz de synthèse). L'originalité de l'approche réside d'une part dans la mise en œuvre d'une pyrolyse oxydante, utilisée en pratique dans le cadre de la gazéification (Ex : système NOTAR de Xylowatt). D'autre part et principalement, elle consiste à utiliser le biochar produit par la pyrolyse pour filtrer dans un autre réacteur (que celui de la pyrolyse) les gaz de synthèse générés par cette même pyrolyse et cela en continu. Le traitement des gaz de synthèse par le biochar, après injection de vapeur d'eau pour en adapter la composition, devrait, selon la littérature, modifier la structure microscopique du biochar de manière similaire à l'activation du charbon.

Les résultats attendus sont d'une part un gaz de synthèse suffisamment pauvre en goudrons pour être directement utilisé dans un moteur à combustion interne à pistons conventionnel pour produire de l'électricité et de la chaleur et ainsi fournir une contribution énergétique basées sur les composants volatiles de la biomasse. D'autre part, est attendue l'obtention de biochar non-activé (en quantité importante) et activé (en quantité réduite) pour différentes destinations énergétiques et non-énergétiques.



2 Description des installations

Le système est composé d'un ensemble de deux réacteurs comme illustré à la **Figure 1**. Le premier réacteur est destiné à la pyrolyse oxydante. Il est doté d'une alimentation contrôlée en air et d'une instrumentation complète incluant un système d'acquisition de données. Le second réacteur est destiné au traitement du gaz de synthèse issu de la pyrolyse oxydante au moyen d'une partie du biochar produit par cette dernière. Ce second réacteur est doté d'une part d'un système d'injection d'air, permettant d'effectuer une oxydation partielle du gaz de synthèse afin de régler sa température de fonctionnement. D'autre part, il est muni d'un système d'injection de vapeur d'eau pour ajuster la composition du gaz de synthèse. L'ensemble des deux réacteurs est complété par un dispositif de combustion du gaz de synthèse dans le but de le neutraliser avant son rejet à l'atmosphère, en raison de son inflammabilité et de sa toxicité. L'ensemble est équipé avec tous les organes et dispositifs nécessaires à la sécurité des usagers et des locaux. Le premier réacteur, siège de la pyrolyse oxydante, produit le gaz de synthèse et le biochar (non-activé). L'activation du biochar est réalisée dans le second réacteur destiné au traitement du gaz de synthèse pour en réduire sa teneur en goudrons. Ce deuxième réacteur est rempli avec du biochar produit par le premier réacteur. Le couplage entre les deux réacteurs en fonctionnement continu permet de réduire la consommation énergétique nécessaire à l'activation du biochar. En pratique, le solde pourrait être utilisé pour couvrir d'autres besoins de chauffage, de bâtiments ou de procédés, comme du séchage par exemple. Le système dispose d'un bypass qui permet d'isoler le second réacteur lors de la mise en route du premier. Cette architecture de système en deux réacteurs distincts a été choisie afin de permettre de séparer les phénomènes mis en jeu et de pouvoir les caractériser en détail. En contrepartie, elle a le désavantage d'accroître les surfaces d'échange de chaleur, ce qui est préjudiciable au maintien de la plus haute température possible. Afin de contrecarrer au mieux cet effet, les conduites de raccordement des deux réacteurs sont chauffées électriquement en plus d'être isolées. Le dispositif est doté de points de prélèvement de gaz de synthèse à la sortie de chacun des deux réacteurs afin de raccorder alternativement le circuit d'échantillonnage de mesure des gaz permanents (CO_2 ; CO ; CH_4 ; H_2 ; O_2) et de ceux condensables (goudrons et H_2O).

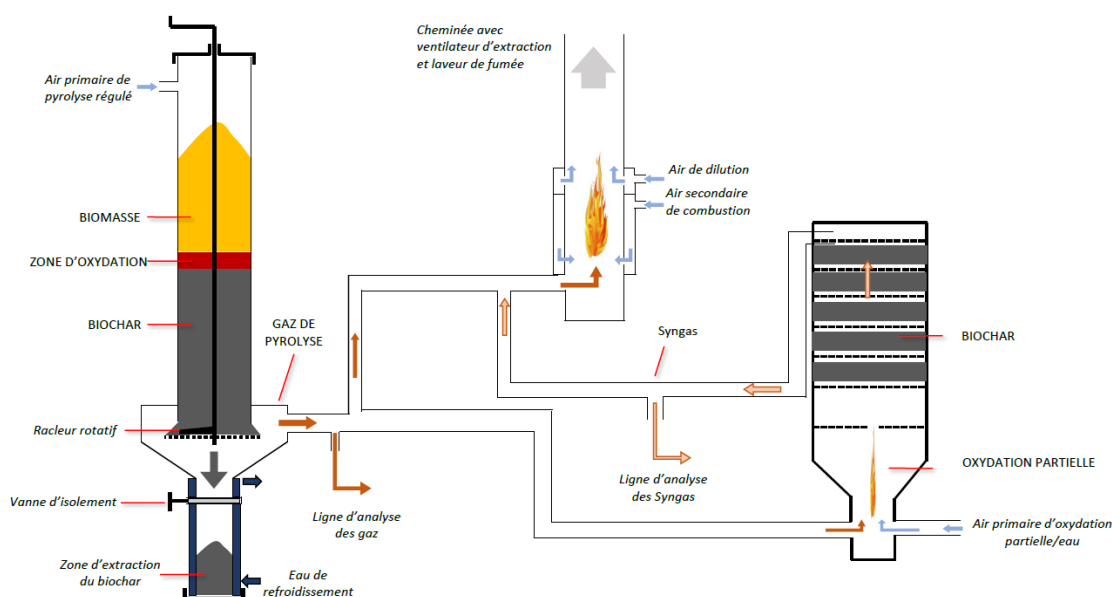
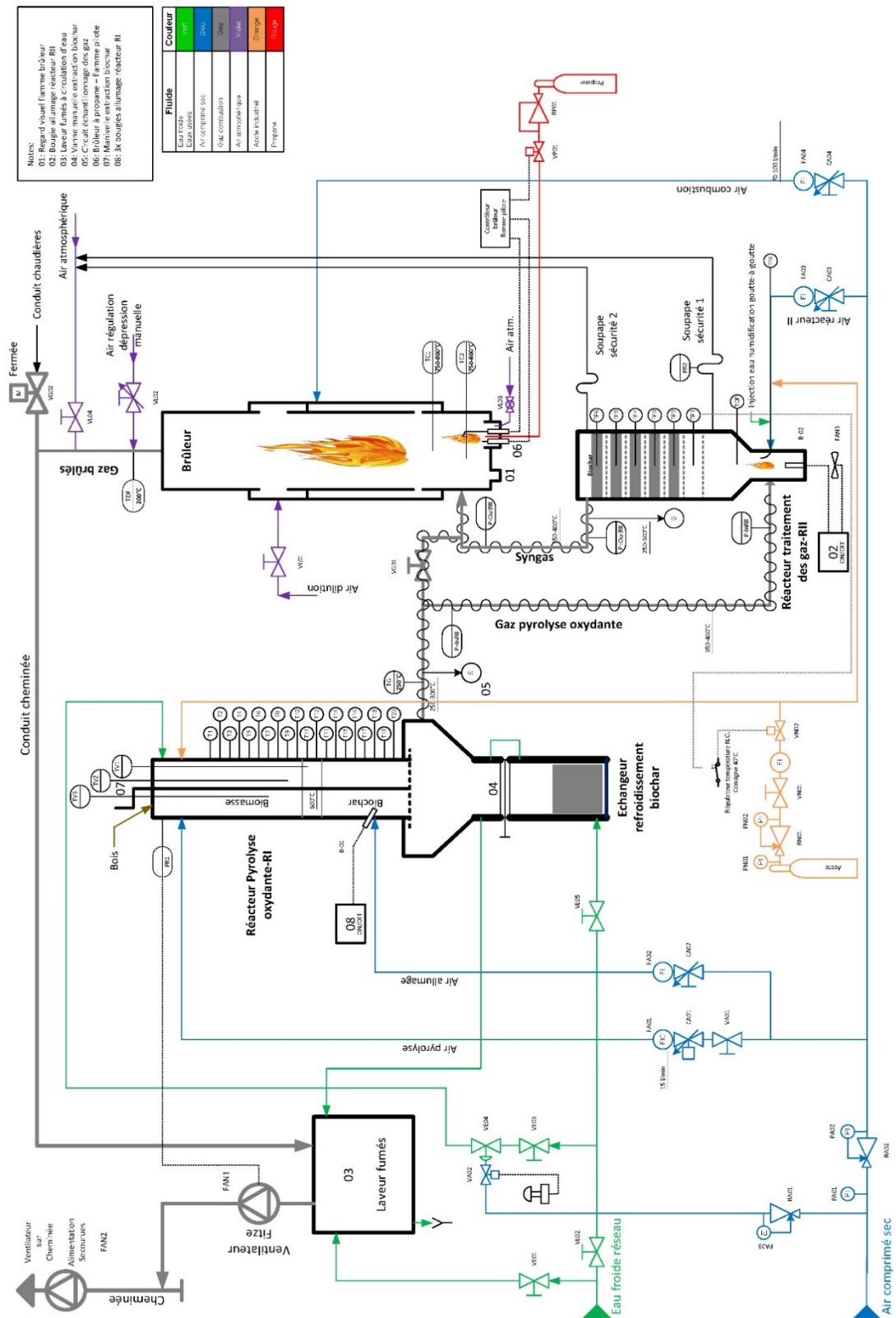


Figure 1: Système combiné de pyrolyse oxydante et de traitement des gaz de synthèse



PID – Installation Pyroxy / 16.11.2022

Figure 2: Installation complète avec instrumentation



3 Procédure et méthode

3.1 Dispositifs expérimentaux

La première étape du projet a consisté en la réalisation du réacteur de pyrolyse oxydante pour la production de biochar et de gaz de synthèse, incluant un circuit d'échantillonnage du gaz de synthèse, un dispositif d'extraction du biochar et un brûleur pour la destruction du gaz de synthèse². Dans une seconde étape, un réacteur séparé de traitement des gaz de synthèse a été rajouté à l'installation. Cette dernière, complètement instrumentée et dotée des éléments de sécurité nécessaires est représentée à la **Figure 2**.

3.1.1 Réacteurs de la pyrolyse oxydante et de traitement des gaz

Le réacteur de pyrolyse oxydante est basé sur un tube en acier de 180 mm de diamètre, de 800 mm de longueur et de 3 mm d'épaisseur. Le réacteur de traitement des gaz est formé d'une part d'une cavité en béton-bois destinée à l'adjonction d'eau pour la correction de la composition des gaz de pyrolyse et d'air pour ajuster la température par oxydation partielle. Il comprend d'autre part un jeu de 6 paniers destinés à accueillir du biochar. Le tout est confiné dans un manteau en acier fortement isolé thermiquement. Le système est équipé d'un brûleur pour oxyder les gaz de synthèse avant leur rejet à l'atmosphère via une cheminée. La **Figure 3** montre le réacteur de pyrolyse oxydante (a) avec le réacteur de traitement des gaz de pyrolyse oxydante (b), ainsi que les conduites de raccordement chauffées et isolées. Ces dernières sont chauffées électriquement à une température de 350 à 400°C pour éviter un refroidissement excessif et la condensation d'une partie des goudrons. Pour assurer la sécurité des opérateurs en raison de la haute inflammabilité et de la toxicité du gaz de synthèse et du matériel, une analyse détaillée des risques liés au fonctionnement des deux réacteurs a été réalisée en collaboration avec les responsables internes de la sécurité et un ingénieur externe de sécurité.

3.1.2 Mesure des températures

Afin de permettre de mesurer la température à l'intérieur des deux réacteurs, ces derniers sont équipés de thermocouples de types K (voir **Figure 2**). Le réacteur de pyrolyse oxydante est muni de sondes pour mesurer la température de surface sur toute sa hauteur ainsi que de 3 sondes plongeant à l'intérieur du substrat traité. Elles permettent de localiser et fixer la zone de réaction ainsi que d'en caractériser le niveau de température en fonction de l'apport d'air d'oxydation. Le réacteur de traitement des gaz de synthèse est doté d'une part d'une sonde localisée dans la zone d'oxydation partielle du gaz de synthèse afin d'en ajuster la température. D'autre part une sonde est positionnée sous le premier panier contenant du biochar dans le but de pouvoir contrôler les conditions de température avant le premier contact entre les gaz de synthèse et le biochar. Finalement, les cinq paniers sont dotés chacun d'une sonde afin de déterminer la température à l'intérieur des couches superposées de biochar.

3.1.3 Régulation des débits d'air

L'air de pyrolyse oxydante est introduit en haut du premier réacteur en générant une dépression au moyen d'un ventilateur de tirage placé à la sortie de l'installation. Il est géré par un contrôleur de débit de type Mass-StreamTM, D-6300/FS de Bronkhost. L'air complémentaire nécessaire au démarrage de la pyrolyse oxydante, au niveau du premier réacteur, et celui pour l'oxydation partielle des gaz de pyrolyse oxydante, au niveau de deuxième réacteur, est contrôlé manuellement au moyen de

² Compte tenu de l'inflammabilité et de la toxicité de certains composants et l'impossibilité de valoriser le gaz de synthèse dans les conditions de laboratoire.



débitmètres à flotteur (**Figure 2**). L'alimentation se fait par l'intermédiaire du réseau d'air comprimé du laboratoire.



a)



b)

Figure 3 : Réacteur de pyrolyse oxydante avec le brûleur des gaz de synthèse (a), réacteur de traitement des gaz de pyrolyse oxydante (b) et conduites de liaison.

3.1.4 Mesure de la pression

Le contrôle du tirage de l'ensemble du système est réalisé au moyen d'un manomètre positionné à l'entrée du réacteur de pyrolyse oxydante. Par ailleurs, deux capteurs de pression différentielle sont installés sur les conduites d'entrée et respectivement de sortie du réacteur de traitement des gaz de pyrolyse. Ils sont raccordés à chaque extrémité afin d'estimer les débits entrant et sortant sur la base de la caractéristique d'écoulement des conduites (**Figure 2**).

3.1.5 Système d'acquisition de données

Les sondes de température des deux réacteurs ainsi que le contrôleur de débit d'air et le manomètre du premier réacteur sont reliés à un système d'acquisition de données Agilent 34970 et au logiciel de contrôle et de représentation LabVIEW. Ce dernier permet de visualiser les grandeurs mesurées (températures et pression de tirage) et contrôler le débit d'air de pyrolyse oxydante.



3.1.6 Extraction du biochar

L'extraction du biochar s'effectue manuellement à l'aide d'une manivelle reliée par une tige à un racleur disposé sur la grille de retenue de la charge, située en bas du premier réacteur. Le biochar raclé tombe dans un conteneur refroidi par l'eau du réseau pour son extinction et extraction ultérieure. Une vanne d'isolement qui sépare le réacteur et le conteneur de biochar assure l'étanchéité du système lorsque le conteneur est vidé pour pesage et analyse. La **Figure 4** montre la vanne d'isolation, le conteneur de biochar ainsi que la tige du dispositif d'extraction du biochar.

Dans le cas du second réacteur, l'extraction pour pesage et caractérisation est réalisée une fois la pyrolyse oxydante terminée et après refroidissement du système par injection d'azote jusqu'à une température d'environ 50°C au niveau des paniers. Elle s'effectue par ouverture du réacteur.

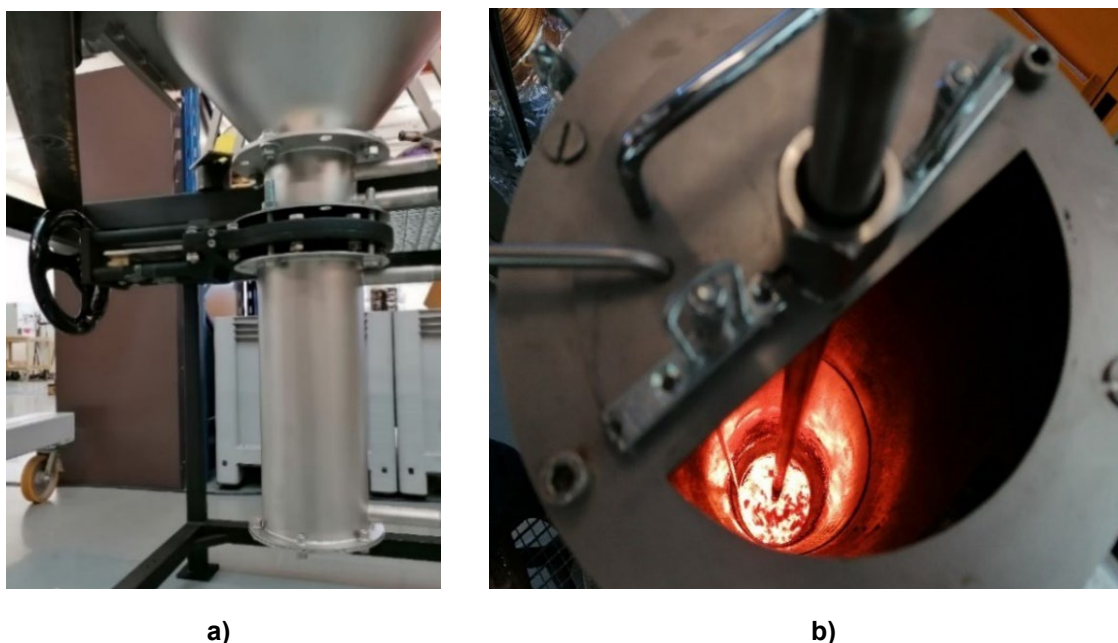


Figure 4 : Système d'extraction de biochar : sas avec vanne d'isolement (a) ; tige du dispositif de racleur traversant le réacteur (b).

3.1.7 Circuit d'échantillonnage des goudrons et des gaz incondensables

Un circuit d'échantillonnage a été mis en place pour déterminer les concentrations en goudrons, en eau et en gaz incondensables. Il comprend une sonde de prélèvement chauffée à une température située entre 250 et 300°C. Les gaz passent ensuite dans une succession de deux bouteilles vides immergées dans un bain d'eau glycolée à -15°C. Ils passent ensuite dans une série de bouteilles remplies d'eau (agissant comme solvant) immergées dans un second bain maintenu à une température d'environ -5°C (**Figure 5**). L'essentiel de l'eau et des goudrons ayant condensé dans le circuit d'échantillonnage, le solde des gaz est envoyé vers un analyseur de gaz de synthèse via une conduite chauffée à une température d'environ 180°C. Le circuit d'échantillonnage peut être alternativement raccordé à la sortie du réacteur de pyrolyse oxydante ou celle du réacteur de traitement des gaz de synthèse. La quantité d'eau générée par la pyrolyse durant un essai est déterminée par différence entre celle collectée à la fin et celle mise initialement dans les bouteilles pour agir comme solvant pour les goudrons. La masse des goudrons est déterminée après évaporation complète de l'eau par évaporation à pression



contrôlée. Pour prendre en compte tous les goudrons produits durant un essai, l'ensemble des conduites et des bouteilles sont pesées avant (à l'état propre) et après l'essai. La différence obtenue est rajoutée à la masse de goudrons obtenue après évaporation du solvant.

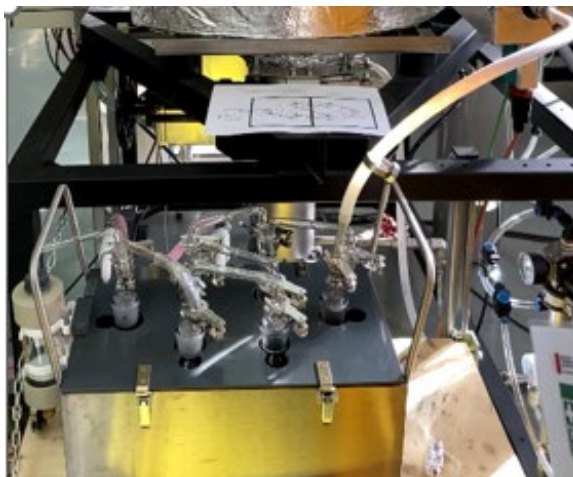


Figure 5: Circuit d'échantillonnage des gaz permanents et des goudrons

3.1.8 Mesure des gaz incondensables

Les concentrations en CO, CO₂, CH₄, H₂ et O₂ sont mesurées en continu au moyen d'un analyseur MRU Vario Luxx SYNGAS – Portable Analyzer (voir **Figure 6**).



Figure 6 : Analyseur de gaz permanent MRU Vario Luxx SYNGAS – Portable Analyzer

3.2 Substrats de biomasse lignocellulosique

Dans un premier temps, les essais ont été réalisés sur le réacteur de pyrolyse oxydante avec des plaquettes forestières et des granulés de bois standard. Par la suite et afin de déterminer le potentiel d'exploitation de la biomasse provenant des résidus de digestion anaérobie, ces derniers ont été testés sous forme de substrats broyés et de granulés (voir **Tableau 1**). Pour le fonctionnement du réacteur de pyrolyse oxydante combiné à celui de traitement du gaz de synthèse, seules les plaquettes forestières ont pu être testées.



Substrat	Dénomination	Origine & caractéristiques
Plaquettes forestières de type P16F05	WC-P16F05	Bois de forêt, de plantation et autres bois vierges, sous forme de plaquettes selon EN ISO 17225-4: • P16 – fraction principale : 3,15 à 16 mm ; fraction grossière > 31,5 mm : ≤ 6%-masse ; longueur max. des particules : ≤ 45 mm ; • F05 – fraction fine < 3,15 mm : ≤ 5%-masse.
Résidus de digestion anaérobie	Grinded-DR	Résidus de digestion anaérobie contenant une fraction de matières plastiques, broyés
Granulés de bois	Pellets-Wood	Bois de forêt, de plantation et autres bois vierges sous forme des granulés de bois conforme à EN 14961-2, ENPlus-A1.
Granulés des résidus de digestion anaérobie	Pellets-DR	Résidus de digestion anaérobie contenant une fraction de matières plastiques, broyés et transformés en granulés

Tableau 1: Types de biomasse lignocellulosique testés

3.3 Fonctionnement du système combiné

Après introduction d'une charge complète de biomasse lignocellulosique dans le réacteur de pyrolyse oxydante, le démarrage est réalisé au moyen d'air chaud injecté au niveau du thermocouple T20 (voir **Figure 2**). Une fois la température d'environ 300°C atteinte, après environ 20 minutes, l'air de pyrolyse oxydante est introduit à température ambiante au sommet du réacteur. Lorsque le fonctionnement est stable, le biochar est régulièrement extrait en bas du réacteur pour maintenir la zone de réaction approximativement à la même position. Jusqu'à l'obtention de conditions de fonctionnement stable, les gaz de pyrolyse sont envoyés directement au brûleur destiné à leur destruction au travers du bypass prévu entre les deux réacteurs. Le brûleur est alimenté en parallèle au propane afin d'assurer en permanence une température de l'ordre de 750 et 850°C.

Après l'obtention d'un fonctionnement stable au niveau de premier réacteur, le gaz de pyrolyse oxydante est envoyé vers le deuxième réacteur destiné à son traitement. Au niveau de ce dernier, le gaz de pyrolyse oxydante passe tout d'abord par la zone d'oxydation partielle, où de l'air et de l'eau sont injectés. Ils traversent ensuite une succession de cinq paniers contenant du biochar, où ils vont réagir chimiquement avec le carbone contenu. Finalement, ils sont conduits dans le brûleur pour y être détruits.

3.4 Analyse de la biomasse et des produits de pyrolyse oxydante

3.4.1 Biomasse lignocellulosique

La biomasse lignocellulosique a été analysée et caractérisée selon le protocole standard d'analyse, s'appuyant sur les normes en vigueur, pratiqué dans le laboratoire de l'Institut des Énergie de la HEIG-VD. (Voir l'annexe A pour plus d'informations sur les normes et méthodes utilisées)



3.4.2 Biochar

Le biochar produit par pyrolyse oxydante et celui utilisé dans le réacteur de traitement du gaz de synthèse sont, d'une part, caractérisés au moyen de la même méthode d'analyse que celle utilisée pour la caractérisation de la biomasse. D'autre part, la surface spécifique du biochar est mesurée par la méthode BET³. (Voir l'annexe A pour plus d'informations sur les normes et méthodes utilisées)

3.4.3 Goudrons

Les composants condensables (goudrons et eau) et les gaz incondensables sont séparés dans le circuit d'échantillonnage par extraction en utilisant de l'eau comme solvant (voir **Figure 7**). Les gaz de synthèse barbottent successivement au travers de 6 bouteilles. Les condensats sont séparés par distillation dans un évaporateur rotatif sous vide. Le résidu est ensuite pesé pour déterminer la teneur en goudrons du gaz de synthèse. La méthode utilisée pour la caractérisation des goudrons est décrite dans l'annexe B.

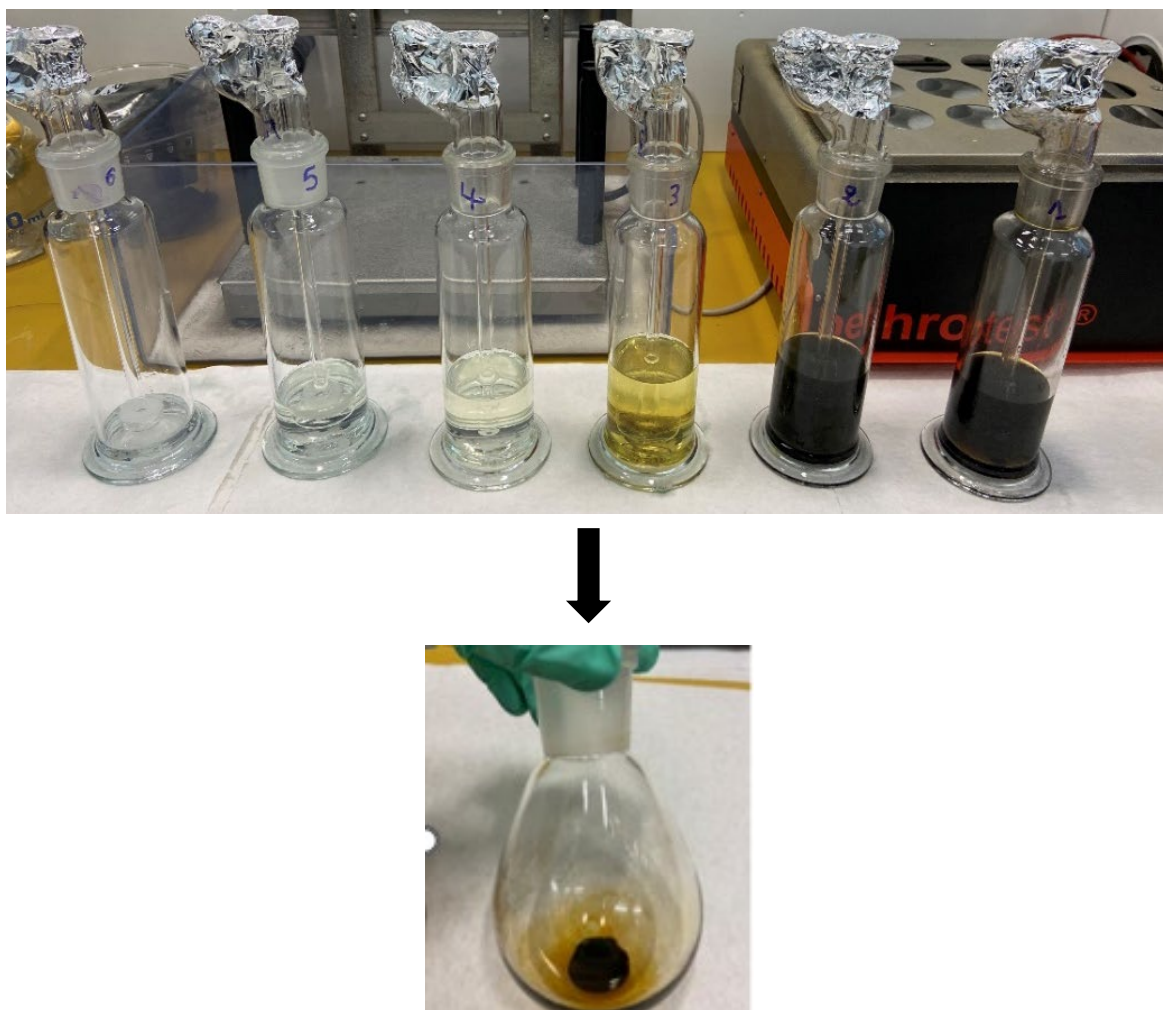


Figure 7 : Condensats récupérés avant et après évaporation du solvant (eau)

³ Basée sur la théorie de Brunauer, Emmett et Teller (BET)



3.4.4 Gaz incondensables

Les gaz incondensables (CO , CO_2 , CH_4 , H_2 , O_2) sont caractérisés en continu au moyen d'un analyseur connecté par une ligne chauffante (voir section 3.1.8) au circuit d'échantillonnage, à la sortie du dispositif de condensation des goudrons.

4 Résultats et commentaires

Ce chapitre comprend les résultats obtenus en plusieurs étapes : avec le réacteur de pyrolyse oxydante, d'une part, en combinaison avec le réacteur de traitement du gaz de synthèse, d'autre part, ainsi que ceux obtenus en parallèle avec un dispositif de plus petite taille. Ce dispositif a été mis en œuvre suite à un problème de déperdition excessive de chaleur rencontré sur le système principal. Ce dernier a été conçu afin de pouvoir étudier en détail les phénomènes physico-chimiques mises en jeu. Ceci a conduit à une architecture relativement éclatée du système permettant une large instrumentation des réacteurs et en particulier de celui de traitement du gaz de synthèse. En contrepartie, cela a entraîné un fort accroissement des surfaces de déperditions de chaleur qui s'est avéré problématique lors des essais du système combiné.

4.1 Réacteur de pyrolyse oxydante

Les résultats rapportés dans cette section ont été obtenus au moyen du réacteur de pyrolyse oxydante sur la base de plaquettes forestières et de granulés produit à partir de résidus de digestion anaérobie. Les résultats pour les autres substrats sont présentés en annexe C.

4.1.1 Caractéristiques des substrats de biomasse lignocellulosique

Les résultats des analyses approximative et ultime (CHNO^4) des plaquettes forestières et des granulés de résidus de digestion anaérobie utilisés, leur humidité relative ainsi que le pouvoir calorifique supérieur sont donnés dans le **Tableau 2**. Les deux substrats se distinguent principalement au niveau de la teneur en cendres, avec 0.5 % pour les plaquettes forestières et 21.7 % pour les résidus de digestion, et de la teneur en matière volatile, avec 82.9 % pour les plaquettes forestières et 57.1 % pour les résidus de digestion. La plus grande quantité de matière organique pour les plaquettes forestières se retrouve aussi au niveau des concentrations en carbone et hydrogène et se reflète au niveau d'un pouvoir énergétique inférieur plus faible d'environ 21% pour les granulés de résidus de digestion anaérobie.



	WC-P16F05	Pellets-DR
Humidité relative (%)	8,16	7,8
Analyse approximative (% sec)		
Cendres à (815°C)	0,5	21,7
Matière volatile (MV)	82,9	57,1
Carbone fixe (CF)	16,6	21,2
Analyse ultime (% sec)		
Carbone (C)	50,5	41,2
Hydrogène (H)	5,8	4,4
Azote (N)	0,2	1,3
Oxygène (O), par différence	41,9	34,3
Pouvoir énergétique inférieur en MJ/kg sec	19,09	15,15

Tableau 2: Analyse des plaquettes forestières et des résidus de digestion anaérobie

4.1.2 Besoin en air

Pour fournir l'énergie nécessaire au processus, la pyrolyse oxydante consomme 10,2% et 15,3% de l'air nécessaire à la combustion stœchiométrique des plaquettes forestières et respectivement des granulés de résidus de digestion anaérobie (**Tableau 3**).

	WC-P16F05	Pellets-DR
Débit massique d'air spécifique (kg/m ² ·s)	0,012	0,012
Consommation de biomasse (kg/m ² ·s) (sec)	0,020	0,017
Ratio Air/biomasse (sec)	0,615	0,734
Air/biomasse stœchiométrie (sec)	6,016	4,789
Ratio d'équivalence (sec)	0,102	0,153

Tableau 3: Ratio d'équivalence pour les plaquettes forestières et les résidus de digestion anaérobie

4.1.3 Température de fonctionnement

L'évolution des températures à l'intérieur du réacteur de pyrolyse oxydante mesurées au moyen de sondes verticales (TV1, TV2, TV3) (voir **Figure 2**) sont représentées dans les **Figure 8** et **Figure 9** pour les granulés de résidus de digestion anaérobie et les plaquettes forestières, respectivement. Un débit d'air de 15 l/min permet d'atteindre pour les deux substrats une température maximale de 600°C dans la zone de réaction. Elle est toutefois plus rapidement atteinte dans le cas des plaquettes forestières en raison d'une plus grande vitesse de propagation de la zone de réaction.

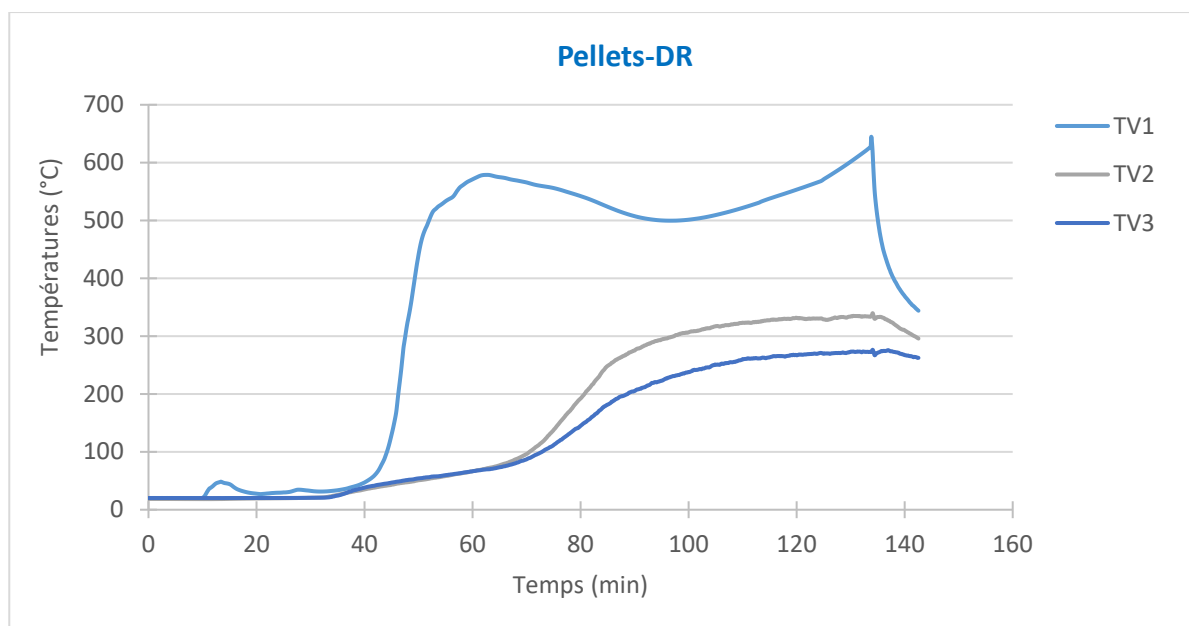


Figure 8: Evolution de température dans le réacteur de pyrolyse oxydante avec un débit d'air de 15 l/min et un débit massique des granulés de résidus de digestion anaérobie de 1,26 kg/h

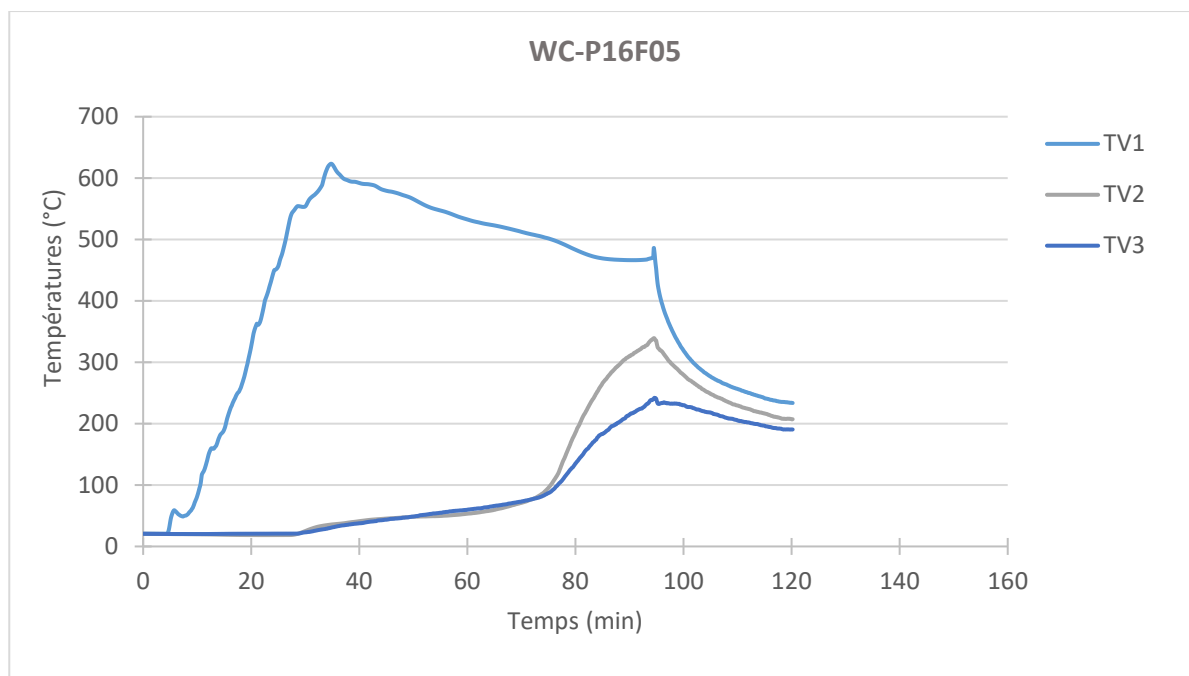


Figure 9: Evolution de température dans le réacteur de pyrolyse oxydante avec un débit d'air de 15 l/min et un débit massique des plaquettes forestières de 1,86 kg/h



4.1.4 Produits de la pyrolyse oxydante

La **Figure 10** représente de manière comparative pour les granulés de résidus de digestion anaérobie et pour les plaquettes forestières les produits globaux de la pyrolyse oxydante par rapport à la biomasse entrante. Afin de s'affranchir de l'influence de teneurs en eau et en cendres très différentes entre les deux substrats, les résultats sont rapportés à la masse sèche, exempte de cendres. Avec une proportion comprise entre 83 et 120%, l'essentiel de la biomasse est converti en gaz permanents. La production de biochar représente 25 à 28 % et celle de goudrons 6 à 10 % de la masse de biomasse entrante. Cette dernière représente nettement moins que celles d'environ 30% générée par la pyrolyse conventionnelle (Elias Daouk, 2015). Finalement la proportion d'eau issue de la pyrolyse s'élève de 15 à 19%. Les granulés de résidus de digestion anaérobie produisent tendanciellement plus de gaz permanents et de goudrons et légèrement moins de biochar.

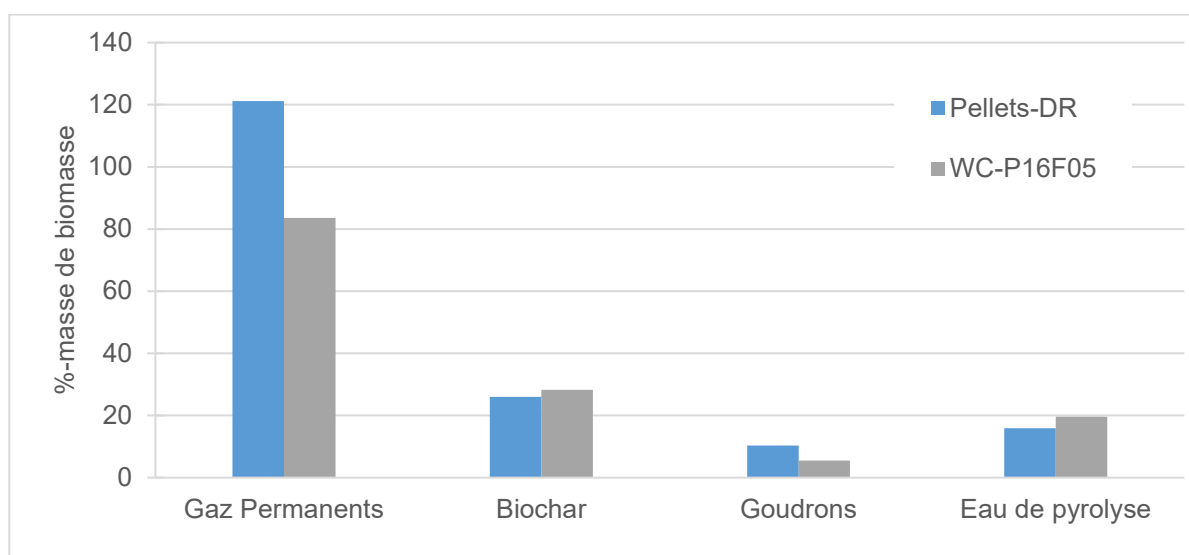


Figure 10: Répartition des produits de la pyrolyse oxydante pour un débit d'air de 15 l/min

4.1.5 Gaz permanents

La **Figure 11** représente la répartition des principaux composants des gaz permanents issu de la pyrolyse oxydante. Indépendamment du substrat, ils se composent principalement de dioxyde de carbone (CO_2), de 57 à 76%, et de monoxyde de carbone (CO), de 18 à 28%. Comparativement aux plaquettes forestières, les résidus de digestion anaérobie génèrent davantage de CO_2 et moins de CO . Les proportions d'hydrogène (H_2) et de méthane (CH_4) sont comparables.

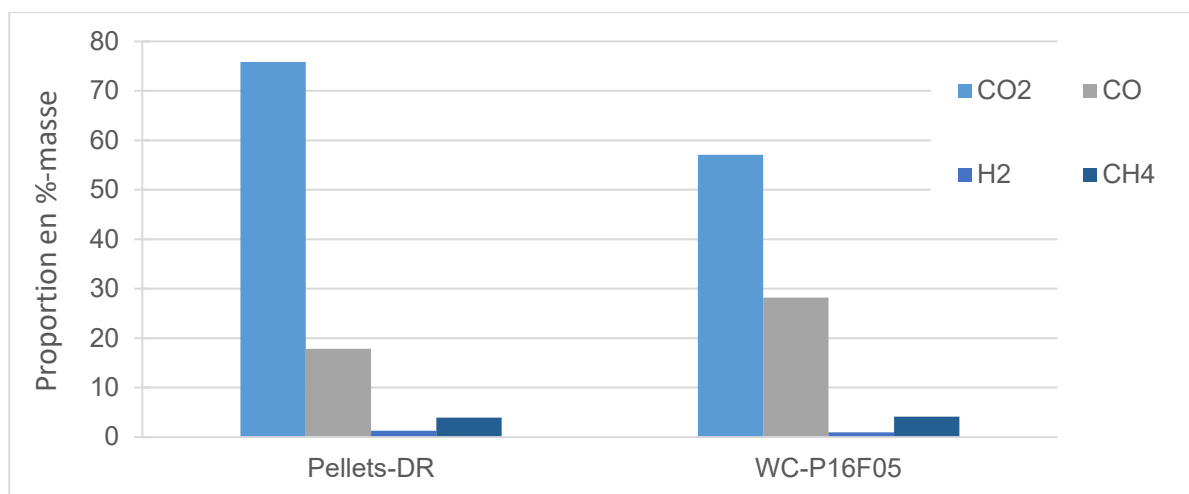


Figure 11: Proportion des gaz permanents pour les plaquettes forestières et les granulés des résidus de digestion anaérobie avec un débit d'air de 15 l/min.

4.1.6 Condensats

La concentration des goudrons dans le gaz de synthèse est un paramètre important en vue de sa valorisation dans un moteur à combustion interne. La pyrolyse oxydante de plaquettes forestières et de granulés de résidus de digestion anaérobie génère respectivement 40 et 30 g/Nm³ de goudrons. Comparativement aux granulés de résidus de digestion anaérobie, les plaquettes forestières génèrent environ trois fois plus d'eau (**Figure 12**).

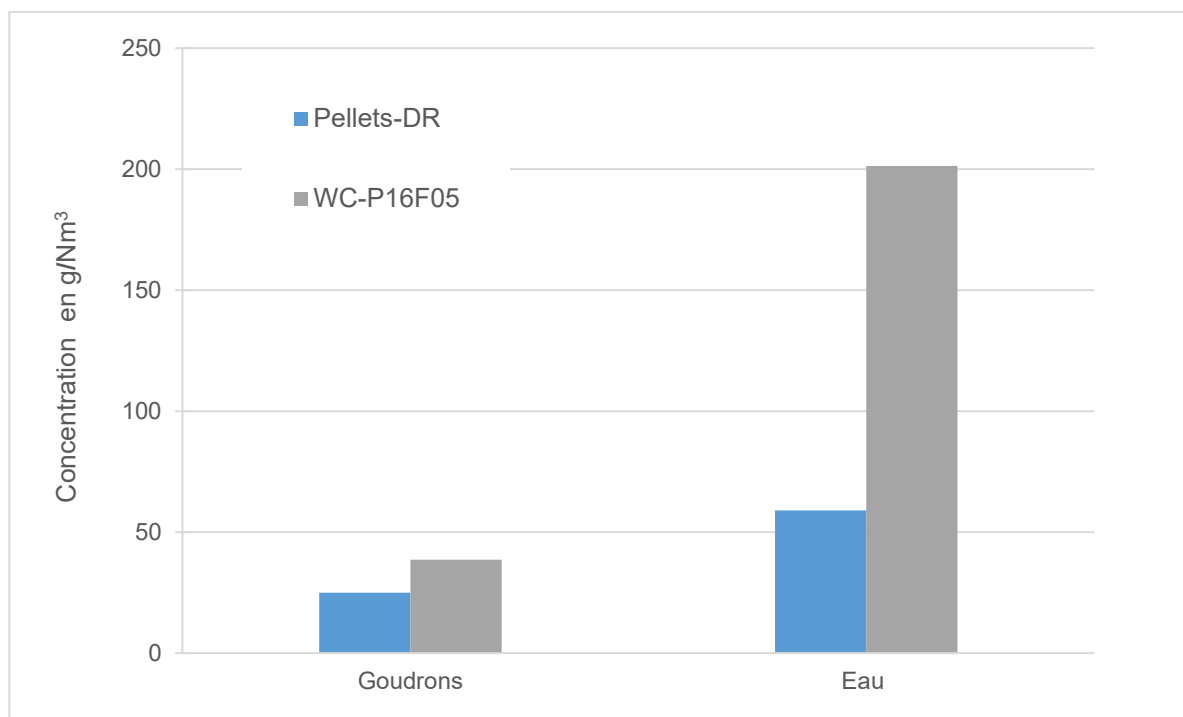


Figure 12 – Concentration en goudrons et en eau dans le gaz de la pyrolyse oxydante pour les plaquettes forestières et les granulés de résidus de digestion anaérobie avec un débit d'air de 15 l/min.



4.1.7 Caractéristiques du biochar

Le biochar a été analysé d'une part de la même manière que la matière de base et les résultats sont présentés dans le **Tableau 4**. Le biochar produit à partir de résidus de digestion anaérobie est caractérisé par une teneur en cendres beaucoup plus élevée (54,2%) que celui issu de plaquettes forestières (2,5%). Ceci se répercute au travers d'une teneur en carbone (48,3% contre 87,8%) et d'un pouvoir énergétique inférieur (13,1 contre 31,93) nettement plus faible pour le premier.

	Pellets-DR	WC-P16F05
Humidité relative en %	2,5	3,2
Analyse approximative (% sec)		
Cendres (815°C)	54,2	2,5
MV	8,1	13,2
CF	37,7	84,3
Analyse ultime (% , sec)		
C	48,3	87,8
H	0,4	1,8
N	0,9	0,3
O (par différence)	8,2	6,3
Pouvoir énergétique inférieur en MJ/kg sec	13,01	31,93

Tableau 4: Analyse ultime et approximative de biochar issu de la pyrolyse oxydante

D'autre part, les teneurs en métaux lourds, déterminées par spectrométrie EDXRF⁵, sont données pour les deux substrats dans le **Tableau 5**. A l'exception du chrome pour les résidus de digestion anaérobie, elles sont conformes à celles limites considérées dans le cadre de la certification européenne du biochar (EBC⁶). Cette dernière distingue les différentes applications : alimentation, agriculture biologique, agriculture conventionnelle, application urbaine ou encore matérielle.

Métaux (g/t)	Classe de certification EBC			Substrat	
	Feed / Feed Plus	AgroOrganic	Agro / Urban / Consumer Materials	Pellet-DR	WC-P16F05
Plomb	10	45	120	28,2	nd
Cadmium	0,8	0,7	1,5	nd	nd
Cuivre	70	70	100	61,2	5,93
Nickel	25	25	50	39,7	6,06
Mercure	0,1	0,4	1	nd	nd
Zinc	200	200	400	151	5,35
Chrome	70	70	90	103	9,76
Arsenic	2	13	13	nd	0,03
Argent	Pas de valeur limite, mais déclaration demandée			nd : non détecté	

Tableau 5: Teneur en métaux lourds du biochar issu de la pyrolyse oxydante

⁵ Energy Dispersive X-ray Fluorescence

⁶ European Biochar Certificate Guideline, Version 10.3E of April 2023: <https://www.european-biochar.org/en/>



Finalement, la teneur en nutriments a été déterminée par spectrométrie EDXRF et les résultats sont donnés dans le **Tableau 6**. Hormis le soufre et le sodium (qui n'a pas pu être détecté), la concentration en nutriment est très nettement plus élevée dans le biochar issu des résidus de digestion anaérobie, ce qui peut potentiellement le rendre particulièrement intéressant en agriculture. Ces fortes teneurs en nutriments corréleront avec la forte teneur en cendres de plus de 50% constatée (voir **Tableau 4**).

Nutriment (g/t)	Pellet-DR	WC-P16F05
Calcium	109'044	6'392
Fer	12'491	104
Magnésium	9'597	nd
Phosphore	18'103	821
Potassium	25'825	4'217
Sodium	nd	nd
Silicium	78'639	603
Soufre	0,17	45

Tableau 6: Teneur en nutriments du biochar produit par pyrolyse oxydante

L'EBC prescrit aussi des concentrations limites d'hydrocarbures polycycliques aromatiques dans le biochar. Les valeurs correspondent à celles appliquées pour le compost et les digestats de méthanisation. Les concentrations dans le biochar produit n'ont toutefois pas été mesurées dans le cadre de ce projet exploratoire en raison de la complexité de la méthode de détermination.

4.2 Système combiné avec traitement du gaz de synthèse

Le réacteur de pyrolyse oxydante a été modifié pour permettre le couplage avec celui de traitement du gaz de synthèse. Une série d'essais préliminaires avec des plaquettes forestières ont été conduits afin de s'assurer que cela n'avait pas d'influence sur le fonctionnement du premier réacteur ainsi que dans le but de vérifier l'étanchéité du second réacteur et d'évaluer le niveau de température atteignable dans celui-ci au moyen de l'oxydation partielle, en l'absence de biochar.

4.2.1 Essais préliminaires du réacteur de traitement du gaz de synthèse

L'injection d'air dans le second réacteur permet au travers d'une oxydation partielle du gaz de synthèse de contrôler la température au niveau des paniers contenant le biochar : La **Figure 13** illustre l'évolution de la température dans la zone d'oxydation partielle (TOP) ainsi qu'avant le premier panier (TP1) et au milieu des 5 paniers (TP2 à TP6), en l'absence de biochar. Le débit maximum d'air de 20 l/min conduit à une température de l'ordre de 750°C dans la zone d'oxydation partielle. La température au niveau des paniers diminue ensuite progressivement de 650 à 500°C, en fonction de l'éloignement par rapport à la zone d'oxydation partielle. En raison de la grande inertie thermique du béton-bois formant la zone d'oxydation partielle, une relativement longue durée est nécessaire à la stabilisation des températures. Le débit d'air d'oxydation partielle impacte la composition des gaz permanents (**Figure 14**). Un accroissement du débit d'air de 18,3 à 20,0 l/min résulte en une forte diminution de la concentration en gaz combustibles : CO, CH₄ et H₂. Le fait que la concentration en CO₂ ne change pas significativement tend à indiquer que le CH₄ et le H₂ sont transformés en CO et surtout en H₂O, dont la concentration n'est pas mesurée.

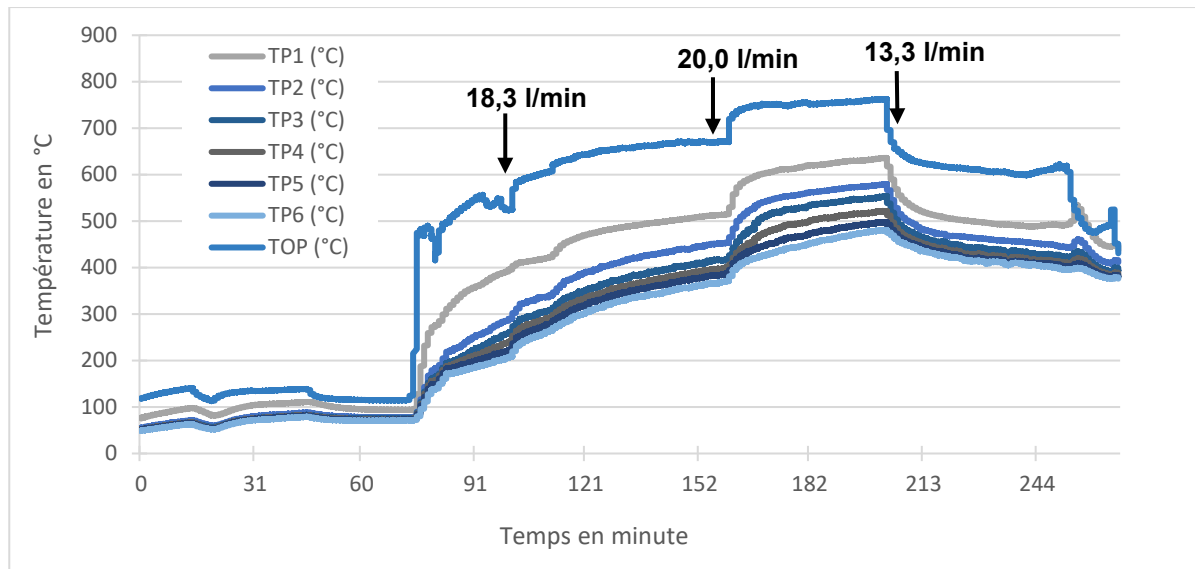


Figure 13: Evolution de la température dans le second réacteur

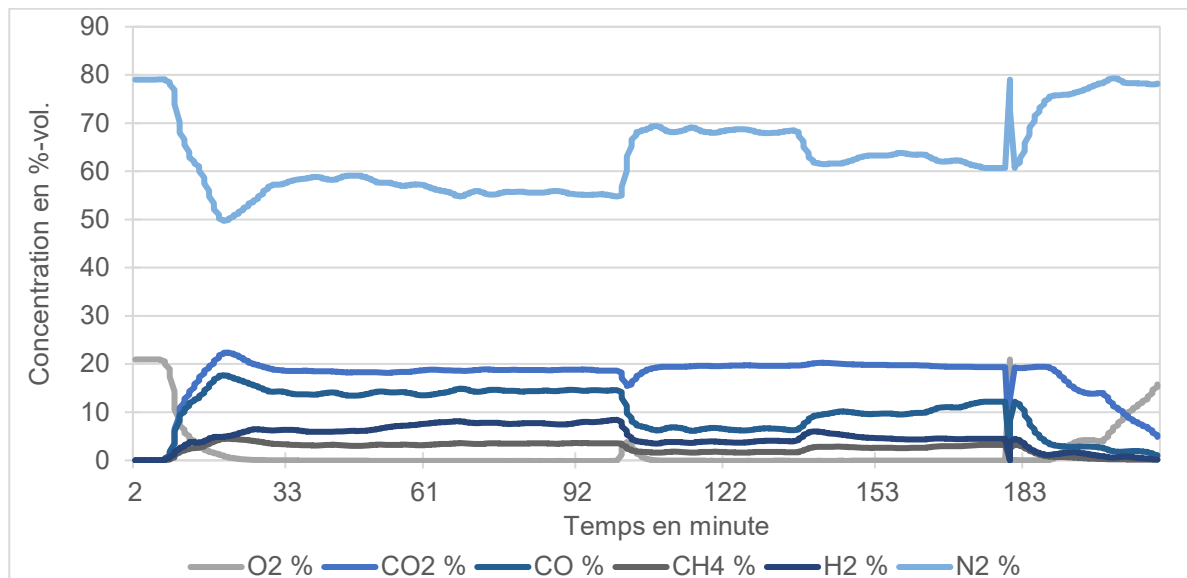


Figure 14: Composition des gaz permanents à la sortie du second réacteur

4.2.2 Problèmes rencontrés

Deux problèmes majeurs en lien avec l'architecture du réacteur de traitement du gaz de synthèse ont été rencontrés : le premier au niveau de l'étanchéité de la bride de fermeture des deux parties formant le réacteur et le second en lien avec la perte excessive de chaleur entre le premier et le second réacteur. Lors de la mesure de référence du second réacteur, afin d'en déterminer l'influence sur la composition du gaz de synthèse en l'absence de biochar, la bride de fermeture du réacteur a subi une déformation excessive qui a conduit à une perte d'étanchéité. Plusieurs modifications ont été apportées mais n'ont pas permis d'obtenir une étanchéité suffisante pour exclure toute introduction incontrôlée d'air. Afin de



garantir l'étanchéité, les essais ont finalement été réalisés après soudage (électrique) des deux parties. A l'issue d'un essai, il était nécessaire de meuler la soudure pour ouvrir le réacteur et accéder au biochar. Cette manière de procéder a fortement limité le nombre d'essais réalisables. Pour cette raison, seul le comportement des plaquettes forestières (WC-P16F05), dont le traitement était mieux maîtrisé et pour lequel suffisamment de biochar produit par le réacteur de pyrolyse oxydante était disponible, a été étudié. Comme évoqué au début du chapitre 4, l'architecture du système combiné a été élaborée de manière à pouvoir étudier en détail les phénomènes mis en jeu par l'intermédiaire d'une large instrumentation, en particulier au niveau de la mesure des températures. Cela a contraint à rallonger le parcours du gaz de synthèse. En dépit des mesures prises pour isoler thermiquement le système et pour maintenir en température les conduites par des dispositifs électriques, les importantes surfaces générées ont conduit à un transfert de chaleur excessif qui a résulté en une relativement basse température de gaz de synthèse à l'entrée du second réacteur. Pour pallier à cela et s'approcher d'une température suffisante à l'entrée des paniers contenant le biochar, de l'ordre de 700 à 800°C selon la littérature (Feng Dongdong et al., 2018), il est nécessaire de réaliser une importante oxydation partielle du gaz de synthèse en injectant une quantité d'air plus élevée que celle nécessaire à la pyrolyse oxydante (20 l/min en comparaison de 15 l/min). Cela a pour conséquence de dénaturer le gaz de synthèse et, en particulier, d'en réduire fortement la teneur en goudrons. La faible teneur résiduelle en goudrons rend ainsi impossible une étude pertinente de l'effet du biochar sur celui-ci. Au-delà d'accroître les surfaces de contact avec l'air ambiant, la grande longueur de parcours du gaz de synthèse est à l'origine de pertes de charge importantes qui limitent la quantité d'air de pyrolyse oxydante admissible dans le système et, par-là, la température atteignable dans le premier réacteur.

4.2.3 Effet du réacteur de traitement du gaz de synthèse

Afin de pouvoir dissocier l'effet de l'action du biochar sur la composition du gaz de synthèse de celui du réacteur en lui-même et en particulier de l'oxydation partielle, trois essais détaillés ont été réalisés avec des plaquettes forestières (WC-P16F05) : un premier essai de référence pour produire du biochar par pyrolyse oxydante dans le premier réacteur et caractériser la composition du gaz de synthèse à la sortie de celui-ci ; un deuxième essai de référence pour déterminer la composition du gaz de synthèse à la sortie du second réacteur, en l'absence de biochar ; et finalement un troisième essai afin de caractériser la composition du gaz de synthèse à la sortie du second réacteur en présence de biochar issu de la pyrolyse oxydante et déterminer l'évolution de celui-ci. Durant ces essais, les réacteurs de pyrolyse oxydante et de traitement du gaz de synthèse étaient alimentés en air avec des débits de 15 l/min et respectivement 12 l/min. Le débit d'air d'oxydation partielle a été choisi relativement bas afin de limiter la dénaturation du gaz de synthèse. Il s'agit d'un compromis visant à atteindre une température de l'ordre de 500°C au niveau du premier panier de biochar, considérée comme minimale pour permettre une certaine interaction entre le gaz de synthèse et le biochar. Aucune injection d'eau n'a été effectuée. Chaque essai a duré 3 heures, avec un peu plus de 2 heures de fonctionnement du second réacteur. Cette durée limitée a pour origine l'impossibilité de recharger le réacteur de pyrolyse oxydante sans perturber de manière excessive son fonctionnement en raison d'infiltrations d'air au niveau des dispositifs d'alimentation en substrat et d'extraction du biochar. Comme l'illustre la **Figure 15**, cette durée n'est pas suffisante pour atteindre une stabilité de la température dans le réacteur de traitement du gaz de synthèse. Une température maximale de l'ordre de 640°C a pu être atteinte dans la zone d'oxydation partielle. Lors du passage au travers des paniers, la température des gaz de synthèse chute de 530 à 330°C.

L'effet du traitement du gaz de synthèse sur sa composition lors de son passage dans le second réacteur, en l'absence et en présence de biochar, est illustré dans la **Figure 16**. En l'absence de biochar, l'effet se limite à celui de l'oxydation partielle du gaz de synthèse. Cette dernière se déroulant à une relativement haute température de l'ordre de 640°C, elle agit positivement sur la teneur en goudrons en



réduisant fortement sa concentration. Cette réduction n'est toutefois pas suffisante pour abaisser la concentration en dessous de 1g/Nm^3 nécessaire pour permettre une valorisation dans un moteur à combustion interne. Par ailleurs, l'oxydation partielle a pour conséquence une perte de pouvoir énergétique au travers d'une réduction de près de 50% des concentrations de monoxyde de carbone (CO), méthane (CH_4) et hydrogène (H_2). En présence de biochar, la réduction de la concentration en goudrons est réduite à 50%. L'origine pourrait résider dans la perte de matière volatile du biochar situé dans les deux premiers paniers à relativement haute température de 29% et 17%, respectivement (voir **Tableau 7**). Les composants volatils résiduels du biochar issu de la pyrolyse oxydante étant les plus difficile à extraire, ils sont aussi les plus susceptibles de former des goudrons.

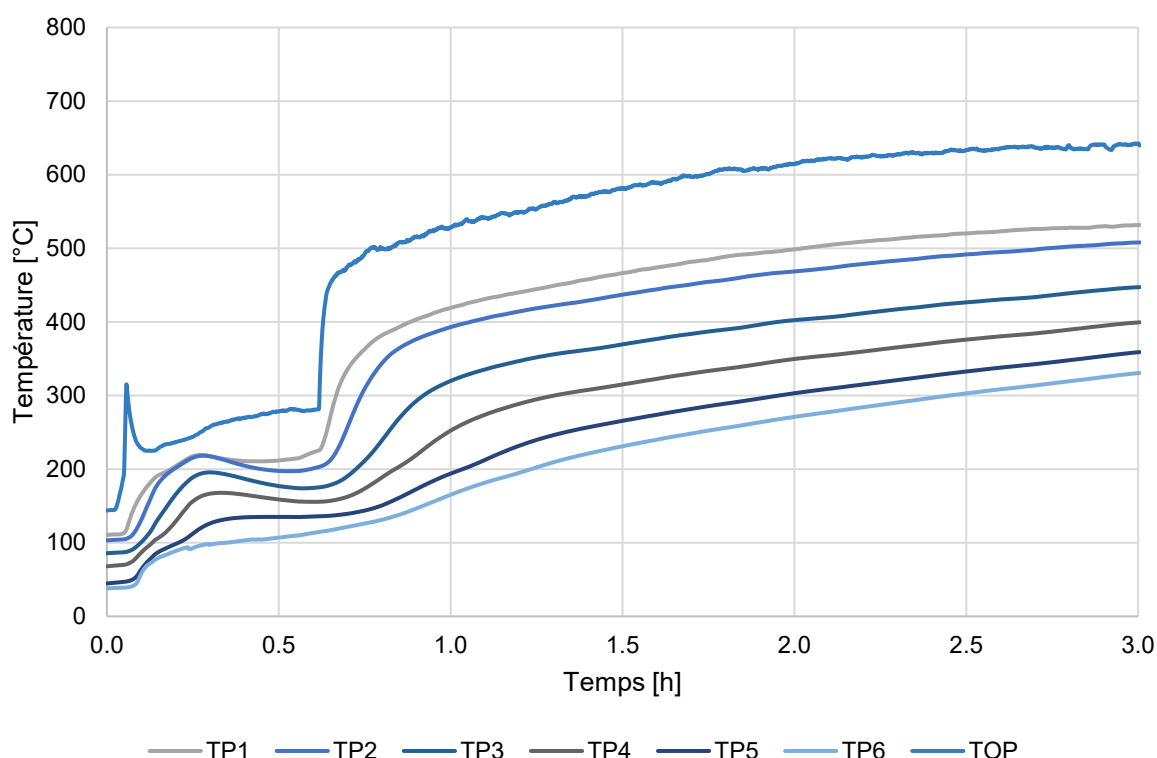


Figure 15: Evolution de la température dans le réacteur de traitement du gaz de synthèse en présence de biochar ; plaquettes forestières WC-P16F05 ; débit d'air d'oxydation partielle : 12 l/min.

D'une part, l'accroissement de la concentration en CO est vraisemblablement lié, du moins en partie, à la perte de masse d'environ 30% du biochar après un séjour de 2h dans le second réacteur (voir **Tableau 7**). D'autre part, les concentrations en CH_4 et H_2 n'évolue pas significativement. Au niveau de température régnant dans le second réacteur, les concentrations de vapeur d'eau (H_2O) et de dioxyde de carbone (CO_2) devrait tendanciellement évoluer en rapport avec la réaction du gaz à l'eau ($\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$) compte tenu de l'accroissement de celle en CO. Or la concentration en H_2 n'évolue pas. Pour pouvoir analyser plus en détail les phénomènes mis en jeu, il serait nécessaire de disposer de davantage de mesures réalisées sur une plus longue durée, ce que le dispositif actuel ne permet pas.

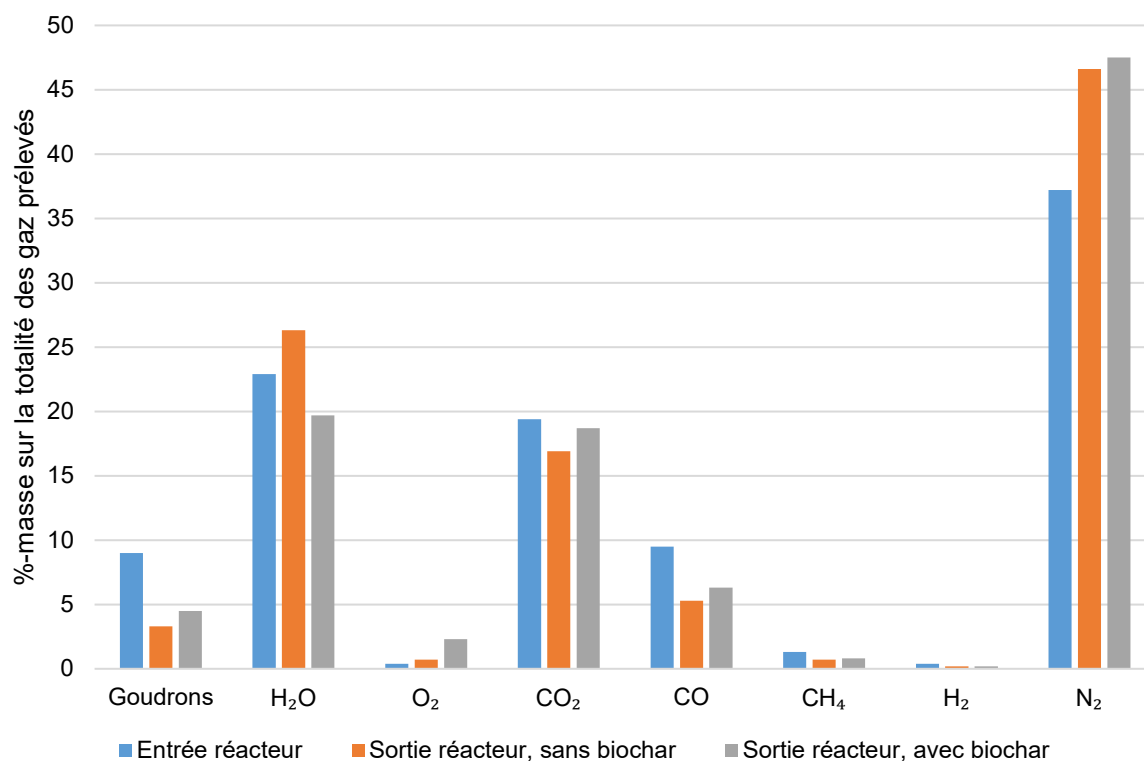


Figure 16: Effet du traitement du gaz de synthèse sur sa composition : teneur en gaz et en goudrons à l'entrée et à la sortie du second réacteur, sans et avec biochar ; plaquettes forestières WC-P16F05.

En % sur matière sèche	Réacteur 1	N° de panier du réacteur 2				
		1	2	3	4	5
Matière volatile	10.8	7.7	9.0	10.1	10.9	11.1
Taux de cendres à 815°C	2.8	2.7	3.0	3.2	3.3	3.1
Carbone fixe	86.4	89.6	87.9	86.7	85.7	85.8
Perte de masse	-	31	30	31	30	30
CHNSO						
C	88.09	92.19	90.96	89.67	91.17	92.54
H	1.75	1.63	1.51	1.51	1.65	1.70
N	0.27	0.19	0.28	0.27	0.33	0.33
S (estimé par EDXRF)	0.70	0.26	0.25	0.09	0.09	0.22
O (par différence)	6.39	3.09	4.00	5.26	3.46	2.11

Tableau 7: Analyse approximative et ultime du biochar issu de la pyrolyse oxydante (réacteur 1) et celui contenu dans les différents paniers du réacteur de traitement du gaz de synthèse (réacteur 2) ; plaquettes forestières WC-P16F05.



Les résultats de l'analyse approximative et ultime du biochar issu de la pyrolyse oxydante (réacteur 1), considéré ici comme référence, ainsi que de ce même biochar après avoir été placés dans les différents paniers du réacteur de traitement du gaz de synthèse (réacteur 2) sont donnés dans le **Tableau 7**. L'augmentation de la teneur en carbone fixe dans les deux premiers paniers corrèle avec la diminution de celle de matière volatile évoquée plus haut. L'augmentation de la teneur en matière volatile du biochar contenu dans les deux derniers paniers pourrait résulter de l'adsorption des composés volatils émis par le biochar contenu dans les paniers précédents. Ceci expliquerait aussi l'évolution de la teneur en carbone élémentaire (C) du biochar contenu dans les différents paniers. Finalement la diminution de la teneur élémentaire en oxygène (O) pourrait être en lien avec l'augmentation de la concentration en oxygène moléculaire (O₂) du gaz de synthèse.

La surface spécifique déterminée selon la méthode BET et la teneur en métaux lourds du biochar issu de la pyrolyse oxydante (réacteur 1), considéré comme référence, et celui contenu dans les différents paniers du réacteur de traitement du gaz de synthèse (réacteur 2) obtenu à partir de plaquettes forestières WC-P16F05 sont donnés dans le **Tableau 8**. D'une part, la surface spécifique du biochar utilisé pour le traitement du gaz de synthèse est de 33 à 155% plus élevée que celle du biochar brut. Ceci tend à indiquer une interaction entre les composants en présence allant dans le sens d'une légère activation du biochar. D'autre part, les conditions de température dans le second réacteur semblent suffisantes pour entraîner la désorption d'une partie des métaux lourds contenus dans le biochar, ce qui se traduit par une diminution de la concentration de ceux qui sont détectables dans le biochar brut. L'évolution de la surface spécifique ainsi que celle des concentrations en métaux lourds ne peut toutefois pas être ordonnancée en fonction de la position des paniers.

	Réacteur 1	N° de panier du réacteur 2				
		1	2	3	4	5
BET (m²·g⁻¹)	65.98	124.3	168.6	103.9	102.1	87.85
Métaux lourds en mg/kg (nd : non détecté)						
As	nd	nd	nd	nd	nd	nd
Cd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
Cr	245	78.3	79.1	22.7	34.1	209
Cu	125	nd	nd	nd	nd	nd
Pb	nd	nd	nd	nd	nd	nd
Hg	nd	nd	nd	nd	nd	nd
Mn	2049	765	591	105	185	507
Ni	161	59.1	57.4	26.2	30.2	87.5
Zn	99.4	61.3	40.7	8.7	11.1	28.8

Tableau 8: Surface spécifique et teneur en métaux lourds du biochar issu de la pyrolyse oxydante (réacteur 1) et celui contenu dans les différents paniers du réacteur de traitement du gaz de synthèse (réacteur 2) ; plaquettes forestières WC-P16F05.



4.3 Système combiné alternatif

En raison des problèmes rencontrés sur le dispositif principal décrit plus haut et dans le but de compléter les résultats obtenus avec ce dernier, un dispositif alternatif basé sur un gazéificateur à tirage ascendant allumé par le haut (Top-Lit UpDraft abrégé TLUD, en anglais) a été mis en œuvre. Le TLUD est une technologie de pyrolyse qui s'est avérée être prometteuse pour la gestion des déchets organiques et la production de biochar. Par rapport à celui principal, le dispositif élaboré permet de former un système beaucoup plus compact, susceptible d'atteindre des températures plus élevées au niveau de la pyrolyse oxydante et du traitement du gaz de synthèse par biochar.

4.3.1 Principe de fonctionnement

Le fonctionnement du dispositif alternatif élaboré sur la base d'un TLUD repose sur les principes suivants :

- Chargement de la matière organique, telle que du bois ou des résidus agricoles, dans un réservoir à substrat de capacité donnée et limitée (procédé « batch ») ;
- Allumage par le haut de la charge dans le but d'obtenir une combustion partielle inversée ;
- Combustion partielle inversée au moyen d'une quantité limitée d'air, inférieure à celle minimum stœchiométrique, démarrant lentement, produisant la chaleur nécessaire à la pyrolyse de la matière organique et générant ainsi du gaz de synthèse et du biochar ;
- Passage du gaz de synthèse dans un panier contenant du biochar, placé directement en aval, dans le but de réduire la teneur en goudrons.

Le réservoir est conçu pour accueillir environ 2 kg de substrat pour une durée d'essai entre 1h et 3h dépendant du débit d'air de pyrolyse oxydante. Un rechargement est possible sous réserve de prendre beaucoup de précaution en raison de la température de surface élevée et de la présence de gaz de synthèse (inflammable et toxique) dans le réservoir.

4.3.2 Description de l'installation et de son fonctionnement

Le système alternatif est représenté dans la **Figure 17** avec une description de ses principaux éléments et son fonctionnement peut être décrit comme suit : Des plaquettes forestières du même lot que celles utilisées pour les essais avec le système principal sont introduites dans le réservoir à substrat. Un allume-feu est ensuite allumé et est disposé sur le dessus du lit de bois pour démarrer la réaction. Un débit d'air de pyrolyse spécifique⁷ identique à celui utilisé dans le système principal est introduit par le bas du réservoir, à contre-courant du front de pyrolyse et dans le sens du flux de gaz de synthèse. Le réservoir est isolé au moyen de 50 mm de laine minérale à base de calcium et de magnésium, recouvert d'une couche de 50 mm de laine de roche conventionnelle. Le gaz de synthèse produit passe au travers d'un panier contenant du biochar produit par le réacteur de pyrolyse oxydante du système principal. Deux points de prélèvement du gaz de synthèse permettent la mesure de sa composition alternativement en amont et en aval du panier. Le gaz de synthèse est finalement neutralisé par oxydation avant d'être évacué au travers d'une cheminée. En cas de d'urgence et à la fin de l'essai, la réaction est arrêtée rapidement au moyen d'une injection d'eau du réseau dans le réservoir. Le dispositif est instrumenté d'une part au moyen de trois thermocouples dont les valeurs sont relevées chaque seconde. Une première mesure (T1) est effectuée juste après le réservoir de bois, au plus près de la zone de réaction, au même niveau que le premier point de prélèvement du gaz de synthèse. Une seconde mesure (T2) est réalisée au-dessus du panier contenant le biochar, au même niveau que le second point de prélèvement du gaz de synthèse. Finalement, une troisième



mesure (T3) est prise à la sortie du brûleur de gaz de synthèse. D'autre part, le dispositif est posé sur une balance de précision. La combinaison de cette dernière à un contrôleur de débit d'air de pyrolyse oxydante (Bronkhorst Mass-Stream D6300) permet d'établir un bilan de masse précis. L'analyse du gaz de synthèse est effectuée au moyen du même matériel que celui utilisé dans le cas du système principal.

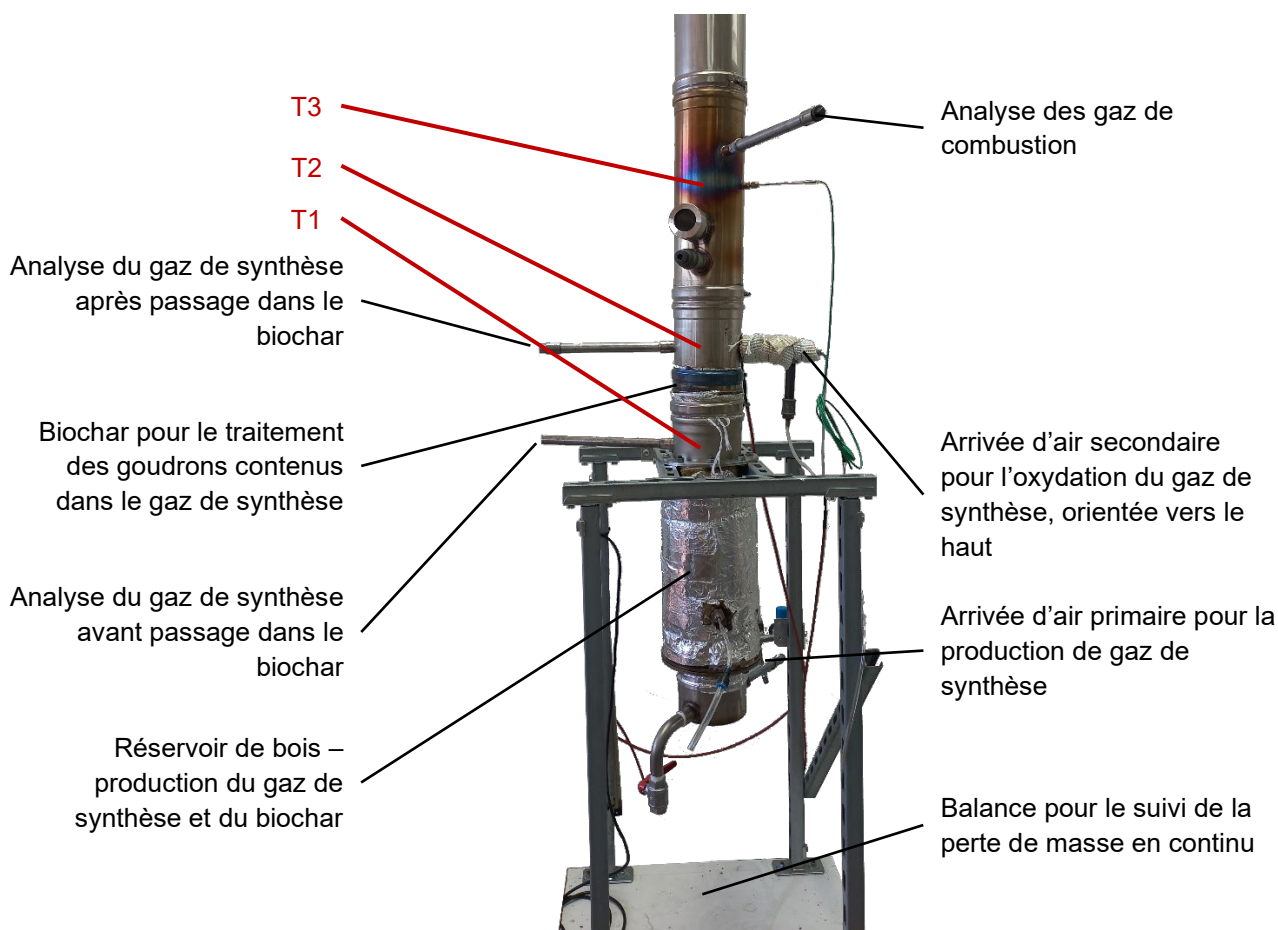


Figure 17: Système alternatif combiné de pyrolyse oxydante et de traitement du gaz de synthèse basé sur un gazéificateur à tirage ascendant allumé par le haut (TLUD).

Comparativement au système principal, ce dispositif alternatif nettement plus compact est caractérisé par une déperdition de chaleur beaucoup plus faible entre le réacteur de pyrolyse oxydante et la zone de traitement du gaz de synthèse au moyen de biochar ainsi qu'une meilleure étanchéité. De plus, en l'absence d'oxydation partielle, il permet d'éviter la dénaturation du gaz de synthèse et d'effectuer un suivi précis de la perte de masse. Finalement, sa simplicité et la faible quantité de substrat traité permettent de réduire les risques en termes de sécurité et de réaliser relativement rapidement des études paramétriques. Par contre, la capacité limitée du réservoir de substrat et la difficulté à le réapprovisionner en cours d'essai n'autorise pas un fonctionnement de longue durée nécessaire à l'étude de l'évolution de la composition du gaz de synthèse et du biochar utilisé pour son traitement.



4.3.3 Analyse des résultats de mesure

L'évolution de la température dans le dispositif alternatif est représentée dans la **Figure 18**. La température du gaz de synthèse à la sortie de la pyrolyse oxydante atteint une valeur maximale d'environ 425°C, nettement supérieure à celle d'environ 275°C obtenue dans le cas du système principal. Cependant, cette température reste inférieure à celle de l'ordre de 700 à 800°C nécessaire au traitement du gaz de synthèse, selon la littérature citée plus haut. En l'absence d'isolation au-delà du réservoir de substrat, siège de la pyrolyse oxydante, la température du gaz de synthèse chute de 100°C lors de son passage au travers du panier contenant le biochar. Ceci illustre la forte intensité du transfert de chaleur à ce niveau de température.

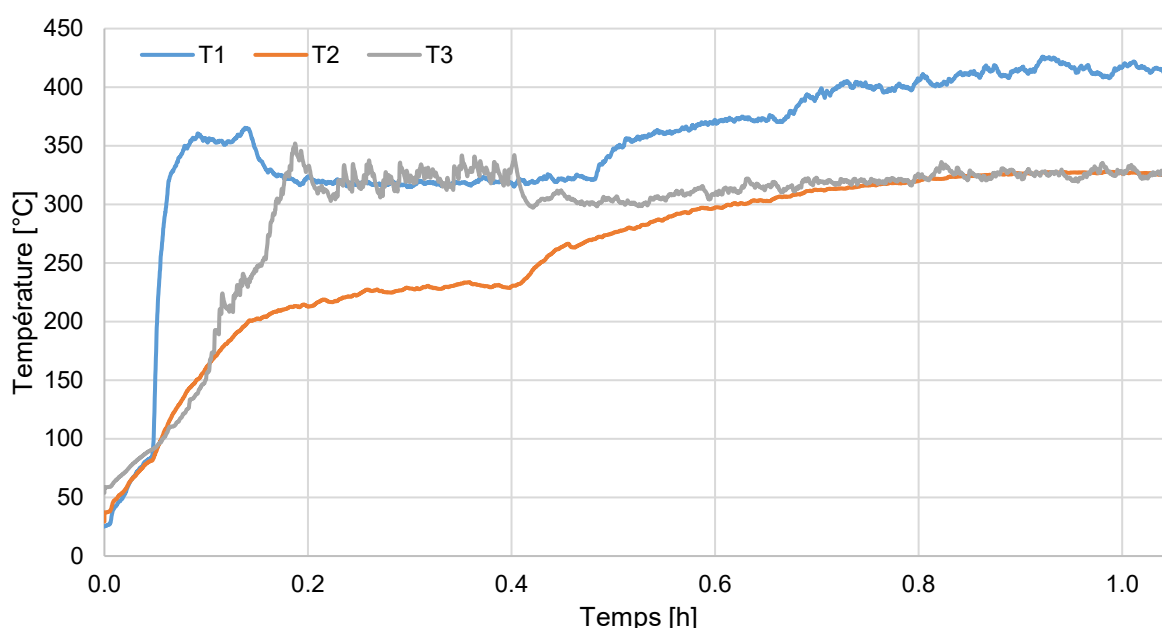


Figure 18: Evolution de la température dans le dispositif alternatif

Au-delà d'un niveau global de température trop bas, le dispositif ne permet pas un fonctionnement en conditions stables au-delà d'une vingtaine de minutes, ce qui s'avère insuffisant pour étudier les phénomènes mis en jeu au niveau du traitement du gaz de synthèse. Un accroissement de la température de pyrolyse oxydante serait possible par l'intermédiaire d'une augmentation du débit d'air mais aurait pour conséquence de réduire davantage la durée de fonctionnement en conditions stables.

5 Conclusions et résumé

La composition du gaz de synthèse et du biochar obtenus par pyrolyse oxydante dans le premier réacteur sont comparables avec ceux publiés dans la littérature dans le cas de substrats similaires. Par contre et en raison de pertes de chaleur excessives au niveau du second réacteur, il n'a pas été possible d'étudier de manière détaillée les effets de l'interaction entre le gaz de synthèse et le biochar sur leurs compositions respectives. La relativement faible température de réaction atteinte, inférieure de plusieurs centaines de degrés à celle de 700 à 800°C préconisée dans la littérature, n'a pas permis de mettre en évidence des tendances claires. En particulier, la concentration en goudrons du gaz de synthèse n'a pas pu être abaissée au niveau de 1 g/Nm³ afin de permettre une valorisation énergétique dans un



moteur à combustion interne. Compte tenu des difficultés rencontrées, le modèle de simulation numérique développé en parallèle de ce projet n'a pas pu être mis à profit pour optimiser les paramètres de fonctionnement du système. Toutefois, de nombreuses connaissances essentielles, tant au niveau de la conception que de celui de l'exploitation, ont été acquises pour la réalisation d'un nouveau réacteur combiné ainsi que pour améliorer la caractérisation et l'analyse des produits générés.

6 Aperçu et mise en œuvre prochaine

La prochaine étape consistera à concevoir un nouveau réacteur combiné particulièrement compact afin de limiter au maximum les pertes de chaleur et permettre ainsi d'atteindre un niveau de température de l'ordre de 700 à 800°C dans la zone de traitement du gaz de synthèse au moyen de biochar. Une telle température est atteignable dans un réacteur de pyrolyse oxydante (Xuan-Huynh Pham et al., 2018) et, moyennant une configuration appropriée du réacteur devrait pouvoir être maintenue dans la zone de traitement du gaz de synthèse. L'architecture du système devra par ailleurs autoriser un fonctionnement en continu sur une durée suffisante pour atteindre des conditions de température stables et exposer suffisamment longtemps le biochar au flux de gaz de synthèse afin de pouvoir étudier l'interaction entre eux, ce qui nécessitera une large automatisation de son fonctionnement. Afin de résister aux hautes températures sur la durée, le choix des matériaux devra être revu et exigera vraisemblablement l'utilisation d'éléments en céramique dans les zones les plus chaudes. Un effort particulier devra être fourni pour garantir l'étanchéité du système et remplir ainsi une importante exigence de sécurité. En raison des risques d'explosion et d'intoxication inhérents au procédé étudié, le lieu d'implantation du nouveau système devra aussi être réévalué. L'objectif de cette prochaine étape sera d'une part de clarifier les questions auxquelles la présente étude n'aura pas pu donner réponses. D'autre part, le but sera d'élaborer un concept industrialisable qui puisse ensuite être réalisé à plus grande échelle et testé dans le cadre d'un projet pilote, en cas de succès.

7 Coopération nationale et internationale

Aucune collaboration nationale ou internationale n'a été mise en place. Cependant, une collaboration avec d'autres hautes écoles de la HES-SO sur la caractérisation et la valorisation du biochar (non-activé pour les sols avec HEPIA et activé pour la filtration des eaux usées avec la HEIA-FR) sont en discussion.

8 Communication

F. El abdellaoui, R.P. Roethlisberger, H. Ez-Zahraouy « Thermogravimetric analysis and kinetics of woody biomass pyrolysis ». Poster presentation. 28th e-European Biomass Conference & Exhibition (e-EUBCE2020).

F. El abdellaoui, R.P. Roethlisberger, H. Ez-Zahraouy « Wood Chips Oxidative Pyrolysis for Biochar and Syngas Production ». Poster presentation. 29th e-European Biomass Conference & Exhibition (e-EUBCE2021).



9 Publications

F. El abdellaoui, R.P. Roethlisberger, H. Ez-Zahraouy ; Oxydative pyrolysis of pellets from lignocellulosic anaerobic digestion residues and wood chips for biochar and syngas production; *Fuel* 350 (2023) 128824.

10 Bibliographie

Hupfaut, Benjamin & Hämmerle, Thomas & Lepuschitz, Marcel. (2016). Plant Growth Tests and the Issue of the Analysis of PAHs with Biochar from Gasifier Plants. *Energy Procedia*. 93. 9 - 13. 10.1016/j.egypro.2016.07.142.

Huemer M & Huber M & Hofmann. A; A staged floating-fixed-bed gasification: History and future. *Mater Methods & Technol* 2015 ;9; 28-36.doi:10.1017/CBO9781107415324.004.

Wiedner, Katja & Rumpel, Cornelia & Steiner, Christoph & Pozzi, Alessandro & Maas, Robert & Glaser, Bruno. (2013). Chemical evaluation of chars produced by thermochemical conversion (gasification, pyrolysis, and hydrothermal carbonization) of agro-industrial biomass on a commercial scale. *Biomass and Bioenergy*. 10.1016/j.biombioe.2013.08.026.

Sikarwar, Vineet & Zhao, Ming & Clough, Peter & Yao, Joseph & Zhong, Xia & Memon, Muhammad Zaki & Shah, Nilay & Anthony, Edward & Fennell, Paul. (2016). An overview of advances in biomass gasification. *Energy Environ. Sci*. 9. 2927–3304. 10.1039/C6EE00935B

Colantoni, Andrea & Evic, Nikola & Lord, Richard & Retschitzegger, Stefan & Proto, Andrea Rosario & Gallucci, Francesco. (2016). Characterization of biochars produced from pyrolysis of pelletized agricultural residues. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*. 64. 187-194. 10.1016/j.rser.2016.06.003.

Woolf, Dominic & Lehmann, Johannes & Lee, David. (2016). Optimal bioenergy power generation for climate change mitigation with or without carbon sequestration. *Nature Communications*. 7. 13160. 10.1038/ncomms13160. biomass resources for the energy transition in Switzerland. *Biomass and Bioenergy*. 111. Pages 60-69. 10.1016/j.biombioe.2018.02.007

Ioannidou, O & Zabaniotou, Anastasia. (2007). Agricultural Residues as Precursors for Activated Carbon Production-A Review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*. 11. 1966-2005. 10.1016/j.rser.2006.03.013.

Manoj Tripathi, J.N. Sahu, P. Ganesan. (2016). Effect of process parameters on production of biochar from biomass waste through pyrolysis: A review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*.

Vadenbo, Carl & Tonini, Davide & Burg, Vanessa & Fruergaard Astrup, Thomas & Thees, Oliver & Hellweg, Stefanie. (2018). Environmental optimization of biomass use for energy under alternative future energy scenarios for Switzerland. *Biomass and Bioenergy*. 119. 462-472. 10.1016/j.biombioe.2018.10.001.

Burg, Vanessa & Bowman, Gillianne & Erni, Matthias & Lemm, Renato & Thees, Oliver. (2018). Analyzing the potential of domestic biomass resources for the energy transition in Switzerland. *Biomass and Bioenergy*. 111. Pages 60-69. 10.1016/j.biombioe.2018.02.007

Elias Daouk. Etudes expérimentale et numérique de la pyrolyse oxydante de la biomasse en lit fixe. *Génie des procédés*. Ecole des Mines de Nantes, 2015.

Feng, Dongdong & Zhang, Yu & Zhao, Yijun & Sun, Shaozeng & Gao, Jianmin. (2018). Improvement and maintenance of biochar catalytic activity for in-situ biomass tar reforming during pyrolysis and H₂ O/CO₂ gasification. *Fuel Processing Technology*. 172. 106-114. 10.1016/j.fuproc.2017.12.011.



Xuan-Huynh Pham, Bruno Piriou, Sylvain Salvador, Jeremy Valette; Oxidative pyrolysis of pine wood, wheat straw and miscanthus pellets in a fixed bed; Fuel Processing Technology 178 (2018) 226-235.

11 Annexes

A. Tableau des analyses effectuées sur les matières premières, le biochar et les goudrons

Analyses	Normes / Méthode	Matières premières	Biochar	Goudrons
Composition élémentaire : CHNS	ISO 16948			
Composition élémentaire : O	ISO 16948			
Pouvoir calorifique supérieur (PCS) à volume constant	ISO 18125			
Pouvoir calorifique inférieur (PCI) à volume ou pression constante	ISO 18125			
Taux d'humidité relative ou absolue	ISO 18134-2			
Matière volatile	ISO 18123			
Taux de cendres à 550 °C ou 815 °C	ISO 18122 / 1171			
Fusibilité des cendres	ISO 21404			
Granulométrie de plaquettes forestières (humidité comprise)	ISO 17225-4			
Masse volumique apparente	ISO 17828			
Dimensions des granulés	ISO 17225-2			
Détermination des phénols et HAP	GC-TCD/FID			
Mesure de surface spécifique	méthode BET			

B. Méthodes utilisées pour l'analyse des goudrons

Détermination des HAP

Instrument GC : SRI Model 8610 C

Colonne : Zebron ZB-SemiVolatiles, 30m x 0.25mm x 0.25um

Programme du four : 50 °C durant 4 min, 30 °C/min jusqu'à 100 °C, 10 °C/min jusqu'à 260 °C, 2 °C/min jusqu'à 330 °C, puis 3 min à 330 °C

Injecteur : 280 °C, injection 1µL en mode splitless

Détecteur : 340 °C

Gaz vecteur : Hélium à flux constant 1.5 mL/min

Détermination des phénols

Instrument GC : SRI Model 8610 C

Colonne : Zebron ZB-SemiVolatiles, 30m x 0.25mm x 0.25um



Programme du four : 40 °C durant 0.5 min, 30 °C/min jusqu'à 260 °C, 6 °C/min jusqu'à 295 °C, 25 °C/min jusqu'à 325 °C, puis 2 min à 325 °C

Injecteur : 280 °C, injection 1 µL en mode splitless

Détecteur : 340 °C

C. Composition des gaz permanents des gaz de pyrolyse oxydante de différents substrats

