

**THESE de DOCTORAT  
DE L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET  
TECHNOLOGIES DE LILLE 1**

Discipline : Chimie

Spécialité : Dynamique et structure des systèmes réactifs

présentée par

Olivier SORRIAU

en vue de l'obtention du titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LILLE 1

Titre :

**ETUDE DE LA REDUCTION DES OXYDES D'AZOTE (NO<sub>x</sub>) PAR  
SURCOMBUSTION REDUCTRICE  
(PROCEDE « REBURNING »)**

Directeur de thèse : Stanislas PIETRZYK

Soutenue le 11 décembre 2002 devant le jury composé de :

Mme G. Leclercq	Professeur, Université de Lille 1	Président
M. B. Baudoin	Professeur, Ecole des Mines de Douai	Rapporteur
M. R. Gadiou	Maître de conférences, Université de Mulhouse	Rapporteur
M. V. Delvinquier	Ingénieur Docteur, CERCHAR / SNET	Examineur
M. S. Caillat	Maître de Conférences, Ecole des Mines de Douai	Examineur
M. M. Czernicki	Maître de Conférences, ENSCL	Examineur
M. P. Lybaert	Professeur, Faculté Polytechnique de Mons, Belgique	Examineur
M. S. Pietrzyk	Professeur, ENSCL	Examineur

*A la mémoire de mon grand-père  
et à mon fils Théo*

# REMERCIEMENTS

Tout d'abord, je tiens à remercier le CERCHAR (Centre d'Etudes et de Recherches de la Combustion) – SNET (Société Nationale d'Electricité et de Thermique) d'une part pour avoir proposé et cofinancé cette thèse dont le sujet intéressant est d'une actualité industrielle évidente et d'autre part pour avoir mis à disposition l'ensemble des matériels et des ressources disponibles sur la plate-forme de Mazingarbe afin de réaliser l'étude expérimentale.

Je tiens également à remercier l'ADEME pour avoir également cofinancé cette thèse et en particulier M. Franck Delacroix pour le suivi qui en a été fait.

Mes sincères remerciements à M. Stanislas Pietrzyk d'avoir eu la patience d'être mon directeur de thèse durant ces années et de m'avoir beaucoup aidé lors de la rédaction de ce mémoire.

Mes remerciements également à M. Vincent Delvinquier pour m'avoir accueilli au CERCHAR et de m'y avoir constamment encadré.

Je remercie également M. Bernard Baudoin de l'Ecole des Mines de Douai de m'avoir accueilli au sein de son département Energétique Industrielle afin d'y effectuer les travaux de modélisation. Je tiens également à le remercier, ainsi que M. Roger Gadiou de l'Université de Mulhouse, pour avoir tous deux acceptés d'être rapporteurs de cette thèse malgré le retard pris dans la rédaction et le volume du mémoire.

Je remercie tous les membres du jury pour l'honneur qu'ils m'ont fait en acceptant d'y siéger et notamment M. Paul Lybaert de la Faculté Polytechnique de Mons, Belgique, ainsi que Mme Ginette Leclercq de l'Université de Lille pour avoir accepté la présidence.

Merci aussi à Sébastien Caillat non seulement pour m'avoir patiemment appris l'usage de Fluent mais également pour m'avoir beaucoup conseillé lors des travaux de modélisation.

Mes remerciements à Marek Czernicki de m'avoir également encadré lors de cette thèse et de m'avoir guidé lors des travaux de modélisation avec les réseaux de neurones.

Merci également à l'ensemble des techniciens et ouvriers du CERCHAR que j'ai longuement et constamment « enquiné » durant la période passée à leurs côtés, en particulier MM. Crunelle, Joly, Debas D. et E., Wojcieszak, Cossart, Leplus, Queva, et sans qui, la phase expérimentale de cette étude n'aurait jamais pu aboutir.

Mille pensées de sympathie à l'ensemble des personnes que j'ai rencontré tout au long de ce parcours, anciens et nouveaux collègues, doctorants, personnel de l'ADEME, stagiaires et autres personnes qui se reconnaîtront...

Et finalement un grand merci à ma seconde moitié, Dominique, de m'avoir supporté et encouragé tout au long de cette thèse.

<b>INTRODUCTION GENERALE</b>	<b>1</b>
<b>PARTIE 1 : CONTEXTE DE L'ETUDE</b>	<b>5</b>
<b>Chapitre I : Politique environnementale concernant la pollution par les oxydes d'azote</b>	<b>7</b>
Introduction	7
I - L'azote et ses oxydes	
II - Politique de l'Union Européenne concernant la pollution par les NO <sub>x</sub>	12
III - Politique environnementale des Etats-Unis	17
IV - Politique environnementale de la SNET	19
<b>Chapitre II : Emission et réduction des NO<sub>x</sub></b>	<b>21</b>
Introduction	21
I - Formation des oxydes d'azote	21
II - Méthodes de réduction des oxydes d'azote	23
III - Technologies de réduction des NO <sub>x</sub>	24
IV - L'étagement mixte du combustible et de l'air de combustion	30
<b>Chapitre III : Analyse bibliographique du reburning</b>	<b>33</b>
Introduction	33
I - Mécanismes réactionnels du reburning	34
II - Résultats expérimentaux	39
III - Les dispositifs expérimentaux des organismes de recherche	51
IV - Conclusion	55
<b>Chapitre IV : Applications industrielles du reburning</b>	<b>57</b>
Introduction	57
I - Applications industrielles aux Etats-Unis	57
II - Situation en Europe	65
<b>Conclusion et problématique de l'étude</b>	<b>71</b>

## **PARTIE 2 : LE FOUR 4 MWTH DU CERCHAR ET LES CONDITIONS EXPERIMENTALES**

73

### **Chapitre I : Description de l’outil expérimental ; le Four d’Etudes des Flammes**

75

- I - Le Four d’Etudes de Flamme de 4 MWth du CERCHAR 75
- II - Le brûleur 77
- III - Instrumentation annexe du four 81

### **Chapitre II : Conditions expérimentales du reburning sur le four pilote du CERCHAR**

87

- Introduction 87
- I - Généralités sur le charbon 87
- II - Combustibles utilisés lors des expérimentations de reburning 93
- III - Conditions d’expérimentations 94
- IV - Conclusion sur les paramètres d’études 105
- V - Modification de l’outil expérimental 106

### **Conclusion**

107

## **PARTIE 3 : REBURNING AU GAZ NATUREL**

109

### **Chapitre I : Essais paramétriques de reburning au gaz naturel**

111

- I - Conditions des essais 111
- II - Température de 1300°C à l’entrée de la zone de reburning 112
- III - Température de 1200°C à l’entrée de la zone de reburning 112
- IV - Température de 1100°C à l’entrée de la zone de reburning 113
- V - Résultats et discussion 114
- VI - Conclusion 128

### **Chapitre II : Cartographies de flammes à charbon pulvérisé lors du reburning au gaz naturel**

129

- Introduction 129
- I - Résultats et discussions 130
- II – Comparaison avec des résultats de la bibliographie 137

### **Conclusion**

139

## **PARTIE 4 : REBURNING AU CHARBON** 141

### **Chapitre I : Essais paramétriques de reburning au charbon** 143

Introduction	143
I - Réglages des flammes de référence	144
II - Essais de reburning avec du charbon français	149
III - Essais de reburning avec du charbon colombien	149
IV - Essais de reburning avec du charbon sud-africain	149
V - Essais de reburning avec du charbon polonais	150
VI - Discussion des résultats	150
VII - Conclusion et comparaison avec le reburning au gaz naturel	167

### **Chapitre II : Cartographies de flammes à charbon pulvérisé lors du reburning au charbon** 169

Introduction	169
I - Résultats et discussions	170
II - Conclusion	173

### **Conclusion** 175

## **PARTIE 5 : APPLICATION DES RESEAUX DE NEURONES** 177

### **Chapitre I : Présentation des réseaux de neurones** 179

Introduction	179
I - Techniques de contrôle de processus : les réseaux de neurones	179
II - Généralités sur les réseaux de neurones formels	180
III - Différentes types de réseau de neurones	184
IV - Apprentissage : méthodologie	188
V - Exemples d'applications des réseaux de neurones	189
Conclusion	192

### **Chapitre II : Apprentissage et utilisation des réseaux de neurones** 193

Introduction	193
I - Reburning au gaz naturel	193
II - Reburning au charbon	203

<b>Conclusion</b>	<b>207</b>
<b>PARTIE 6 : MODELISATION DU REBURNING</b>	<b>209</b>
<b>Chapitre I : Modélisation de la cinétique chimique, Modélisation hydrodynamique</b>	<b>211</b>
Introduction	211
I – Modélisation cinétique	211
II – Modélisation hydrodynamique	221
<b>Chapitre II : Modélisation du reburning</b>	<b>231</b>
Introduction	231
I - Maillage	231
II - Simulation	233
<b>Conclusion</b>	<b>253</b>
<b>CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES</b>	<b>255</b>
<b>ANNEXES</b>	<b>259</b>
<b>Annexe 1 : Propriétés moléculaires et thermodynamiques     des oxydes d'azote</b>	<b>261</b>
<b>Annexe 2 : Mécanisme réactionnel</b>	<b>269</b>
<b>Annexe 3 : Procédures d'analyse du charbon</b>	<b>275</b>
<b>Annexe 4 : Reburning au gaz naturel</b>	<b>279</b>
<b>Annexe 5 : Reburning au charbon</b>	<b>303</b>
<b>Annexe 6 : Cartographies</b>	<b>339</b>
<b>Annexe 7 : Evolution des réseaux de neurones</b>	<b>357</b>
<b>Annexe 8 : Présentation de Fluent</b>	<b>363</b>
<b>LISTES DES FIGURES</b>	<b>371</b>
<b>LISTES DES TABLEAUX</b>	<b>379</b>
<b>REFERENCES</b>	<b>383</b>

## NOMENCLATURE

C	Coefficient de débit
$C_{NO}$	Concentration en NO
D	Diamètre
e	Excès d'air
Ea	Energie d'activation
Fr	Fraction de Reburning
k	Constante de vitesse
K	Constante d'équilibre
kW	Kilowatt
MWth	Megawatt thermique
MWe	Megawatt électrique
NO <sub>x</sub> init	Teneur initiale en NO <sub>x</sub> / teneur en NO <sub>x</sub> à l'entrée de la zone de reburning / concentration de NO <sub>x</sub> primaires
P	Pression
PCI	Pouvoir Calorifique Inférieur
$P_{comb}$	Pouvoir comburivore
Q	Débit massique
$q_v$	Débit volumique
r	Vitesse de réaction
R	Constante des gaz parfaits
Sw	Nombre de swirl
Sc	Section
Stp	Stœchiométrie de la zone primaire
Str	Stœchiométrie de la zone de reburning
Stb	Stœchiométrie de la zone de postcombustion
ST1	Stœchiométrie primaire
T	Température
Ts	Temps de séjour
Tx	Taux (ou efficacité) de combustion
V	Vitesse
w	Poids d'une liaison entre deux neurones
x	Donnée en entrée d'un réseau de neurones
y	Donnée en sortie ou prédiction d'un réseau de neurones
$\delta$	Densité
$\delta$	Erreur sur un poids
$\rho$	Masse volumique
$\Sigma$	Erreur sur une prédiction



## ABBREVIATIONS / SIGLES

ADEME	Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie
NO <sub>x</sub>	Oxydes d'azote (NO + NO <sub>2</sub> )
GIC	Grande Installation de Combustion
MTD	Meilleures Technologies Disponibles (en anglais Best Available Technology, BAT)
VLE	Valeurs Limites d'Emissions
NEC	National Emission Ceilings
EPA	Environment Protection Agency
SNET	Société Nationale d'Electricité et de Thermique
CERCHAR	Centre d'Etudes et de Recherches de la Combustion
CP	Charbon Pulvérisé
OFA	Over Fire Air
GDF	Gaz De France
RBF	Radial Basis Function (ou en français Fonction de Base Radiale, FBR)
Az	Teneur en azote
MV	Indice de matières volatiles
% abs	Pourcentage absolu
ppm	parties par million
mg.Nm <sup>-3</sup>	milligrammes par mètre cube normal

# Introduction générale

*« Responsabilité, prévention, précaution, intégration, participation : les principes d'une écologie porteuse de progrès pour l'homme vont créer de nouvelles responsabilités pour tous. En adoptant de nouveaux comportements, du citoyen au responsable public, du consommateur au producteur, nous démontrerons la réalité du changement qui s'opère déjà dans les consciences ».*

Extraits du discours de Jacques Chirac  
Président de la République  
Pollutec, Paris, 4 décembre 2001

Les combustibles fossiles (charbon, gaz et pétrole) permettent de produire une grande part d'électricité dans le monde. Parmi ces sources d'énergie, le charbon est un combustible qui bénéficie de réserves prouvées importantes à travers le monde et de prix d'achat relativement stables.

Bien que l'électricité produite représente une source d'énergie très propre pour le consommateur, sa production à partir des combustibles fossiles (notamment par le charbon) s'accompagne d'émissions de différents polluants (NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>...), néfastes pour la faune et la flore et pour la santé humaine. Une prise de conscience par les entreprises, les collectivités et les particuliers entraîne, sur le plan local, national, européen et même mondial, la prise en compte dans le développement économique (indispensable à l'amélioration de nos conditions de vie sur terre), du respect de l'environnement pour les générations futures.

Le développement et la démonstration de nouvelles technologies performantes dans le domaine de la réduction de la pollution de l'air devient une priorité pour l'ADEME (Agence De l'Environnement et de la Maîtrise des Energies). Plusieurs contrats signés avec des industriels spécialisés dans le domaine des services et des technologies de l'environnement et des exploitants d'installations industrielles permettent de considérer des objectifs techniques à atteindre en matière de limitations et de réduction des émissions de polluants.

Dans le contexte de la législation environnementale de plus en plus sévère et de la libéralisation du marché de l'électricité en France et en Europe, plusieurs sociétés dont la SNET (Société nationale d'Electricité et de Thermique) qui regroupe plusieurs installations de production d'électricité avec du charbon, sont amenées à produire une électricité de bon marché, satisfaisant à la limitation des émissions de polluants. Pour cela, la SNET participe par le biais de son centre de recherche CERCHAR, Centre d'Etudes et de Recherches sur la Combustion, aux travaux français et européens sur les questions environnementales en s'efforçant d'harmoniser progrès techniques ("charbon propre") et réglementation dans une perspective de développement économique et social durable. L'objectif est donc de trouver des solutions permettant d'accroître l'efficacité énergétique des installations de combustion tout en épargnant les ressources naturelles et en évitant nuisances et pollutions.

Pour réduire les émissions de polluants lors de la combustion du charbon aux meilleurs coûts financier et écologique, plusieurs procédés sont envisageables au niveau des installations de combustion. Dans le cas particulier des oxydes d'azote ( $\text{NO}_x$ ), un procédé intéressant appelé reburning a été intensivement étudié aux Etats-Unis et permet de réduire considérablement ces émissions. Il nécessite d'une part l'utilisation d'un combustible additionnel (appelé combustible de reburning), différent ou non du combustible principal, et entraîne des modifications de la combustion au niveau foyer (étagement du combustible et de l'air de combustion).

Ce travail de thèse doit apporter un complément d'information sur ce procédé et par la même de comparer l'efficacité de deux types de combustible utilisé comme combustible additionnel (gaz naturel ou charbons) à une échelle semi-industrielle, pour plusieurs conditions opératoires. Cependant, pour la construction de nouvelles unités utilisant de nouveaux combustibles spécifiques ou pour justifier les modifications qu'impliquent la mise en œuvre de ce procédé sur d'anciennes installations, il est indispensable de développer de nouveaux outils permettant la prédiction de l'efficacité du reburning. Les données recueillies vont permettre d'élaborer une base de données et de valider un modèle du reburning.

Dans ce contexte industriel et environnemental, ce travail de thèse, financé en partie par l'ADEME, a été réalisé en collaboration avec le CERCHAR, le laboratoire de Catalyse de Lille (équipe L.G.C.A, UPRESA CNRS 8010) et le département Energétique Industrielle de l'Ecole des Mines de Douai.

Le mémoire s'articule en six grandes parties :

- la première partie présentera les oxydes d'azote et les impacts néfastes de leur émission dans l'atmosphère. La politique environnementale engagée en Europe (et par comparaison aux Etats-Unis) permettant de réduire ces émissions sera exposée. Différentes méthodes de réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  seront présentées, un état des lieux des connaissances et des applications du procédé reburning sera proposé.
- Comme notre objectif est d'étudier et de valider ce procédé sur un four pilote situé au CERCHAR, la deuxième partie présentera cette installation utilisée au cours de notre étude et les conditions expérimentales du reburning sur ce pilote.
- Les troisième et quatrième parties présenteront les expérimentations du reburning (modifications apportées au four, résultats obtenus) et caractériseront les influences des paramètres, sélectionnés au cours de notre étude, sur l'efficacité de dénitrification par le procédé reburning. Ces séries d'expériences ont été réalisées avec différents types de combustible (gaz naturel, charbons). Les résultats obtenus sur le pilote seront comparés à des données issues de différentes autres études afin de valider nos résultats et la méthode développée.

- La cinquième partie abordera le rôle que peuvent jouer les réseaux de neurones dans la modélisation du procédé. Ils seront appliqués plus précisément pour la prédiction des émissions de  $\text{NO}_x$  lors de l'application du reburning sur le four pilote du CERCHAR. L'objectif est d'élaborer un outil d'aide à la conduite permettant de piloter ce procédé.
- La dernière partie abordera la modélisation du procédé reburning sur le four pilote au moyen de la mécanique numérique des fluides : l'objectif sera de comparer les résultats avec ceux issus des expérimentations et de valider les modèles utilisés en prenant en compte les phénomènes physiques et chimiques en jeu.



# **PARTIE 1**

## **CONTEXTE DE L'ETUDE**



# Chapitre I

## Politique environnementale concernant la pollution par les oxydes d'azote

### Introduction

*Le questionnement scientifique, l'observation de changements climatiques et plus généralement les inquiétudes sur l'évolution de la planète s'accroissent depuis les trente dernières années. Dès lors se forge la conviction d'une influence déterminante des activités humaines et des modes de vie.*

*Jacques Labeyrie  
Directeur Scientifique de l'ADEME  
La lettre de l'ADEME n°76, avril-mai 2001*

Les oxydes d'azote sont des polluants importants, responsables de plusieurs problèmes liés à la pollution atmosphérique (impact sur la santé humaine et sur l'environnement, changement du climat). Ils deviennent le sujet d'une attention particulière au niveau de la réglementation nationale, européenne voire même mondiale (limitations des émissions). L'échange des connaissances sur la formation de ces polluants et sur les développements de nouvelles techniques permettant leur réduction devient de plus en plus important pour l'élaboration de la réglementation, dont le but est la réduction des émissions à des niveaux locaux et nationaux.

### I – L'azote et ses oxydes

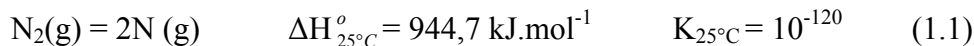
#### I-1 Propriétés moléculaires et thermodynamiques

##### I-1-1 L'azote

L'azote (N) [1] apparaît dans la nature principalement sous la forme d'azote moléculaire (N<sub>2</sub>), un gaz diatomique inerte et stable, représentant 78 % du volume de



l'atmosphère de la Terre. L'azote a tendance à former des liaisons multiples comme dans le cas de la molécule  $N \equiv N$ . L'azote terrestre se compose de  $^{14}N$  et de  $^{15}N$  selon un rapport  $^{14}N/^{15}N$  égal à  $272,0 \pm 0,3$ . L'isotope  $^{15}N$  est souvent utilisé comme traceur. La liaison N-N a pour distance 0,1097 nm dans le cas du  $N_2$  gaz et 0,115 nm dans le cas du  $N_2$  solide. La chaleur de dissociation est très importante :



Parce que la réaction est endothermique, la constante d'équilibre augmente avec la température. La solidité de la liaison de la molécule  $N_2$  est principalement responsable de son inertie chimique. L'énergie de la rupture de la triple liaison  $N \equiv N$  est équivalente à 6 fois celle de la simple liaison N-N. Par comparaison, l'énergie de rupture de la triple liaison  $C \equiv C$  est équivalente à 2,5 fois l'énergie de la liaison simple C-C. L'azote moléculaire a pour point de fusion,  $-210^\circ C$  et pour point d'ébullition normal,  $-196^\circ C$ .

### I-1-2 Les oxydes d'azote

L'azote [1, 2, 3, 4] forme avec l'oxygène cinq oxydes :  $N_2O$ , NO,  $N_2O_3$ ,  $NO_2$  ou  $N_2O_4$  et  $N_2O_5$ . Néanmoins, les principaux oxydes d'azote trouvés dans l'atmosphère sont le monoxyde d'azote (NO), le dioxyde d'azote ( $NO_2$ ) et le protoxyde d'azote ( $N_2O$ ) (figure 1.1). Ces trois oxydes sont présents dans l'atmosphère terrestre avec des concentrations estimées à 300 ppb pour le  $N_2O$  et à 10 voire 20 ppb pour le  $NO_2$ . Le  $N_2O$  est un gaz incolore, pas ou peu réactif chimiquement. Sa durée de vie dans la troposphère est de 120 à 150 ans. Les monoxyde et dioxyde d'azote (habituellement groupés sous le terme  $NO_x$ ) sont respectivement incolore et rouge-brun, modérément et peu réactifs. Ils ont une durée de vie de l'ordre de quelques jours.

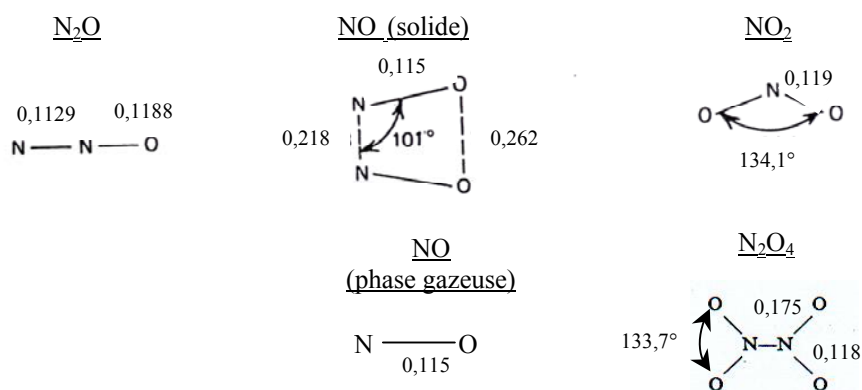


Figure 1.1 : Longueurs des liaisons en nm

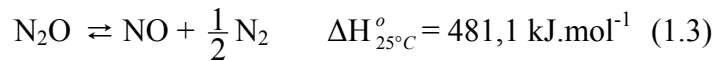
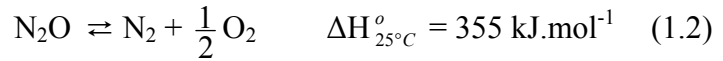
On trouve également des traces d'autres composés, oxydés ou réduits, présents dans l'air sous forme de gaz ou de fines particules solides ou liquides (nitrates, nitrites, acides organiques etc...) à des quantités très variables.

#### a- Le $N_2O$

En France, une majeure partie des émissions d'oxydes nitreux est attribuée aux sols agricoles et forestiers. D'autres sources importantes ont été identifiées telles que certains

procédés chimiques industriels (production d'acide adipique, glyoxylique et nitrique) et certains équipements de combustion (stationnaires et mobiles).

Son point de fusion est à  $-90,8\text{ °C}$  et son point d'ébullition à  $-88,5\text{ °C}$ . La décomposition thermique du  $\text{N}_2\text{O}$  se fait dans l'intervalle de température  $585\text{-}850\text{ °C}$  (il nécessite une énergie d'activation de  $246\text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ ) et inclut notamment les réactions suivantes :



Comparé aux autres oxydes d'azote, le protoxyde d'azote est peu réactif. Néanmoins, avec l'hydrogène, il peut réagir suivant :



Lorsque le carbone ou le soufre, dont les oxydes ont des enthalpies de formation importantes, s'oxyde en présence de  $\text{N}_2\text{O}$ , ils s'allument et brûlent plus vigoureusement que dans de l'air, formant des oxydes et de l'azote :

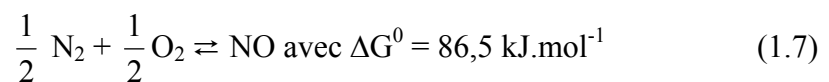


Par ailleurs, le  $\text{N}_2\text{O}$  peut réagir avec le  $\text{CO}$  pour former du  $\text{CO}_2$  par la réaction :



### b-Le NO

D'un point de vue de rejet industriel, le monoxyde d'azote est le plus important des oxydes de l'azote. Son point de fusion est à  $-163,6\text{ °C}$  et son point d'ébullition à  $-151,8\text{ °C}$ . La réaction directe de l'azote avec l'oxygène nécessite de hautes températures :



$$\text{et } \Delta H_{25^\circ\text{C}}^\circ = 90,24\text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$$

Le monoxyde d'azote, qui est, d'un point de vue thermodynamique, instable à  $25\text{ °C}$  et à  $1\text{ atm}$ , se combine avec  $\text{O}_2$  pour former un gaz rouge brun, le dioxyde d'azote  $\text{NO}_2$ , par la réaction :



La décomposition thermique de  $\text{NO}_2$  (réaction inverse) commence vers  $600\text{ °C}$  et est pratiquement complète à  $1500\text{ °C}$ . Sous la pression et à une température de  $30\text{-}50\text{ °C}$ , il réagit chimiquement non seulement pour former  $\text{NO}_2$  mais également  $\text{N}_2\text{O}_3$  voire  $\text{N}_2\text{O}$  :



Aux températures supérieures à 1000 °C, la concentration en NO est majoritaire par rapport à la concentration en NO<sub>2</sub>. Lors de nos expérimentations, nos mesures qui s'effectuent à des températures de 600-900 °C, prendront en compte la concentration en NO et en NO<sub>2</sub> (annexe 1).

Le NO peut également réagir :

- avec des oxydes de soufre par les réactions suivantes :



- avec le CO par la réaction :



- avec de l'ammoniac par la réaction :

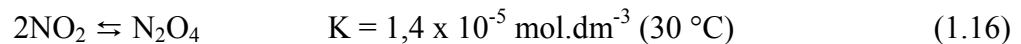


### c-Le NO<sub>2</sub>

Produit de l'oxydation de NO, il peut aussi se former à partir de N<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et de N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> par la réaction :



Le dioxyde ou bioxyde d'azote et son dimère, l'hémitétroxyde (N<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) (gaz incolore facilement condensable) sont dans un équilibre dépendant de la température :



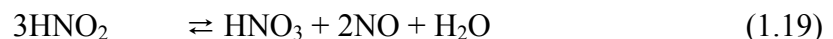
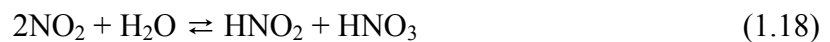
Pour une température supérieure à 100 °C, la concentration en NO<sub>2</sub> est prépondérante par rapport à la concentration en N<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (annexe 1). Lors de nos mesures effectuées à 600-900 °C, nous prendrons en compte uniquement les concentrations en NO<sub>2</sub>.

Le NO<sub>2</sub> réagit également :

- avec l'hydrogène :



- et avec l'eau :



## I-2 Principales sources d'émissions des oxydes d'azote

Le N<sub>2</sub>O se forme principalement à partir de sources naturelles (processus biologiques et anaérobiques). Il se forme également à partir de la combustion naturelle (feux de forêts) ou anthropique et à partir de certaines activités chimiques. Les NO<sub>x</sub> se forment, quant à eux, principalement lors de l'utilisation de combustibles fossiles dans des chambres à combustion fixes ou mobiles et lors de la combustion de biomasses (feux de forêts...). L'oxydation dans

l'atmosphère de l'ammoniac issu des activités industrielles chimiques est aussi une source de formation des NO<sub>x</sub>. Les autres composés azotés, présents dans l'atmosphère sous des formes différentes, résultent des procédés chimiques et photochimiques de destruction des NO<sub>x</sub> dans la troposphère [4, 5].

Les gaz de combustion émis par les sources fixes et mobiles contiennent du NO, NO<sub>2</sub> et N<sub>2</sub>O. En réalité, le NO est normalement majoritaire pour des raisons expliquées en annexe 1. En pratique, dans les normes, il est habituel de combiner NO et NO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub> et de donner les valeurs en ppm volumiques voir en mgNO<sub>2</sub>.Nm<sup>-3</sup>. La relation entre les deux est la suivante :

$$\text{NO (mgNO}_2\text{.Nm}^{-3}\text{)} = 2,05 \cdot \text{NO (ppm)} \quad (1.20)$$

Par ailleurs, pour éviter les ambiguïtés de dilution des fumées, les teneurs sont re-calculées à 6 % d'oxygène pour des NO<sub>x</sub> émis à partir de combustible solide. La relation est la suivante :

$$\text{NO (mgNO}_2\text{.Nm}^{-3}\text{ à 6 \% d'O}_2\text{)} = \text{NO (mgNO}_2\text{.Nm}^{-3}\text{)} \cdot \frac{15}{(21 - O_{2\text{réelle}})} \quad (1.21)$$

où O<sub>2réelle</sub> est la teneur réelle en oxygène.

### **I-3 Impacts des oxydes d'azote sur la santé humaine et sur l'environnement**

La présence des oxydes d'azote dans l'air provoque des risques sur la santé humaine et sur l'environnement. Les réactions chimiques des oxydes d'azote dans l'atmosphère favorisent la formation d'ozone dans la troposphère (pollution photochimique) et contribuent à la formation de pollution acide. De plus, les retombées atmosphériques des composés azotés provoquent une prolifération excessive de certains organismes dans les réservoirs d'eau et les sols, ce qui mènent à leur désoxygénation (eutrophisation). Par ailleurs, il est important de noter que le N<sub>2</sub>O est un gaz contribuant au réchauffement de l'atmosphère de la planète (gaz à effet de serre direct). Parmi les NO<sub>x</sub>, le dioxyde d'azote présente les plus grands risques pour la santé humaine. C'est un gaz nocif pour les poumons entraînant des problèmes respiratoires ou de l'asthme chez les personnes sensibles [4].

Afin de lutter contre ces effets (acidification, pollution photochimique et eutrophisation), des protocoles ont été signés à Genève (1979) et à Göteborg (1999) contre la pollution à longue distance et aux travers des frontières. Des recommandations ont été faites par l'Organisation Mondiale de la Santé concernant le niveau d'exposition au NO<sub>2</sub> à ne pas dépasser afin de protéger la population des effets indésirables. La législation européenne fixe des seuils de concentrations d'oxydes d'azote de 40 µg.m<sup>-3</sup> pour une exposition sur l'année et de 200 µg.m<sup>-3</sup> pour une exposition d'une heure [4].

En conclusion, mis à part l'impact direct sur la santé humaine, la présence des oxydes d'azote contribue à trois phénomènes de pollution de l'air : la pollution acide, la pollution photochimique et l'eutrophisation des eaux et des sols. Les oxydes d'azote sont responsables d'environ 30 % de l'acidification des pluies et le NO<sub>2</sub> est le principal précurseur de la pollution photochimique, notamment de la formation d'ozone à basse altitude [4].

### **I-4 Impacts sur le changement de climat**

La présence et l'accentuation des émissions des oxydes d'azote dans l'air concourent directement ou indirectement au phénomène de réchauffement de l'atmosphère par l'accroissement de l'effet de serre (le N<sub>2</sub>O est un gaz à effet de serre direct et les NO<sub>x</sub>, des gaz

à effet de serre indirect). Plusieurs auteurs s'accordent à dire que l'ozone troposphérique, formé à partir des réactions chimiques des oxydes d'azote dans l'atmosphère, a contribué à 10 % de l'augmentation de l'effet de serre sur la période 1980/1990, menant à un réchauffement de la planète [4, 5].

## **II – Politique de l'Union Européenne concernant la pollution par les oxydes d'azote**

### **II-1 Emissions de NO<sub>x</sub> en France et en Europe**

Les oxydes d'azote sont impliqués dans la pollution de l'air à échelle locale comme précurseurs de l'ozone troposphérique, à une échelle régionale comme substance contribuant à l'acidification et à échelle mondiale comme gaz à effet de serre indirect. Les oxydes d'azote sont principalement produits lors de la combustion de combustibles fossiles (pétrole, charbon...) et de la biomasse. Aujourd'hui, les NO<sub>x</sub> sont principalement dues aux sources mobiles (transport routier, chemin de fer, aviation, machineries dans l'agriculture et dans l'industrie, figure 1.2) [5].

#### **II-1-1 Emissions des oxydes d'azote en France**

Les émissions de NO<sub>x</sub> ont considérablement augmenté en France dans la période 1960-1973 principalement en raison du développement de l'économie au lendemain de la deuxième guerre mondiale, du faible coût de l'énergie et de l'absence d'une politique environnementale. Durant cette période, les émissions ont été multipliées par un facteur deux. Néanmoins, les crises pétrolières des années 70 qui ont entraîné l'augmentation du prix du pétrole et la politique contre le gaspillage de l'énergie ont stabilisé les émissions sur la période 1973-1980.

La part croissante de l'électricité nucléaire et l'arrêt de plusieurs centrales thermiques classiques au début des années 80 n'ont que faiblement diminué ces émissions. La fin des années 80 et le début des années 90 ont vu l'accroissement considérable du trafic routier en France, ce qui a eu pour conséquence l'augmentation des émissions d'oxydes d'azote [5].

Depuis ces dix dernières années, les émissions diminuent sans cesse notamment grâce aux améliorations technologiques favorisant le contrôle des émissions de NO<sub>x</sub> dans le secteur automobile et industriel. Les objectifs pour 2010 fixés notamment par le protocole de Göteborg et par les directives européennes sont désormais d'accentuer la réduction des NO<sub>x</sub> afin d'atteindre à cette date-là les mêmes niveaux d'émissions que ceux observés en 1962. En France, nous sommes passés, entre 1990 et 1997, de 1800 à 1600 ktonnes de NO<sub>x</sub> par an. L'objectif sera de diminuer ces émissions pour atteindre 800 ktonnes de NO<sub>x</sub> par an d'ici 2010. La réduction des oxydes d'azote en France a été de l'ordre de 28 % sur la période 1990-99 [5].

La figure 1.2 présente les différentes sources d'émissions des NO<sub>x</sub> pour la France. 74 % des émissions d'oxydes d'azote sont dues aux sources mobiles contre 24 % dues aux sources fixes.

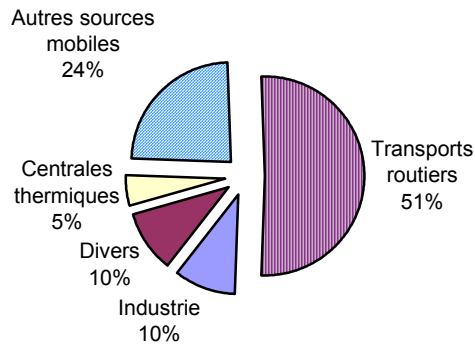


Figure 1.2 : Sources des émissions de NO<sub>x</sub> en France (source ADEME - 1999)

### II-1-2 Emissions des oxydes d'azote à l'échelon européen

Selon l'Agence européenne de l'Environnement, en 1998, le Royaume-Uni, l'Allemagne, l'Italie, la France et l'Espagne ont été les 5 principaux pays européens producteurs d'oxydes d'azote. Pour l'ensemble de ces pays, les deux-tiers environ des émissions ont pour origine les sources mobiles. Les grandes installations de combustion sont responsables de 20 % des émissions de NO<sub>x</sub> dans l'Union européenne.

### II-2 La législation européenne

Une série de directives et d'actions fixées par la Communauté Européenne a pour objectifs de réduire la pollution par les oxydes d'azote et de limiter les risques sur la santé humaine et sur l'environnement, en fixant des valeurs limites d'émissions (VLE) et des seuils d'alerte au-delà desquelles les activités industrielles et le trafic routier doivent être réduits. Parallèlement à cette législation, la Communauté européenne finance plusieurs projets de recherche, de développement et de démonstration dans le domaine des technologies propres permettant pour certaines d'entre elles de réduire les émissions d'oxydes d'azote [5, 6, 7].

#### II-2-1 La directive 84/360/EEC

La directive 84/360/EEC date du 28 juin 1984 et a pour but la lutte contre la pollution de l'air d'origine industrielle. Elle a été mise en place en juillet 1987 et s'applique aux industries énergétiques, chimiques, métallurgiques, de papeteries, de déchets et de minerais. Cette directive ne contient pas de valeurs limites d'émissions et comporte un ensemble de mesures et de procédures pour prévenir et réduire la pollution atmosphérique (autorisation préalable). Actuellement, elle ne concerne plus que les installations existantes et non modifiées. Pour ces installations, les états membres doivent prendre des mesures afin de les adapter progressivement aux Meilleures Techniques Disponibles (M.T.D.).

#### II-2-2 Les directives 88/609/EEC et 2001/80/EC

La directive 88/609/EEC date du 24 novembre 1988 et est appelée directive GIC (Grandes Installations de Combustion). Elle concerne la limitation des émissions de certains polluants provenant des installations de combustion (chaudières) de plus de 50 MWth. Cette directive fixe des valeurs limites d'émissions pour les oxydes de soufre (SO<sub>2</sub>), les oxydes d'azote (NO+NO<sub>2</sub>) et les poussières en fonction de la puissance thermique et du combustible

utilisé. Ces polluants sont acidifiants et sont les précurseurs de l'ozone troposphérique. L'arrêté du 27 juin 1990 est la transcription de cette directive en droit français.

En juin 2000, les ministres européens ont pris une position commune sur la révision de cette directive concernant les limites d'émissions dans l'air de certains polluants. Cela a permis d'aboutir à l'adoption en octobre 2001 de la nouvelle directive GIC 2001/80/EC (transcrite en droit français en novembre 2001). Entrée en vigueur en novembre 2001, elle fixe des limites d'émission beaucoup plus sévères qu'auparavant et concerne pour la première fois les turbines à gaz. Elle a pour but de limiter la pollution de l'air par les nouvelles installations de combustion en liaison avec les récents progrès techniques effectués dans ce secteur. Elle encourage la génération combinée de chaleur et d'énergie et spécifie des valeurs limites d'émissions notamment dans le cas de la combustion de biomasses. Cette directive concerne toutes les installations de combustion d'une puissance égale ou supérieure à 50 MWth incluant les installations existant avant 1987. Les nouvelles installations, mises en service après l'entrée en vigueur de cette nouvelle directive, seront soumises à des limitations deux fois plus strictes que celles actuelles. Les installations, mises en service entre juillet 1987 (entrée en vigueur de l'ancienne directive) et la date de l'entrée en vigueur de cette nouvelle directive, seront soumises aux limitations fixées par la directive 88/609/EEC. Pour les installations mises en service avant le 1<sup>er</sup> juillet 1987, les Etats Membres pourront soit prendre les mesures appropriées pour que ces installations respectent les limitations imposées pour les installations mises en service après le 1<sup>er</sup> juillet 1987 et avant la date de l'entrée en vigueur de la nouvelle directive soit adopter un plan de réduction des émissions sur un plan national en respect aux annexes de la directive. Le détail des valeurs limites pour les NO<sub>x</sub> est présenté dans le tableau 1.1 pour des combustibles solides, liquides et gazeux. La mesure en continu des oxydes d'azote devient obligatoire pour des installations nouvelles de plus de 100 MWth et sera étendue à partir du 31/12/2003 à toutes les installations de plus de 100 MWth construites avant 2001.

Puissance de l'installation de combustion	Installation existante avant 2002			Nouvelle installation		
	50 à 100 MWth	100 à 500 MWth	> 500 MWth	50 à 100 MWth	100 à 300 MWth	> 300 MWth
Combustibles solides <sup>(1)</sup>	600	600	500	400	200	200
Combustibles liquides <sup>(2)</sup>	450	450	400	400	200	200
Gaz naturel <sup>(2)</sup>	300	300	200	150	150	100
Autres gaz <sup>(2)</sup>	300	300	200	200	200	200

Tableau 1.1 : Valeurs limites des émissions de NO<sub>x</sub> (mesure du NO<sub>2</sub>) exprimées en mg.Nm<sup>-3</sup> de gaz sec à 6 % d'O<sub>2</sub> <sup>(1)</sup> ou à 3 % d'O<sub>2</sub> <sup>(2)</sup> pour différents types de combustibles (J.O. des Communautés européennes, L 309/1, 27.11.2001)

### II-2-3 La directive 96/61/EC

La directive 96/61/EC, datant du 24 septembre 1996 et mieux connue sous le nom de directive I.P.P.C. (Integrated Prevention Pollution and Control), a des points communs avec la directive 84/360/EEC. Dans les deux cas, les mécanismes de contrôle et de prévention fonctionnent sur le principe de permis mais alors que la vieille directive est axée sur la pollution de l'air, la nouvelle directive prend en compte tous les aspects environnementaux en

relation à la production. Cette directive s'applique à toutes les nouvelles installations aussi bien qu'aux installations qui sont considérablement modifiées. Les installations existantes et non modifiées ne sont pas encore concernées. Une période de transition additionnelle est accordée jusqu'en octobre 2007. La directive concerne beaucoup d'activités industrielles différentes (grandes installations de combustion, installations de l'industrie chimique et de la production d'acier, de verre, de ciment et de métaux non-ferreux) mais ne s'applique pas au traitement des eaux usées municipales, aux sources mobiles ni aux autres installations de petite taille.

La directive 96/61/EC ou directive IPPC spécifie que chaque Etat Membre de l'Union Européenne doit introduire un système opérationnel de permis pour certaines catégories d'activités industrielles. Le permis doit inclure des conditions et des valeurs limites d'émissions basées sur le principe des Meilleures Techniques Disponibles (M.T.D. ou Best Available Technology, B.A.T.) mais prenant en compte également des considérations locales comme les caractéristiques de l'installation et les impératifs environnementaux. L'objectif de la directive IPPC est néanmoins plus préventif que curatif. Elle a pour but de promouvoir l'innovation technologique en Europe et interdit aux différentes autorités de prescrire, dans les permis, l'utilisation d'une MTD spécifique.

L'appellation « meilleures techniques disponibles » signifie le stade technologique le plus avancé et le plus efficace dans le développement des activités et les méthodes opératoires (design, construction, maintenance et fonctionnement de l'installation), sous des conditions viables économiquement et techniquement (faisabilité pratique de ces techniques avec la prise en compte des coûts pour les opérateurs et les avantages pour la protection de l'environnement), permettant, en principe, d'atteindre des valeurs limites d'émission afin d'empêcher et/ou de réduire les émissions et les impacts de ces activités sur l'environnement.

Afin d'obtenir des informations et d'aider les Etats Membres dans leur système de permis, la Commission européenne organise un échange d'information par le biais de forum sur les MTD dans les secteurs industriels concernés par la directive. Les résultats de cette activité sont les documents de référence MTD, habituellement appelés BREF's (**BAT REFERENCE**) analysant les techniques qui sont considérées satisfaire les critères MTD de la directive. Ces documents ne sont pas des prescriptions mais des guides pour les différentes autorités compétentes et responsables à délivrer des permis aux installations concernées par la directive IPPC. Pour chaque BREF, le Bureau européen IPPC de Séville co-ordonne un groupe de travail composé d'experts provenant de l'industrie ou de diverses organisations environnementales.

#### **II-2-4 La directive 2001/81/CE sur les plafonds nationaux d'émissions de certains polluants (« National Emission Ceilings » ou NECs )**

En juin 2000, le conseil européen des ministres a également voté une position commune concernant les plafonds nationaux d'émissions pour certains polluants atmosphériques, en accord avec la révision de la directive 88/609/EC. Cette position commune a abouti à l'adoption de la directive 2001/81/CE transcrit en droit français en octobre 2001.

Cette directive, appelée directive NEC, a pour but la limitation des émissions de quatre polluants acidifiants, eutrophiants et précurseurs de l'ozone troposphérique (oxydes d'azote, dioxyde de soufre, composés organiques volatiles et ammoniac) afin d'accentuer la protection



de l'environnement et de la santé humaine. Elle fixe des valeurs maximales d'émissions nationales à respecter d'ici 2010 (tableau 1.2).

	SO <sub>2</sub> (kt)	NO <sub>x</sub> (kt)	C.O.V. (kt)	NH <sub>3</sub> (kt)
Allemagne	520	1051	995	550
Espagne	746	847	662	353
France	375	810	1050	780
Belgique	99	176	139	74
Italie	475	990	1159	419
Royaume-Uni	585	1167	1200	297
Union Européenne	3850	6519	6510	3110

*Tableau 1.2 : Plafonds nationaux d'émission (par an)  
pour quelques états membres de l'Union Européenne  
(J.O. des Communautés européennes, L 309/29, 27.11.2001)*

### II-2-5 Les directives 96/62/EC et 1999/30/EC sur la qualité de l'air

Les directives 96/62/EC et 1999/30/EC spécifient des normes de qualité environnementale sur la qualité de l'air. De telles normes de qualité sont à la base des valeurs limites d'émission des polluants et autres conditions supplémentaires liées aux MTD. Dans le cas où l'utilisation des MTD n'est pas suffisante pour atteindre ces normes de qualité, d'autres mesures plus drastiques doivent être appliquées.

La directive 96/62/EC a donc pour but de maintenir la qualité de l'air ambiant. Elle pose des valeurs limites et des seuils d'alerte pour un certain nombre de polluants (incluant les oxydes d'azote) dans l'air ambiant, au sein d'agglomérations de plus de 250.000 habitants.

Pour tenir compte du temps nécessaire à l'implantation des mesures permettant d'obtenir une meilleure qualité d'air ambiant, le conseil européen des ministres a instauré une marge de tolérance pour la valeur limite. Cette marge doit être réduite par des procédures spécifiques afin d'atteindre la valeur limite à la fin d'une période spécifiée.

Dans cette optique, la directive 1999/30/EC permet de considérer dans le cas des oxydes d'azote :

- une valeur limite horaire de 200 µg.m<sup>-3</sup> NO<sub>2</sub> (à ne pas dépasser plus de 18 fois par an) et annuelle de 40 µg.m<sup>-3</sup> NO<sub>2</sub> pour la protection de la santé humaine. La marge de tolérance est de 50 % à réduire à partir du 1<sup>er</sup> janvier 2001 d'égal pourcentage tous les 12 mois pour atteindre 0 % en 2010 ;
- une valeur limite annuelle de 30 µg.m<sup>-3</sup> pour la protection de la végétation ;
- un seuil d'alerte de 400 µg.m<sup>-3</sup> mesuré sur trois heures consécutives à des points représentatifs de la qualité de l'air.

### II-3 Le programme européen CAFE (« Clean Air For Europe »)

Le programme CAFE est une analyse technique et une préparation politique qui a été adopté par la Commission européenne le 7 mai 2001. Il a pour but de mener une stratégie globale de la qualité de l'air accompagnée de propositions législatives en 2004. Le principal objectif de ce programme sera une approche plus intégrée de la politique de qualité de l'air,

élargissant son champ d'action pour inclure toutes les sources d'émissions. Néanmoins, incapable de tout contrôler, il intégrera le développement ou la révision des normes de qualité, des objectifs de valeurs limites et des plafonds nationaux d'émission d'ici 2004. A court terme, ce programme se focalisera sur les polluants traditionnels de l'air, notamment les oxydes d'azote (connaissance des émissions à partir des sources fixes et des potentiels de réduction). A long terme, le programme CAFE doit aboutir à l'élaboration d'une stratégie thématique sur la pollution atmosphérique permettant, en liaison avec la politique du changement de climat, de négocier en parallèle les émissions de gaz à effet de serre et celles de gaz polluants de l'air [5].

Dans l'ensemble, la combinaison de ces mesures représente une bonne base permettant de minimiser les risques posés par les oxydes d'azote sur la santé humaine et sur l'environnement [5].

### **III – Politique environnementale des Etats-Unis**

#### **III-1 Une réglementation datant de 1955**

Au lendemain de la deuxième guerre mondiale, aux Etats-Unis, la forte pression du public a abouti au développement d'une politique nationale visant à réduire la pollution de l'air. Cette pression s'est ainsi concrétisée par le vote d'une loi fédérale, le "Clean Air Act", permettant de réguler les émissions de polluants dans l'air provenant de diverses sources mobiles ou fixes [8].

Cette loi américaine, votée en 1955, n'imposait pas encore des limites d'émissions de NO<sub>x</sub> mais il était clair que ces émissions allaient être régulées dans les années suivantes. Toutefois, bien que de nouvelles législations aient été votées et intégrées au « Clean Air Act » dans les années 60, aucune limitation nationale n'a été adoptée à la fin de la décennie. Les premières régulations aux Etats-Unis ont finalement été votées en 1969 par un district local du contrôle des émissions de NO<sub>x</sub> du Comté de Californie. La limitation était instaurée pour des installations de combustion.

L'Agence américaine de la Protection de l'Environnement (« U.S. E.P.A. ») a été créée au début des années 70 [8]. Dès lors, des modifications ont été faites concernant le « Clean Air Act » et des normes nationales sur la qualité de l'air ambiant (« National Ambient Air Quality Standards » ou NAAQS) ont été introduites en 1971 afin de protéger la santé humaine et l'environnement. Le but de cette loi était d'établir dès 1975 des normes de qualité à atteindre dans tous les états. Chaque état a donc été amené à développer un plan de mise en oeuvre (State Implementation Plan ou S.I.P.) approuvé par l'E.P.A.. Dans ce plan, chaque état décrit comment il va atteindre et maintenir les minima requis par l'E.P.A. Ces limitations sont basées sur la meilleure technologie de contrôle disponible (« Best Available Control Technology » ou B.A.C.T.), faisable au point de vue technologique et disponible commercialement.

#### **III-2 Différents amendements**

Le Clean Air Act a été amendé en 1977 afin d'établir de nouveaux objectifs plus réalistes concernant les normes de qualité. En effet, certaines zones du pays n'ont pas réussi à atteindre les précédentes normes. Dans les années 80, les limitations nationales sur les installations de combustion restent inchangées.

Les amendements de 1990 du Clean Air Act permettent d'établir une législation environnementale à la fois complexe et complète grâce auxquels l'E.P.A. est autorisée à établir des normes pour un certain nombre de polluants tels que le SO<sub>2</sub> et les NO<sub>x</sub>. Ils ont également eu pour intention de résoudre différents problèmes insuffisamment traités comme les pluies acides, la toxicité de l'air, la diminution de la quantité d'ozone stratosphérique, l'augmentation de teneur en ozone au niveau du sol [8].

L'E.P.A. distingue deux limites différentes d'émissions pour les polluants de l'air ambiant : une limitation primaire permet de protéger la santé humaine et une limitation secondaire permet d'éviter des dégradations au point de vue environnemental. Une zone géographique qui respecte les limitations d'émissions primaires est dite une zone acquise. Inversement, une zone ne respectant pas ces limites est dite une zone non acquise. Bien que la loi ait été votée en 1970, beaucoup de zones urbaines ne respectent pas les limites d'émissions primaires pour au moins un polluant. Il est estimé que près de 90 millions d'Américains vivent dans des zones non acquises. Non seulement les zones non acquises doivent atteindre les seuils fixés par l'E.P.A., mais elles doivent également montrer leur progression dans la réduction des émissions de polluants atmosphériques.

Les amendements de 1990 sont plus stricts avec les grandes sources d'émissions de polluants. Néanmoins, l'E.P.A. régule également les émissions de polluants issues de plus petites sources. Cette régulation des émissions de polluants d'air est faite en identifiant les différentes catégories (installations chimiques, de combustion...) et en répertoriant les différents polluants chimiques. Ces amendements ont pour but de réduire les émissions des installations de combustion existantes et, par des normes fédérales d'exploitation de nouvelles sources (Federal New Source Performance Standards ou F.N.S.P.S.), de limiter les émissions permises pour les nouvelles installations. Ainsi, sous le volet I des amendements du Clean Air Act de 1990, les exploitants de chaudières de tout type situées dans une zone dite non acquise auraient dû efficacement contrôler les émissions de NO<sub>x</sub> dans les fumées en installant un système de contrôle très efficace, cela avant l'année 2000.

Contrairement à la législation environnementale européenne qui fixe des limitations de quantité de NO<sub>x</sub> en fonction du volume de fumées dégagées par l'installation, pour la plupart des installations industrielles nord-américaines, la limitation requise est exprimée en fonction de la puissance énergétique délivrée : elle est de l'ordre de 0,15 lb / MillionBtu (0,2325 g<sub>NOx</sub> / kWh) à atteindre avant 2003.

Pour des unités équipées de brûleurs bas NO<sub>x</sub>, les émissions de base sont de l'ordre de 0,5 lb / MillionBtu (0,775 g<sub>NOx</sub> / kWh). La réduction des NO<sub>x</sub> doit être de l'ordre de 70 %. Pour d'autres installations classiques où les émissions de base sont de l'ordre de 1,5 lb / MillionBtu (2,325 g<sub>NOx</sub> / kWh), la réduction doit être de 90 %. Par ailleurs, sous le volet IV des amendements de 1990, une réduction de 2 millions de tonnes dans les émissions de NO<sub>x</sub> par rapport aux niveaux de 1980 aurait dû être obtenue en 2000. Des assouplissements dans les dates peuvent être obtenus en fonction du type de chaudière. Comme les états imposent comme conditions l'utilisation de technologie de contrôle disponible raisonnablement (Reasonably Available Control Technology ou R.A.C.T.) pour les différentes sources de NO<sub>x</sub>, les exploitants de grandes installations industrielles continuent à rechercher les méthodes de réductions de NO<sub>x</sub> efficaces et à faible coûts.

Bien que la loi Clean Air Act soit une loi fédérale qui couvre le pays entier, les états ont chacun un plan de mise en œuvre pour atteindre les limitations de NO<sub>x</sub>. Jusqu'en

décembre 2000, les normes de la Californie ont été les plus strictes obligeant des réductions des émissions de NO<sub>x</sub> de 75 %. Néanmoins, depuis cette date, le Texas a adopté les limitations les plus sévères du pays, obligeant les plus grandes installations à des réductions des émissions de NO<sub>x</sub> de l'ordre de 90 %. Ainsi, pour une petite unité ne dépassant pas 40 millions Btu/h (12 MWh), la limitation est de 0,036 lb / million Btu (0,056 g<sub>NOx</sub> / kWh). Pour des unités plus importantes, la limitation est de 0,01 lb / million Btu (0,0155 g<sub>NOx</sub> / kWh).

La loi nationale sur les émissions de NO<sub>x</sub> par des chaudières à charbon (volet IV des amendements de 1990) adopte une stratégie en deux phases pour réduire les émissions de NO<sub>x</sub>. La première phase (1996-2000) a permis de réduire de 400.000 tonnes les émissions de NO<sub>x</sub> par an. Ces réductions ont été obtenues par l'installation de brûleurs bas-NO<sub>x</sub> sur des chaudières frontales et tangentielles. Les limites d'émissions de NO<sub>x</sub> sont passées de 0,50 à 0,46 lb / Million Btu pour des chaudières frontales (0,775 à 0,713 g<sub>NOx</sub> / kWh) et de 0,45 à 0,40 lb / Million Btu pour des chaudières tangentielles (0,70 à 0,62 g<sub>NOx</sub> / kWh). La deuxième phase concerne d'autres types de chaudière et aura pour but de réduire de 820.000 tonnes par an les émissions de NO<sub>x</sub>.

En 1997, E.P.A. a révisé les normes de qualité de l'air ambiant du Clean Air Act en se basant sur de nouveaux critères scientifiques, cela afin de limiter la production d'ozone troposphérique. Pour faire face à cette réglementation de plus en plus stricte, des études de recherche et développement ont été engagées sur trois décennies : elles ont été de plus en plus axées sur les émissions de NO<sub>x</sub> et sur leurs méthodes de réduction.

## **IV – Politique environnementale de la SNET**

### **IV-1 Présentation de la SNET**

Créée le 1er janvier 1995, la SNET [9] est l'entité regroupant les activités électriques du groupe Charbonnages de France, héritière d'un demi-siècle d'expérience des centrales minières. La SNET exploite neuf unités de production d'électricité réparties en cinq sites qui sont exploitées par deux filiales: la Société d'Électricité et de Thermique du Nord Est (SETNE), et la Société d'Électricité et de Thermique du Centre et du Midi (SETCM). Ces outils de production sont complétés par un centre de recherche, le CERCHAR et par une société spécialisée dans la valorisation des cendres de centrales : SURSCHISTE.

Les neuf unités de production fonctionnent avec du charbon, ce qui représente une puissance totale installée de 2 600 MWe. Les équipements les plus récents et performants sont deux tranches à Charbon Pulvérisé (CP) de 600 MWe et deux Lits Fluidisés Circulants (LFC) de 125 et 250 MWe de la Centrale Émile Huchet (SODELIF) à Carling, Moselle et de la Centrale de Provence (SOPROLIF) à Gardanne, Bouches-du-Rhône. Avec ces moyens, en 2000, la SNET a produit un total de 8,8 TWh fournis essentiellement sur le réseau électrique d'EDF.

### **IV-2 Respect de l'environnement**

La politique de la SNET dans le domaine de la protection de l'environnement vise aujourd'hui l'amélioration de l'efficacité énergétique et la réduction de l'impact environnemental (réduction des émissions atmosphériques comme le CO<sub>2</sub>, un des gaz responsables de l'effet de serre et respect des limitations environnementales) en modernisant

les sites (meilleure préparation des combustibles et meilleure conduite de la combustion) et en utilisant des technologies performantes (« charbon propre »).

Le développement de la **filière à lit fluidisé circulant (L.F.C.)** permet de combiner l'amélioration du rendement et la réduction des rejets atmosphériques (SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>). Cette technique particulière, qui allie une relativement basse température de combustion, une injection étagée de l'air de combustion et une injection de calcaire pulvérulent, permet de respecter, en faisant beaucoup mieux, les normes d'émissions admises aujourd'hui. C'est ainsi que la centrale de Provence a remplacé une chaudière au charbon pulvérisé devenue obsolète par un LFC qui a été mis en service en 1996. Cette nouvelle installation est la propriété de SOPROLIF, société dans laquelle la SNET est partenaire d'EDF. Cette rénovation a permis de diviser les émissions, mesurées en grammes / kWh, pour le SO<sub>2</sub> par un facteur 23 et pour les NO<sub>x</sub> par un facteur 3.

Les centrales au **charbon pulvérisé** sont amenées à maîtriser les trois principaux polluants atmosphériques que sont les poussières, le dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>) et les oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>). Toutes les centrales au charbon sont ainsi équipées de filtres chargés de dépoussiérer les fumées avant leur rejet à la cheminée (la centrale de Lucy, Saône et Loire, a pu décupler l'efficacité de son dépoussiéreur électrostatique, faisant tomber ses émissions de 2,5 à 0,2 grammes de poussières/kWh entre 1993 et 1997). Le vrai problème est celui des SO<sub>2</sub> et NO<sub>x</sub>. Pour de telles centrales, la solution peut passer par un traitement aval des fumées, avec installation dans un premier temps d'une unité de désulfuration, et à moyen terme d'une unité de dénitrification. L'inconvénient de ces procédés est le montant élevé des investissements et des frais d'exploitation. Aussi la filière "charbon pulvérisé et traitement aval des fumées" peut être considérée comme moins intéressante pour de telles installations ; les recherches actuelles s'orientent donc vers des modifications de la combustion intrinsèquement propre à la chaudière.

#### IV-3 Mission du CERCHAR

Centre technique intégré à la SNET, le CERCHAR (Centre d'Etudes et de Recherches de la Combustion) [9], fournit au groupe et à tous les opérateurs énergétiques, des prestations de recherche et d'appui technique sur :

- l'optimisation de la combustion,
- le développement et l'amélioration des procédés,
- la réduction des polluants,
- le traitement et la valorisation des résidus.

Concernant les émissions d'oxydes d'azote, le CERCHAR est amené à s'intéresser à leur prédiction sur des installations de la SNET fonctionnant au charbon pulvérisé. Il est également amené à étudier différentes technologies, simples et économiquement supportables par les industriels ou exploitants de centrales thermiques, pouvant être installées sur des centrales existantes (« retrofitting ») et permettant d'atteindre les seuils requis par la législation environnementale (directives). La thèse s'inscrit dans cet objectif en étudiant la réduction des émissions de NO<sub>x</sub> par le procédé *reburning*.

# Chapitre II

## Emission et réduction des NO<sub>x</sub>

### Introduction

Au fil des années, la réglementation des émissions de polluants atmosphériques (en particulier les oxydes d'azote) est devenue de plus en plus stricte ; des limites d'émissions ont peu à peu été fixées pour les installations industrielles (voir chapitre précédent). Les installations de combustion doivent respecter ces limitations en réduisant en particulier leurs émissions de NO<sub>x</sub>. Dans ce contexte, les exploitants d'installations industrielles sont amenés à s'intéresser aux différentes technologies permettant d'atteindre les seuils requis permettant toutefois de conserver des coûts d'exploitation économiquement supportables.

Plusieurs méthodes de réduction des émissions de NO<sub>x</sub> sont possibles pour les installations de combustion : le contrôle de la combustion avec notamment l'emploi de brûleurs bas-NO<sub>x</sub>, de l'étagement de l'air (Over Fire Air, O.F.A.) ou de l'étagement du combustible (*reburning*) ; le traitement des fumées (S.C.R. ou réduction sélective catalytique et S.N.C.R. ou réduction sélective non catalytique) [3, 10].

### I – Formation des oxydes d'azote

La combustion du charbon, du gaz naturel ou de tout autre combustible fossile, opérée à haute température (>1000°C), entraîne la formation d'oxydes d'azote (NO<sub>x</sub> = NO + NO<sub>2</sub>). Ces NO<sub>x</sub> sont principalement (à 90-95%) le monoxyde d'azote (NO), vient ensuite le dioxyde d'azote (NO<sub>2</sub>) [11]. L'évolution des équilibres et des vitesses de réaction a en effet pour conséquence une prépondérance de NO tant dans les flammes (équilibre) que dans les fumées (cinétiques ; annexe 1).

Trois mécanismes de formation des NO<sub>x</sub> ont été identifiés [10, 11, 12] :

- **les NO<sub>x</sub> thermiques** (« thermal NO<sub>x</sub> ») qui se forment dans la zone principale de combustion, à partir de l'azote et de l'oxygène de l'air (mécanisme de Zeldovich). C'est le mécanisme de formation le plus important qui est cependant fonction de la température (mécanisme prépondérant à température supérieure à 1400 °C), de la concentration en N<sub>2</sub> et en O<sub>2</sub> et du temps de séjour dans les zones de température élevée. Ce mécanisme comprend les deux réactions :



Dans le cas d'un mélange riche en oxygène, l'oxydation par la réaction (1.22) est l'étape déterminante, la réaction (1.23) étant très rapide. La première réaction ayant une énergie d'activation élevée (250 kJ.mol<sup>-1</sup>), ce mécanisme dépend fortement de la température (d'où le nom de NO<sub>x</sub> thermiques). Pour les mélanges riches en combustible ou proche de la stœchiométrie, il faut tenir compte de la réaction suivante (mécanisme de Zeldovich élargi) :



- **les NO<sub>x</sub> combustibles** (« fuel NO<sub>x</sub> ») qui se forment à partir de l'azote des combustibles fossiles (figure 1.3). En effet, pendant la phase de pyrolyse précédant l'inflammation (dévolatilisation du grain de charbon), les atomes d'azote liés au combustible (cas du fioul et du charbon) sont libérés sous la forme d'espèces intermédiaires : HCN et NH<sub>3</sub> (voir annexe 2). La transformation de ces molécules engendre par la suite une série de radicaux dont les plus importants sont CN et NH<sub>i</sub>. Les espèces intermédiaires réagissent en phase gazeuse selon deux mécanismes compétitifs, soit avec des radicaux oxygénés pour former du NO, soit avec du NO et/ou des intermédiaires pour former de l'azote moléculaire. La formation de NO<sub>x</sub> combustible est un mécanisme intervenant dans les zones à faibles concentrations en O<sub>2</sub> (combustion riche). Il dépend du temps de séjour des espèces chimiques dans ces zones et relativement peu de la température, contrairement au NO<sub>x</sub> thermique. Après avoir subi la pyrolyse durant laquelle les matières volatiles se sont dégagées, le grain de charbon se présente sous la forme d'une structure poreuse principalement composée de carbone (coke). La combustion de ce dernier s'opère en phase hétérogène. L'azote restant dans le coke se combine en surface avec O<sub>2</sub> pour former du NO.

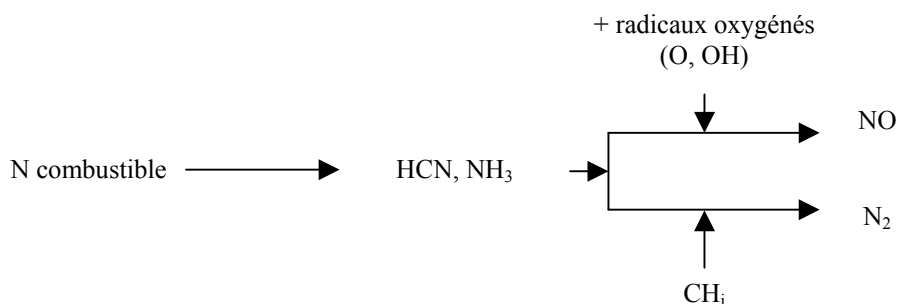


Figure 1.3 : Principe de formation des NO<sub>x</sub> combustible

- **Les NO<sub>x</sub> précoces** (« prompt NO<sub>x</sub> ») qui se forment rapidement dans le front de flamme selon un mécanisme différent de celui de Zeldovich. En effet, comme ce dernier ne permet pas de prédire la totalité de la quantité de NO<sub>x</sub> formée, Fenimore a formulé un autre mécanisme où l'azote moléculaire se combine avec des radicaux hydrocarbonés capables de rompre la triple liaison de l'azote par des cinétiques de formation plus rapides que la réaction 1.22 (NO<sub>x</sub> thermiques) [11]. Ce mécanisme comprend les réactions :



Par la suite, les atomes d'azote formés réagissent avec O<sub>2</sub> pour former du NO par la réaction (1.23). Les produits HCN et CN réagissent ensuite de diverses façons pour produire également du NO selon les mécanismes des NO<sub>x</sub> combustibles. On désigne par le terme « NO<sub>x</sub> précoces », les NO<sub>x</sub> formés à partir de l'azote moléculaire et qui ne suivent pas le mécanisme de Zeldovich, ceci quelle que soit la richesse de la flamme. Ce mécanisme de formation est plus rapide que celui du NO<sub>x</sub> thermique. C'est un mécanisme qui est prépondérant dans les zones riches en combustible et qui dépend de la température.

Il faut noter que d'étroites relations existent entre ces processus de formation. Au moins 90 % du NO formé dans les flammes de gaz naturel est d'origine thermique (10 % restant pour le NO précoce) [11]. Pour des flammes à charbon, on admet généralement 10 à 30 % de NO thermique, 70 à 90 % de NO combustible et une quantité négligeable de NO précoce [12].

A haute température, le NO<sub>2</sub> est négligeable devant le NO. Dans les flammes industrielles, on rencontre donc essentiellement du NO, celui-ci étant transformé en NO<sub>2</sub> dans l'atmosphère. En effet, ce dernier apparaît loin de la zone de combustion et se forme lors de l'oxydation du NO pendant le refroidissement des produits de combustion [11].

Lors de la combustion du charbon et/ou du gaz naturel, trois facteurs influent sur les émissions de NO<sub>x</sub> : la température de la flamme, la concentration en oxygène et le temps de séjour des espèces chimiques dans la zone à haute température. Dans le cas du charbon, ces émissions dépendent également de la qualité et de la granulométrie du combustible utilisé.

Globalement, comprendre ce que sont et comment se forment les NO<sub>x</sub> permet d'appréhender les paramètres permettant de contrôler et de réduire leurs émissions. Deux solutions existent : soit modifier la combustion (méthodes primaires), soit traiter les fumées (méthodes secondaires) [13].

## II – Méthodes de réduction des oxydes d'azote

### II-1 Méthodes primaires

Ces méthodes de réduction des émissions de NO<sub>x</sub> s'appliquent au niveau du foyer. Elles consistent à modifier la combustion et donc à contrôler principalement :

- La température de la flamme (maintien en dessous de 1400°C) afin d'éviter la formation de NO<sub>x</sub> thermique [12].



- L'excès d'air qui est un facteur important pour la formation des NO<sub>x</sub> dans la zone de combustion. Dans ce but, il est nécessaire de déterminer le plus faible excès d'air requis pour la chaudière, compatible avec une combustion sans imbrûlés et sans émission de CO [12, 14, 15].

**La combustion étagée** permet de contrôler l'oxydation des espèces volatiles azotées. Cela consiste à fractionner l'injection de l'air ou du combustible. Cet étagement, applicable à des brûleurs ou des chaudières, permet des réductions comprises entre 20 et 50 %. L'étagement de l'air (air primaire et secondaire) a pour but d'abaisser la température de flamme et la pression partielle en oxygène (stœchiométrie primaire) au premier étage dans une zone riche en combustible. L'étagement du combustible permet également de réduire les émissions de NO<sub>x</sub> grâce à l'injection de combustible en aval de la première zone de combustion, la combustion complète étant assurée par une injection d'air [15].

**La re-circulation des fumées** ou produits de la combustion a pour objectif de diluer les espèces chimiques par le retour, au niveau des brûleurs, de fumées prélevées à la sortie du four (re-circulation externe) ou par re-circulation dans la zone de flamme lorsque les fumées sont directement aspirées dans la flamme (re-circulation interne). La re-circulation des produits de la combustion conduit principalement à une baisse importante de la température de combustion. Le taux de réduction des NO<sub>x</sub> effectivement obtenu sur les installations industrielles dépend notamment de la température des produits de la combustion recyclés [15].

**La qualité du combustible** utilisé est un paramètre important car la teneur en azote et l'indice de matières volatiles (réactivité du combustible qui peut entraîner des pics de température) sont des paramètres influençant la formation de NO<sub>x</sub>.

Le **système de mélange air/combustible** qui agit sur les conditions d'écoulement et la **turbulence** de la flamme influencent les émissions de NO<sub>x</sub> et sont des paramètres intéressants à maîtriser [12].

L'objectif des méthodes primaires est donc d'agir sur les facteurs influençant la formation de NO<sub>x</sub> [12, 15] au cours de la combustion.

## II-2 Méthodes secondaires

Diverses méthodes peuvent être utilisées en aval de la zone de combustion. Elles consistent à traiter les fumées au moyen d'un réactif à base d'ammoniaque ou d'urée avec ou sans catalyseur. L'utilisation de la SCR (réduction sélective catalytique ou « selective catalytic reduction ») ou/et de la SNCR (réduction sélective non catalytique ou « selective non-catalytic reduction ») se répand de plus en plus. Elles permettent des réductions de 30 à 60 % avec la SNCR et de 75 à 90 % avec la SCR. Néanmoins, il est important de noter que ces deux techniques sont très coûteuses et qu'il est économiquement préférable d'avoir recours aux techniques primaires [13, 16, 17].

## III – Technologies de réduction des NO<sub>x</sub> dans les chaudières à charbon pulvérisé (CP)

### III-1 Les différents types de chaudière

Les émissions d'oxydes d'azote dépendent en partie de la configuration du foyer.

Plusieurs types de chauffe, entraînant de fortes températures du foyer, sont couramment utilisées dans l'industrie.

### III-1-1 Chaudière de type frontal

Les brûleurs sont répartis en plusieurs niveaux sur une ou plusieurs façades. Ainsi, on distingue notamment les chaudières frontales simples et les chaudières frontales opposées (brûleurs disposés sur deux façades opposées, figure 1.4) [18, 19].

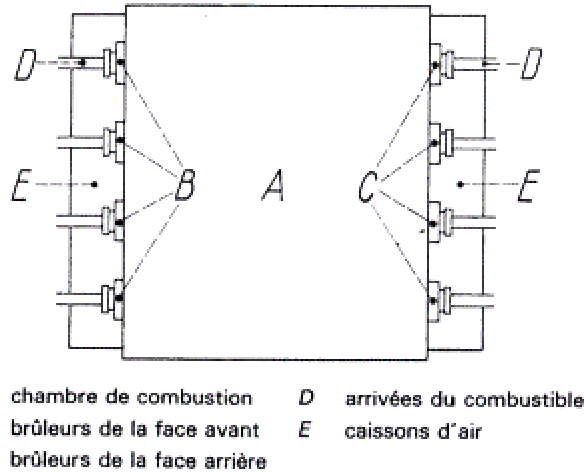


Figure 1.4 : Configuration d'une chaudière de type frontal opposé

### III-1-2 Chaudière de type tangentiel

Les brûleurs sont regroupés dans les angles de la chambre de combustion (« péniches ») ; la flamme se développe autour d'un cercle perpendiculaire à l'axe du foyer (figure 1.5) [18, 19].

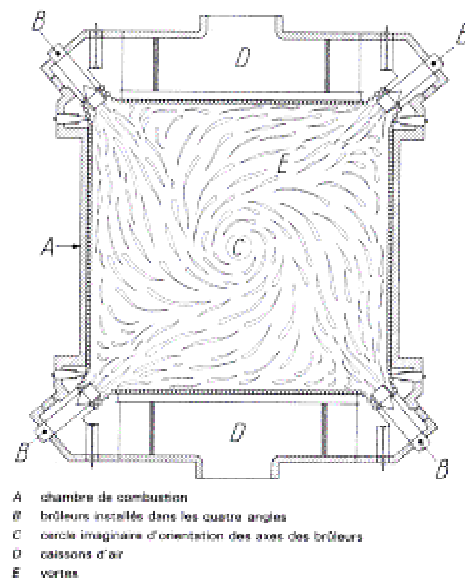


Figure 1.5 : Configuration d'une chaudière de type tangentiel

### III-1-3 Chaudière de type vertical

Les brûleurs sont localisés sur la ou les voûtes du foyer. Les flammes individuelles des brûleurs se développent vers le bas pour ensuite remonter vers la partie supérieure du foyer (figure 1.6) [18, 19].

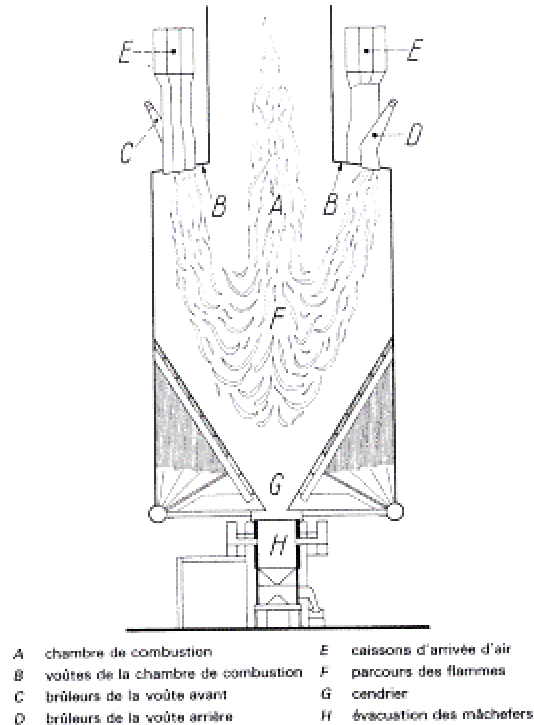


Figure 1.6 : Configuration d'une chaudière de type vertical

### III-1-4 Chaudière à cyclone

Les brûleurs sont disposés à l'extrémité d'une enceinte cylindrique appelée cyclone (dont l'axe est horizontal ou presque, figure 1.7).

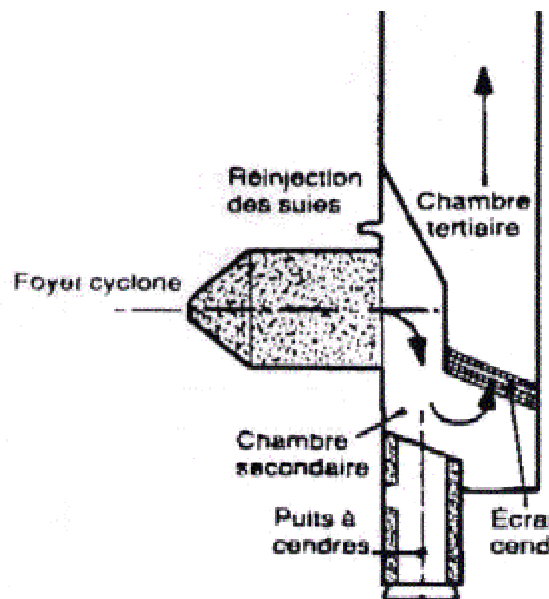


Figure 1.7 : Configuration d'une chaudière à cyclone

Le mouvement de tourbillon de la flamme dans ce cyclone entraîne des conditions de combustion intense (augmentation de la température) [19].

### III-1-5 Comparaison des types de chauffe

Les émissions d'oxydes d'azote varient en fonction du type de chauffe et de la puissance de l'installation (figure 1.8).

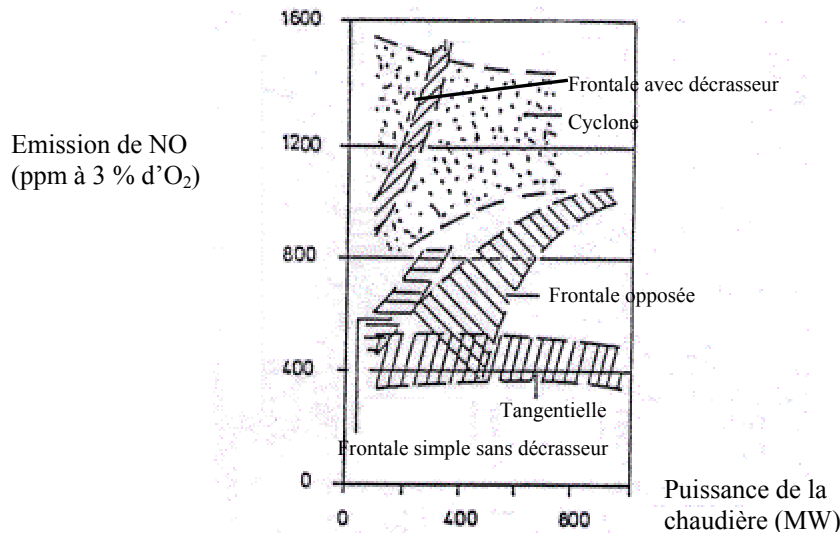


Figure 1.8 : Comparaison des émissions de  $NO_x$  en fonction du type de chauffe

En général, les chaudières tangentielles produisent moins de  $NO_x$  que les autres types de chaudières. Les chaudières à cyclone sont les chaudières qui émettent le plus de  $NO_x$  (voir figure 1.8) [19].

### III-2 Les brûleurs bas- $NO_x$ (low $NO_x$ burners ou LNB)

Plusieurs méthodes de réduction des émissions de  $NO_x$  sont possibles. Pour commencer, il est intéressant de modifier ou de remplacer les brûleurs existants d'une installation industrielle par des brûleurs bas- $NO_x$ . Il existe trois familles de brûleurs permettant d'obtenir de plus faibles émissions d'oxydes d'azote qui respectivement mettent en œuvre l'étagement du combustible, l'étagement de l'air de combustion et la re-circulation des fumées [17].

#### III-2-1 Les différents types de brûleurs

Les brûleurs à étagement de combustible permettent de réduire la température de la flamme et d'abaisser la concentration en oxygène dans la zone de combustion. Un étage primaire réalise une combustion à excès d'air élevé : il reçoit la totalité de l'air comburant et une fraction du débit de combustible. L'étage secondaire est constitué d'un ensemble d'injecteurs périphériques qui fournissent le complément de combustible sous la forme de jets orientés vers la queue de la flamme primaire.

Dans les brûleurs à étagement d'air, l'air primaire est mélangé au combustible. L'air secondaire est injecté par un espace annulaire. La combustion s'opère en deux étages, le premier étant en défaut d'air (figure 1.9).

Il est également possible de mélanger l'air secondaire avec une partie des fumées (brûleur à re-circulation externe). Cette technique permet de réduire la température de la flamme et le taux d'oxygène mais permet également de mieux véhiculer le mélange air + charbon pulvérisé, de sorte qu'une réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  est obtenue. Il a été noté, dans plusieurs cas, des taux de carbone imbrûlé croissants [20] ainsi qu'une baisse de l'efficacité de la chaudière [14].

Des brûleurs à re-circulation interne existent également avec une re-circulation de l'air comburant primaire.

### III-2-2 Application à des installations industrielles

L'utilisation de l'étagement du combustible à l'échelle du brûleur pour une installation industrielle est assez rare. Cette technique demande en effet des temps de séjour élevés et nécessite des modifications importantes sur les façades de chaudière, en particulier pour séparer les flux de combustible (modifications importantes lorsque l'on utilise du charbon). Il apparaît plus intéressant d'utiliser des brûleurs à étagement d'air. Deux types de brûleurs sont principalement utilisés : les brûleurs bas  $\text{NO}_x$  simples (figure 1.9 et 1.10) et les brûleurs cellulaires (figure 1.11).

Les brûleurs bas- $\text{NO}_x$  simples permettent de réduire les émissions de  $\text{NO}_x$  de 40 à 50 % [13, 16, 17, 21, 22]. C'est une technique qui permet généralement d'avoir des réductions de  $\text{NO}_x$  allant jusqu'à 50 %. Ce type de brûleurs est principalement utilisé sur les chaudières de type frontal.

Ces brûleurs existent sous deux formes couramment utilisées dans l'industrie : le brûleur à étagement externe où l'on injecte l'air complémentaire par des arrivées d'air tertiaire situées après l'ouvrage et le brûleur à mélange distribué où l'on sépare l'air secondaire en deux courants différents (figure 1.10).

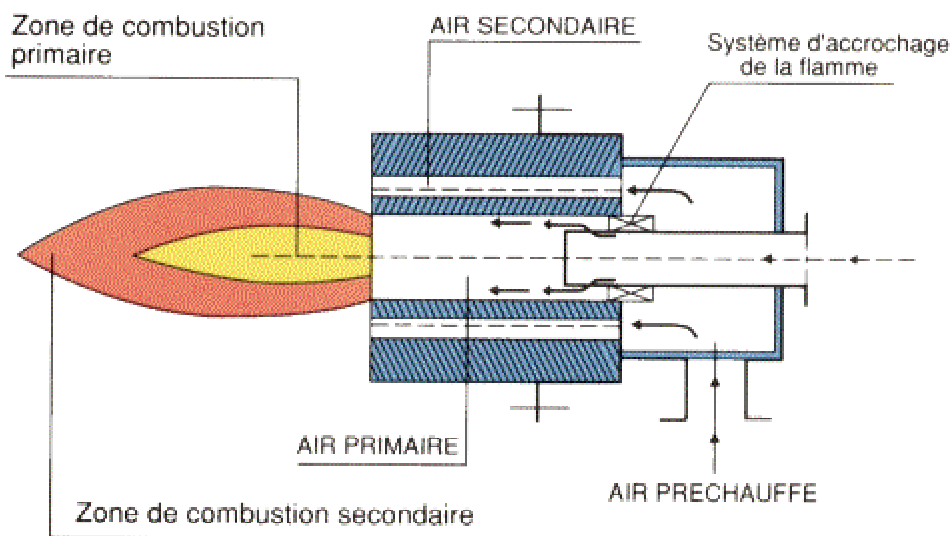


Figure 1.9 : brûleur bas- $\text{NO}_x$  standard à étagement de l'air de combustion

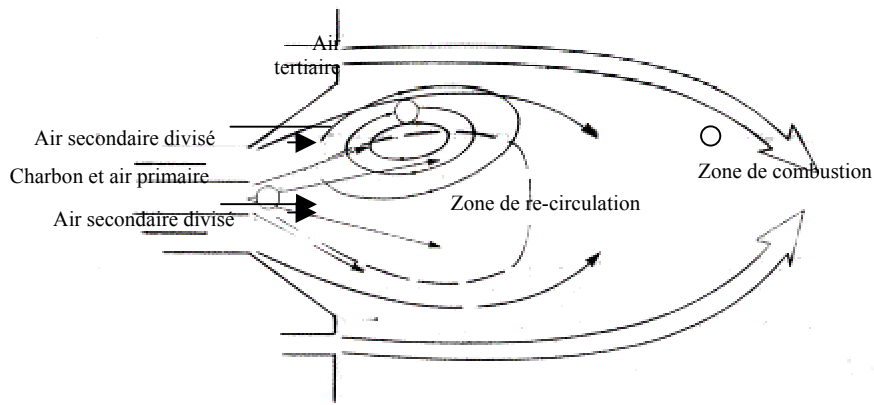


Figure 1.10 : Principe du brûleur bas- $\text{NO}_x$  à étage d'air

Les brûleurs bas- $\text{NO}_x$  cellulaires (figure 1.11) sont également couramment utilisés dans l'industrie. Ils permettent d'obtenir des réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  d'environ 55%. Ces réductions sont toutefois fonction de la qualité du combustible utilisé. De tels brûleurs sont le plus souvent utilisés pour des chaudières frontales et tangentielles [10]. L'efficacité de la chaudière, la température des fumées, les teneurs en CO, en carbone imbrûlé... restent sensiblement constantes [16].

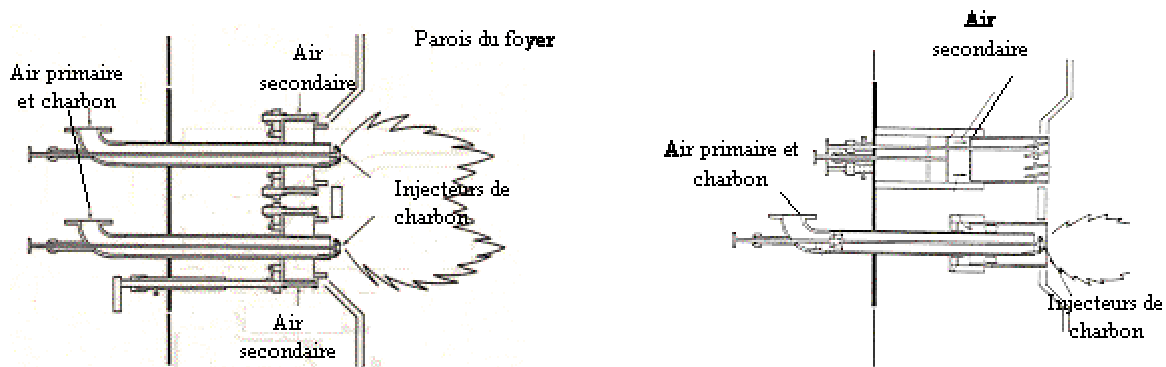


Figure 1.11 : Différentes configurations de brûleur cellulaire bas- $\text{NO}_x$

### III-3 Modifications de la combustion

#### III-3-1 Technique BOOS et combustion biaisée

Dans le cas de reconversion d'unité existante, on peut mettre en œuvre la technique BOOS (Burner Out Of Service) qui consiste, à prélever le charbon des brûleurs supérieurs pour l'injecter avec le charbon des brûleurs inférieurs. On crée ainsi une zone riche à la base et on utilise les brûleurs supérieurs pour l'apport d'air complémentaire. Si cette technique s'avère inexploitable, on peut réaliser une combustion biaisée qui consiste à utiliser les brûleurs en amont avec un excès de combustible et les brûleurs en aval avec un excès d'air [13].

#### III-3-2 Over Fire Air (O.F.A.) ou étage d'air

La technique de l'O.F.A. consiste à étager l'injection d'air au niveau d'un foyer [16]. Il se traduit par un défaut d'air au niveau des brûleurs (zone réductrice), le complément (10 à 20 %) étant injecté au-delà de cette première zone (zone oxydante). En complément à un autre procédé de réduction des émissions d'oxydes d'azote, l'O.F.A. permet d'obtenir en général

une réduction supplémentaire des concentrations de  $\text{NO}_x$  d'environ 30 %. Ainsi, combiné avec les brûleurs bas  $\text{NO}_x$ , il est possible d'obtenir des réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  de l'ordre de 55 % voire de 70 % (exemple des brûleurs Phoenix qui combinés avec l'*O.F.A.* permettent d'enregistrer des réductions de 40 à 75 % [10]) [16, 19, 21, 22].

### III-3-3 La technique L.N.C.F.S. (Low $\text{NO}_x$ Concentric Firing System)

Cette technique très flexible se traduit par une injection d'une partie de l'air de combustion sous un certain angle divergent (environ  $25^\circ$ ) par rapport à l'axe d'injection du combustible (figure 1.12) [10, 16].

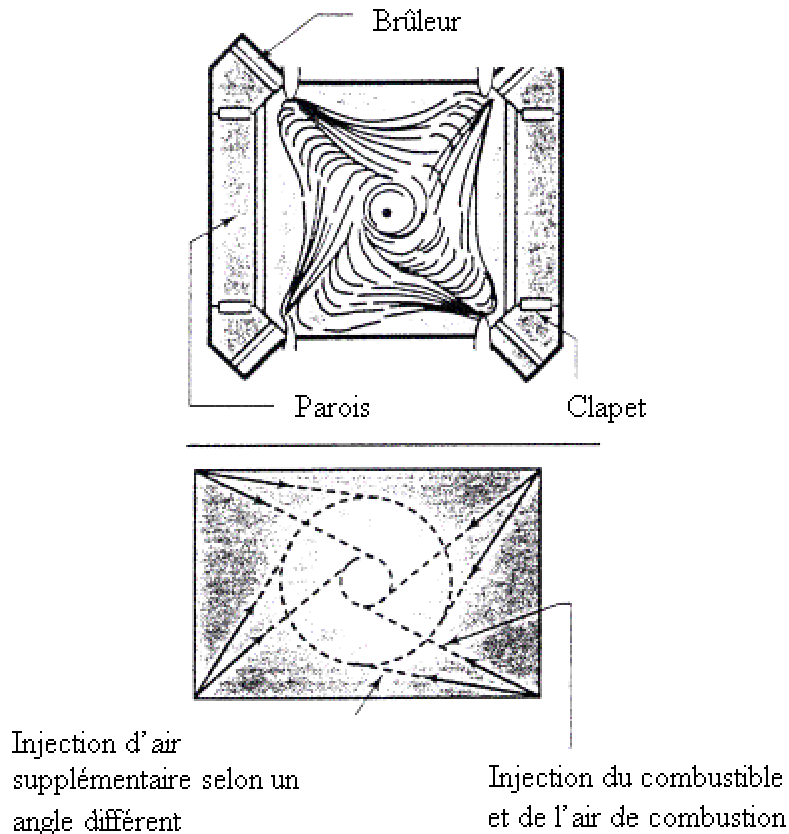


Figure 1.12 : Configuration du procédé L.N.C.F.S.

Ce système de chauffe est pratiquement identique au système tangentiel, l'air de combustion étant toutefois mieux contrôlé (quantité, distribution). En effet, l'air est injecté à la fois près des brûleurs et en aval des brûleurs. Ce procédé permet d'obtenir des réductions de l'ordre de 30 à 50 % sans effets néfastes pour la chaudière [10, 21].

### IV – L'étagement mixte du combustible et de l'air de combustion ou « *reburning* »

Le procédé de reburning est une technique assez récente : elle a été découverte dans les années 1960-70 et développée pour des installations industrielles de puissance inférieure à 100 MWe à partir du début des années 1980 (essentiellement aux Etats-Unis et au Japon). Elle apporte aux industriels une réponse nouvelle et complémentaire aux solutions et techniques déjà existantes permettant la dénitrification des fumées. Cette technique, pour laquelle les termes français de « recombustion » ou « surcombustion réductrice » ont été proposés, sera

appelée pour la suite par son nom anglais de « reburning », généralement utilisé dans les milieux industriels.

Le reburning consiste à réduire les émissions de  $\text{NO}_x$  en étageant la combustion. Trois zones de combustion sont créées (figure 1.13) : une zone primaire où le combustible principal (combustible 1) est brûlé en milieu légèrement oxydant (excès d'air de l'ordre de 5 %), entraînant la formation des  $\text{NO}_x$ , une zone secondaire dite de reburning où un combustible complémentaire appelé combustible de reburning (gaz naturel, charbon) est injecté, créant ainsi une zone réductrice : des radicaux hydrocarbonés  $\text{CH}_i$  y sont générés et réduisent les  $\text{NO}_x$  en d'autres espèces azotées ( $\text{HCN}$ ,  $\text{NH}_i$ ) jusqu'à former du  $\text{N}_2$  et enfin, une zone tertiaire dite de postcombustion où de l'air (appelé air de *burnout* ou de post-combustion) est injecté pour achever la combustion et convertir les espèces azotées restantes en  $\text{N}_2$  et partiellement en  $\text{NO}$ .

L'efficacité du procédé dépend de plusieurs facteurs notamment des températures à l'entrée des zones de reburning et de postcombustion (ou de burnout), du temps de séjour des fumées, de la stœchiométrie dans les différentes zones [20]. D'autres paramètres doivent également être pris en compte pour ce procédé [22] notamment :

- le mode d'injection du combustible de reburning et de l'air de postcombustion (distance de pénétration, vitesse),
- l'inclinaison des brûleurs (en chaudière tangentielle),
- la distance entre les brûleurs et la zone de reburning (déterminant la température à l'entrée de la zone de reburning),
- le mélange combustible de reburning et gaz de combustion issus de la zone primaire,
- la géométrie du foyer.

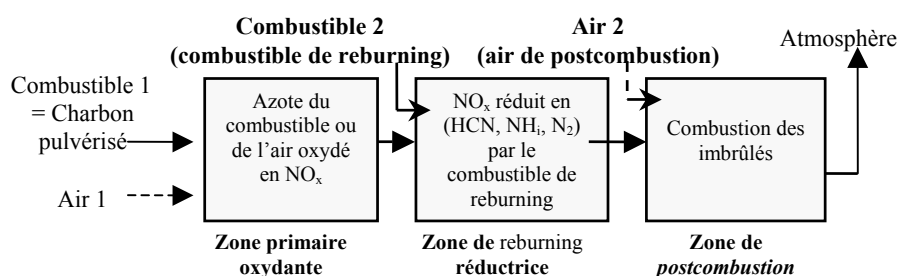


Figure 1.13 : Schéma du reburning

Le pourcentage de réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  peut varier notamment en fonction de la nature du combustible de reburning (gaz naturel, charbon pulvérisé ou micronisé, combustibles liquides). Des réductions de l'ordre de 50 à 60 % des émissions de  $\text{NO}_x$  ont été obtenues en remplaçant une quantité de combustible primaire délivrant 20 % de la puissance totale de l'installation par une quantité correspondant de combustible de reburning [15, 23].

Aux Etats-Unis où ce procédé a été intensivement étudié, diverses études (menées sur des pilotes et sur des installations industrielles de puissance allant jusqu'à 100 MWe) ont abouti à différents taux de réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  (voir parties suivantes). On a par ailleurs tenté de combiner le reburning avec d'autres techniques (re-circulation des fumées de combustion, brûleurs bas  $\text{NO}_x$ ) [16, 22]. Pour certaines installations (chaudière de type



cyclone), le reburning devient un procédé de réduction des émissions de NO<sub>x</sub> plus intéressant que l'utilisation de brûleurs bas-NO<sub>x</sub> [10].

La plupart des essais effectués sur des installations industrielles américaines n'ont répertorié aucun problème de température de vapeur, de corrosion et/ou de rendement de chaudière. Cependant, une légère augmentation du taux de carbone imbrûlé est généralement constatée (+ 1 %) [22].

Le marché est ciblé : le procédé peut potentiellement être appliqué aux unités de production d'électricité (centrale thermique), d'incinération de déchets et aux divers fours. La simplicité de mise en œuvre et d'utilisation du reburning en font un avantage certain mais le coût du gaz naturel comme combustible de reburning peut présenter un obstacle. Néanmoins, en Europe, c'est un procédé encore en phase de validation industrielle (des opérations pilotes sont en cours) et des opérations commerciales devraient suivre. Le reburning est un procédé de dénitrification techniquement et économiquement intermédiaire des solutions primaires et secondaires et adaptable à une large gamme d'installations [23, 24].

## Chapitre III

# Analyse bibliographique du reburning

### Introduction

Nous avons vu précédemment que, rejetés dans l'atmosphère, les oxydes d'azote, principalement constitués du monoxyde d'azote, du dioxyde d'azote et du protoxyde d'azote, ont des effets néfastes sur la santé humaine et un impact négatif sur l'environnement (acidité des pluies, formation d'ozone et de composés organiques oxygénés, plus ou moins irritants et agressifs pour la faune et la flore, chapitre 1).

Un tiers des oxydes d'azote de l'atmosphère a pour origine la combustion d'un combustible fossile (charbon, gaz naturel, pétrole). En effet, ils se forment principalement lors de l'oxydation de l'azote contenu dans le combustible ( $\text{NO}_x$  combustible) mais également à partir de l'azote contenu dans l'air nécessaire à la combustion sous l'effet de la température ( $\text{NO}_x$  thermique). Les mécanismes de formation des  $\text{NO}_x$  thermiques s'expliquent par les réactions de Zeldovich. Une partie des oxydes d'azote se forment également suite à la réaction de l'azote moléculaire avec des radicaux hydrocarbonés  $\text{CH}_i$  ( $\text{NO}_x$  précoce, mécanisme de Fenimore, chapitre 2) [25].

Les exploitants d'installations de combustion industrielles sont amenés à respecter les limitations environnementales qui deviennent de plus en plus strictes avec les émissions de  $\text{NO}_x$ . Ils doivent alors s'intéresser à différents procédés de réduction comme l'utilisation de brûleurs spéciaux (brûleurs bas- $\text{NO}_x$ ), l'étagement de l'air (O.F.A) ou l'étagement du combustible et de l'air de combustion (reburning, chapitre 2) [26].

Le reburning est un procédé de réduction des  $\text{NO}_x$  prometteur. Bien que la réduction des  $\text{NO}$  par ajout d'un combustible a d'abord été introduite par Meyerson et brevetée par Reed au début des années 1970, le terme de reburning a été introduit par Wendt *et al.* en 1973 (d'après [27]). Selon Takahashi *et al.* (d'après [27]), l'application du reburning sur des installations industrielles au Japon a eu lieu dans les années 1980 (procédé Mitsubishi Advanced Combustion Techniques ou M.A.C.T.). A ce jour, plusieurs études de reburning ont été menées aux USA notamment par Environmental and Energy Research et par

Environmental Protection Agency sur des réacteurs, des bancs d'essais, des pilotes. Des paramètres comme la stœchiométrie, la température et le temps de séjour dans la zone de reburning ainsi que la vitesse et le type de combustible de reburning ont été étudiés. Le procédé a été appliqué sur des chaudières industrielles (notamment au Japon sur des chaudières de 55 MWe et de 600 MWe) avec une réduction des  $\text{NO}_x$  de 50 %. Néanmoins, l'emploi du reburning est peu développé sur de nouvelles unités car il entraîne une augmentation des imbrûlés dans les cendres et pose des problèmes de stabilité de flamme ou de design de chaudières.

### I – Mécanismes réactionnels du reburning

Le reburning est un procédé intégré au foyer permettant de réduire les  $\text{NO}_x$  lors de la combustion du charbon ou du gaz naturel. Un combustible complémentaire est en effet injecté dans le foyer afin qu'il se décompose en radicaux hydrocarbonés ( $\text{CH}_i$ ) dans une zone réductrice (figure 1.14) [27, 28, 29, 30, 31]. Ces radicaux réduisent les oxydes d'azote et les transforment en azote moléculaire (figure 1.15) [32].

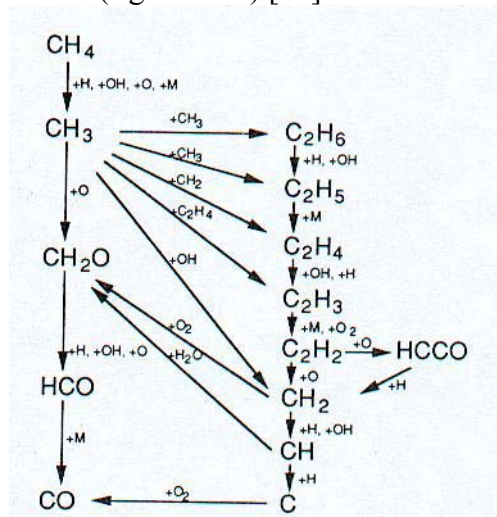


Figure 1.14 : Décomposition du combustible de reburning (méthane) en radicaux hydrocarbonés dans une zone réductrice

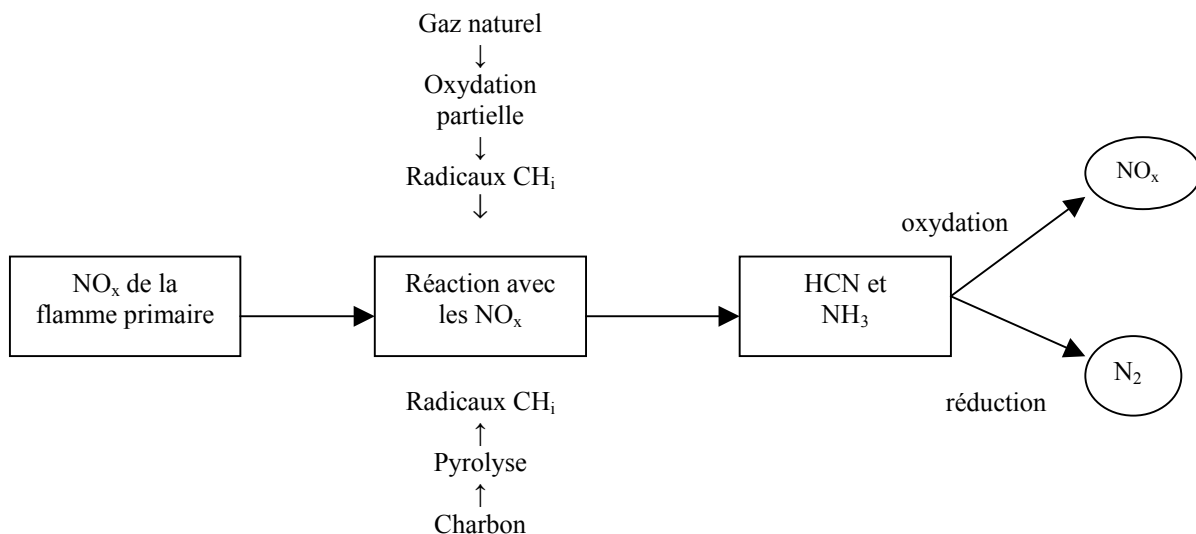


Figure 1.15 : Principe du reburning au gaz naturel et au charbon

Le procédé est une combustion étagée (étagement de l'air de combustion et du combustible) où trois zones sont formées (figure 1.13).

### I-1 La zone primaire

La zone primaire est une zone de combustion en léger excès d'air fournissant 80 à 90 % de l'énergie ; La haute température entraîne la formation des oxydes d'azote ( $\text{NO}_x$  primaires) à partir de l'azote de l'air de combustion ( $\text{N}_2$ ) et/ou de l'azote contenu dans le combustible principal (azote combustible) ; Cette zone se caractérise par une stœchiométrie  $\text{St}_p$  défini comme :

$$\text{St}_p = \frac{Q_{\text{total}}}{Q_{\text{CombPrinc}} \cdot P_{\text{comb1}}} \quad (1.27)$$

avec  $Q_{\text{total}}$ , le débit d'air de combustion introduit dans le brûleur,  $Q_{\text{CombPrinc}}$ , le débit de combustible principal et  $P_{\text{comb1}}$ , son pouvoir comburivore (quantité d'air en kg, nécessaire pour brûler 1 kg de charbon).

### I-2 La zone secondaire

La zone secondaire est une zone réductrice dite de reburning ou de réduction des  $\text{NO}_x$ , suite à l'injection d'un combustible complémentaire (combustible de reburning) au combustible principal. Cette zone se caractérise par une stœchiométrie défini comme :

$$\text{Str} = \frac{Q_{\text{total}}}{Q_{\text{CombPrinc}} \cdot P_{\text{comb1}} + Q_{\text{CombReb}} \cdot P_{\text{comb2}}} \quad (1.28)$$

avec  $Q_{\text{CombReb}}$ , le débit de combustible de reburning et  $P_{\text{comb2}}$  son pouvoir comburivore.

Il est possible également de définir le rapport de l'énergie délivrée par le combustible de reburning injecté à l'énergie totale délivrée dans un foyer (fraction de reburning) :

$$\text{Fr} = \frac{Q_{\text{CombReb}} \cdot \text{PCI}_{\text{CombReb}}}{Q_{\text{CombPrinc}} \cdot \text{PCI}_{\text{CombPrinc}} + Q_{\text{CombReb}} \cdot \text{PCI}_{\text{CombReb}}} \quad (1.29)$$

où  $\text{PCI}_{\text{combReb}}$  et  $\text{PCI}_{\text{combPrinc}}$  sont les pouvoirs calorifiques respectifs du combustible de reburning et du combustible principal (voir partie 2 et annexe 3).

Dans la zone de reburning, l'azote qui réagit provient des  $\text{NO}_x$  formés dans la zone de combustion primaire ( $\text{NO}_x$  primaires) et/ou de l'azote du combustible de reburning. Les  $\text{NO}_x$  primaires réagissent avec les radicaux  $\text{CH}_i$  issus de la pyrolyse de ce combustible de reburning, pour former différentes espèces azotées ( $\text{HCN}$ ,  $\text{NH}_i$  et  $\text{N}_2$ ).

Cependant, une partie de l'azote contenu dans le combustible de reburning (cas du charbon) peut également rester au sein du coke ; les espèces azotées et l'azote resté dans le coke peuvent s'oxyder par la suite dans la zone tertiaire ou en présence d'oxygène résiduel pour former à nouveau des  $\text{NO}_x$ .

Le mécanisme principal de réduction des NO est le suivant :



D'autres réactions convertissant le NO en HCN et CN ont été identifiées :



Le HCN se transforme ensuite :

- soit en NCO par la réaction :



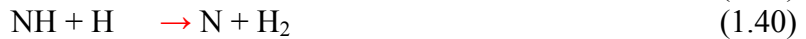
- soit en HNCO par la réaction :



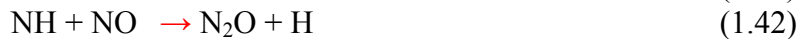
Le HCNO et/ou le NCO se décomposent à leur tour par les réactions suivantes :



Les espèces  $\text{NH}_i$  réagissent avec H et OH :



et permettent finalement la formation d'azote par les réactions :



### I-3 La zone tertiaire

La zone tertiaire est une zone oxydante dite de postcombustion ou de burnout, permettant de terminer la combustion. Cette zone se caractérise par une stœchiométrie définie comme :

$$\text{Stb} = \frac{Q_{\text{total}} + Q_{\text{postcombustion}}}{Q_{\text{CombPrinc}} \cdot P_{\text{comb1}} + Q_{\text{CombReb}} \cdot P_{\text{comb2}}} \quad (1.44)$$

avec  $Q_{\text{postcombustion}}$ , le débit d'air de postcombustion.

L'air injecté termine la combustion et convertit le HCN et le  $\text{NH}_3$  principalement en  $\text{N}_2$  et en faible quantité en  $\text{NO}_x$ .

### 1-4 Evolution des espèces dans les trois zones de combustion

De Michele *et al.* [30] ont résumé l'ensemble de ces réactions par le principe général de la figure 1.16. (voir annexe 2).

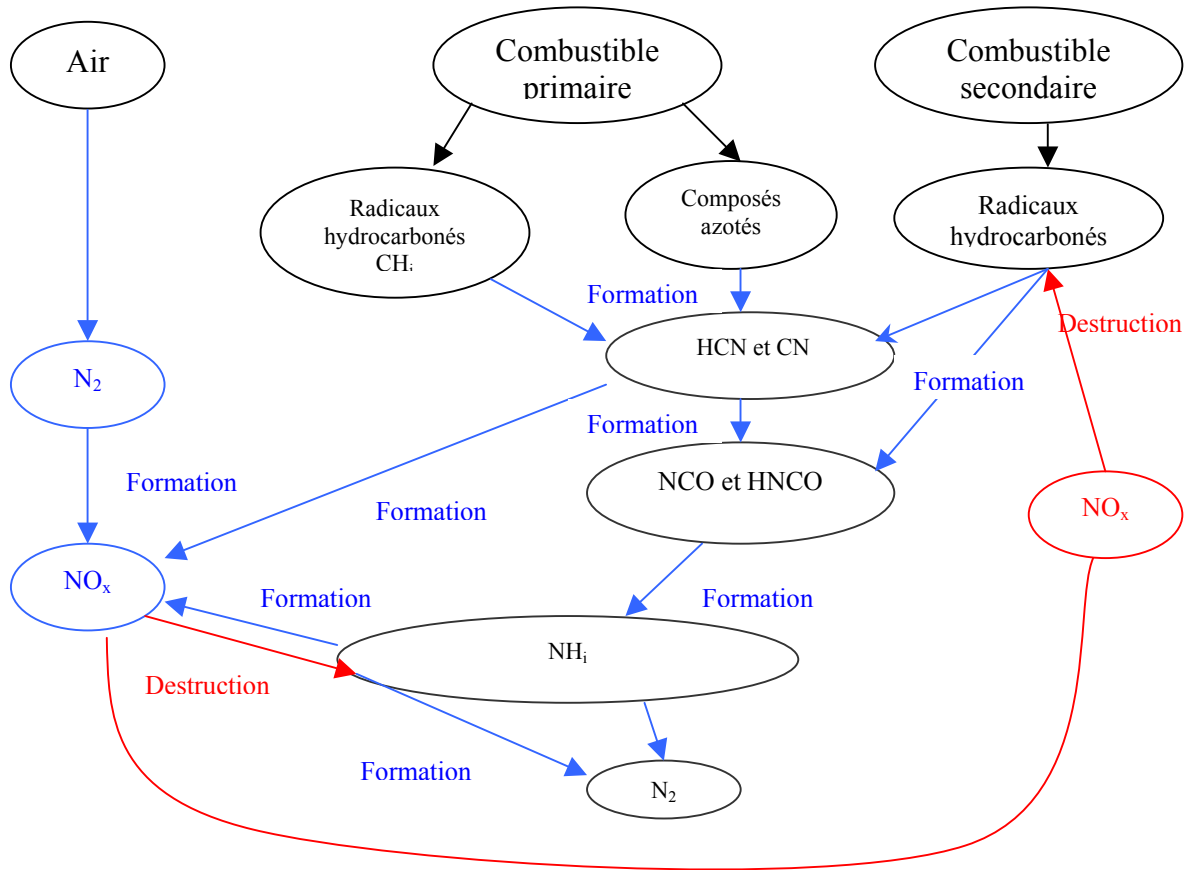


Figure 1.16 : Principe du reburning

La figure 1.17 représente la variation schématique des espèces azotées et de l'azote total fixé ( $\text{NO}_x + \text{HCN} + \text{NH}_i + \text{N}_2$ ) dans les trois zones de combustion.

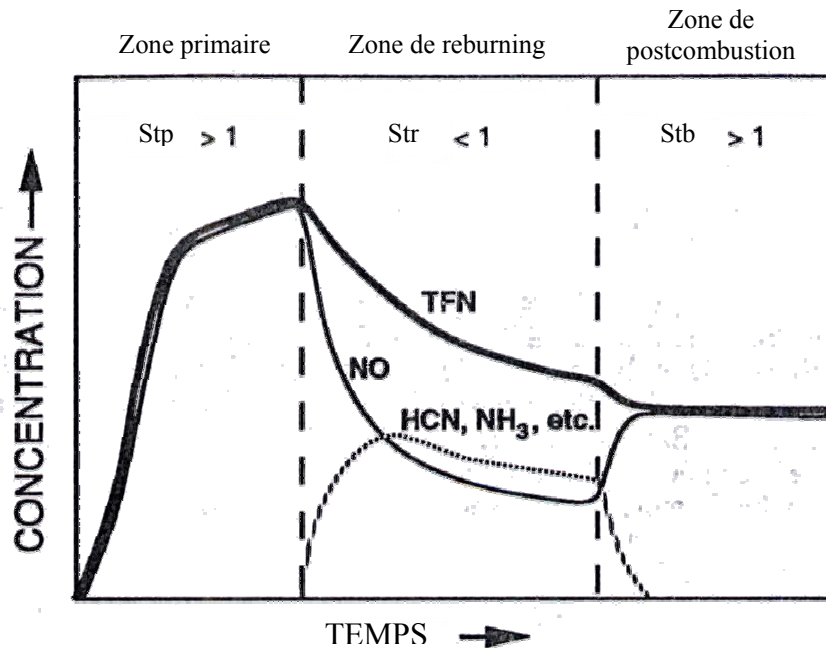


Figure 1.17 : Evolution des espèces azotées et de l'azote total fixé dans les trois zones de combustion (voir annexe 2)

La vérification expérimentale avec du gaz naturel [33] (pilote de 17 kW) et du charbon [34] (pilote de 200 kW) comme combustible de reburning, permet de représenter l'évolution des teneurs en CO, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> et NO<sub>x</sub> dans les trois zones de combustion (figures 1.18 et 1.19).

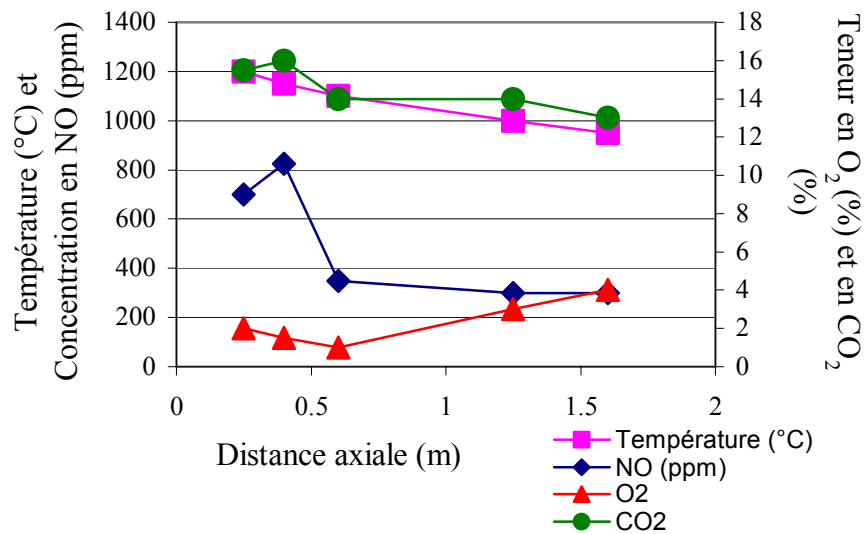


Figure 1.18 : Variation axiale de la température, de la teneur en NO, de la teneur en O<sub>2</sub> et en CO<sub>2</sub> pour du gaz naturel comme combustible de reburning avec un pilote de 17 kW (l'injection du combustible se fait à une distance axiale de 0,5 m et l'air à 0,99 m, la stœchiométrie de la zone primaire = 1,1, stœchiométrie de la zone de reburning = 0,9 et stœchiométrie de la zone de postcombustion = 1,06) [33]

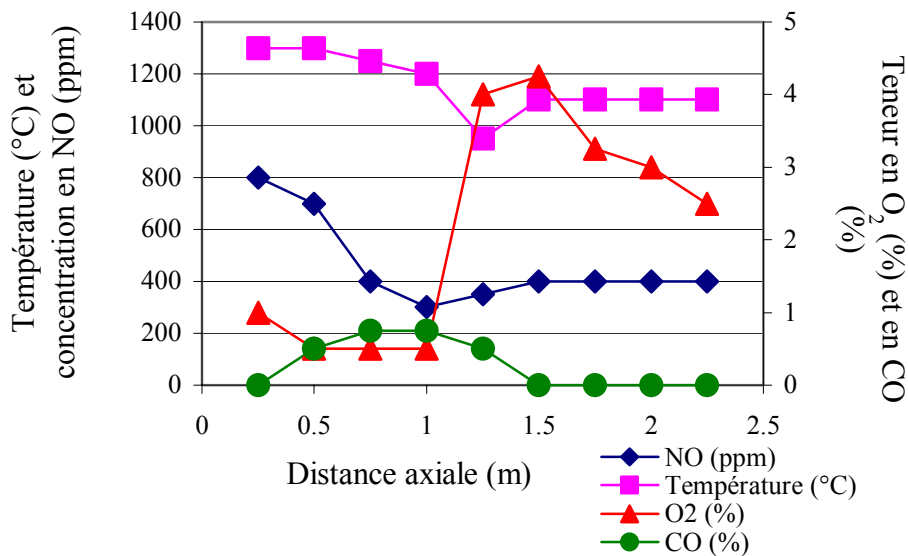


Figure 1.19 : Variation axiale de la température, de la teneur en NO, de la teneur en O<sub>2</sub> et en CO pour un charbon comme combustible de reburning avec un pilote de 200 kW (l'injection du combustible se fait à une distance axiale de 0,5 m et l'air à 1,25 m, la stœchiométrie de la zone primaire = 1,03, stœchiométrie de la zone de reburning = 0,96 et stœchiométrie de la zone de postcombustion = 1,07) [34]

Cette vérification permet de plus de confirmer qu'après une forte formation de NO<sub>x</sub> dans la zone primaire, ces derniers sont réduits progressivement dans la zone de reburning

suite à l'injection du combustible de reburning (figures 1.18 et 1.19). L'injection d'air de postcombustion entraîne toutefois une petite formation de  $\text{NO}_x$  pour du charbon (figure 1.19) et permet de finir la combustion. Bien que la teneur en oxygène diminue dans la zone de reburning, elle ne disparaît pas complètement : elle atteint une valeur minimale de 0,5 %.

Selon Knill *et al.* [31], la réduction des  $\text{NO}_x$  par les radicaux  $\text{CH}_i$  dans la zone de reburning est rapide (inférieure à 100 ms) et s'accompagne de la formation d'autres espèces azotées (HCN,  $\text{NH}_i$ ). Une partie de l'azote moléculaire est formé brièvement (durant 10 à 20 ms) dans cette zone [28]. Les auteurs indiquent par ailleurs que le HCN se décompose par la suite alors que les radicaux  $\text{NH}_i$  réduisent les  $\text{NO}_x$ .

Chen *et al.* [27] considèrent que, dans la zone de reburning, 30 % des  $\text{NO}_x$  sont convertis en  $\text{N}_2$  et le reste constitue le TFN (Total Fixed Nitrogen ou azote total fixé,  $\text{NH}_3$ , HCN,  $\text{NO}_x$ ). L'ajout d'air de postcombustion permet de convertir environ 43 % de ces espèces azotées en  $\text{N}_2$ . Cela permet d'obtenir globalement 60 % de réduction dans les émissions de  $\text{NO}_x$ . Toutefois, une partie de ces espèces azotées issues de la zone de reburning s'oxydent dans la zone de postcombustion et entraîne la formation d'une petite partie de  $\text{NO}_x$ . Malte et Lanier ont mesuré (d'après [31]) que respectivement 20 à 40 % du HCN et 70 à 90 % du  $\text{NH}_3$  issus de la zone de reburning sont convertis en  $\text{NO}_x$  dans la zone de postcombustion.

## II – Résultats expérimentaux

### II-1 Influence de la nature du combustible de reburning

Une grande partie des études menées sur le reburning a porté principalement sur l'influence du type de combustible de reburning. Plusieurs combustibles ont donc été testés dont le gaz naturel, le propane, le charbon, le fuel... avec des résultats plus ou moins probants. Takahashi (Mitsubishi Heavy Industries), qui a étudié l'influence de ce combustible sur la réduction de  $\text{NO}_x$  sur une chaudière de 35 MW, a notamment trouvé que cette réduction peut atteindre 90 % et qu'elle est indépendante du type de combustible (d'après Knill [32]).

Ces résultats ont cependant été réfutés par plusieurs auteurs dont Chen *et al.* [27, 35] et Mulholland *et al.* [36] pour qui le type de combustible a une influence sur l'efficacité du reburning. En effet, selon certains auteurs, cette influence sur la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  par le reburning dépend des caractéristiques du combustible et notamment de sa teneur en azote et de son indice de matières volatiles.

#### II-1-1 Teneur en azote

D'après Chen *et al.* [27, 35] qui ont expérimenté le reburning sur un four pilote de 3 MW, le gaz naturel et le propane sont des combustibles de reburning permettant d'obtenir de meilleures réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  que le charbon. Les auteurs attribuent cette différence à l'azote présent dans le charbon et absent du gaz naturel et du propane. Avec le charbon comme combustible de reburning, les réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  restent toutefois importantes et sont fonctions de la teneur en azote présent dans ce combustible.

Mulholland *et al.* [36] ont également mené des expériences (sur un four de 0,75 MW) afin de tester, comme combustible de reburning, plusieurs types de combustibles (fuel, gaz naturel) auxquels du  $\text{NH}_3$  a été rajouté. Ils ont remarqué qu'une partie de l'azote contenu dans le combustible de reburning s'oxyde dans la zone de reburning grâce à de l'oxygène résiduel.



Bien que ces  $\text{NO}_x$  soient ensuite réduits dans cette même zone grâce aux radicaux  $\text{CH}_i$ , cet azote nuit à l'efficacité du reburning. La formation et la réduction des  $\text{NO}_x$  sont liés lorsque du charbon est utilisé comme combustible de reburning, notamment pour des teneurs en  $\text{NO}_x$  primaires faibles (teneur initiale en  $\text{NO}_x$  faible, à l'endroit de l'injection du combustible de reburning). En effet, les espèces azotées formées comme le  $\text{NH}_3$  vont s'oxyder dans la zone de postcombustion, ce qui provoque la formation de  $\text{NO}_x$ . L'efficacité du reburning est donc réduite.

Pour des concentrations de  $\text{NO}_x$  primaires plus élevées, supérieures ou égales à 600 ppm, la présence d'azote dans le combustible de reburning ne modifie pas beaucoup la réduction des  $\text{NO}_x$  primaires et n'influe pas sur la teneur en  $\text{NO}_x$  en sortie de la zone de reburning. Des espèces azotées comme le HCN se retrouvent cependant en quantité plus importante à la sortie de cette même zone [35, 37].

Selon McCarthy *et al.* [38], une partie de l'azote contenu dans le combustible de reburning s'oxyde dans la zone de postcombustion ce qui produit des  $\text{NO}_x$ . Ces auteurs et Chen *et al.* [39] concluent qu'un combustible de reburning dénué d'azote fixé (gaz naturel) ou à basse teneur en azote est préférable.

## II-1-2 Indice de matières volatiles

Leikert *et al.* [40] ont étudié l'influence de l'indice de matières volatiles sur l'efficacité du reburning. Ils ont constaté à partir de plusieurs essais sur un pilote de 15 MW que l'indice de matières volatiles du combustible de reburning avait une influence plus importante sur l'efficacité du procédé par rapport à sa teneur en azote. Les meilleurs résultats ont été obtenus avec du lignite, puis avec du charbon à indice de matières volatiles élevé. Selon Leikert, dans le cas de charbons à faible indice de matières volatiles, il est nécessaire d'augmenter la fraction de combustible de reburning.

Knill *et al.* [31] ont, quant à eux, trouvé une influence moins importante de l'indice de matières volatiles des charbons utilisés comme combustible de reburning. Les réductions obtenues avec un réacteur équipé d'un brûleur à gaz pour des charbons à indice de matières volatiles élevé et moyennement élevé sont inférieures à celles obtenues par Leikert *et al.* [40]. Les différences de résultats obtenues entre ces deux équipes de chercheurs peuvent toutefois s'expliquer par la différence d'échelle entre les deux dispositifs expérimentaux. D'après Knill *et al.* [31], l'installation de Leikert ne permettait pas un bon mélange entre le charbon et les gaz de combustion alors que leur propre installation permettrait un mélange rapide minimisant l'importance de l'indice de matières volatiles. Selon Knill *et al.* [31], l'indice de matières volatiles du combustible de reburning a cependant une influence sur la formation des espèces azotées HCN et  $\text{NH}_3$ .

Selon Chen *et al.* [29], les charbons de bas rang (à indice de matières volatiles élevé) contiennent habituellement moins d'azote fixé et produisent donc moins de  $\text{NO}_x$  combustible que les charbons à indice de matières volatiles plus faible. Toutefois, ils ont remarqué que d'autres caractéristiques du combustible influencent les émissions de  $\text{NO}_x$ . En étudiant une large variété de charbons sur un pilote de 22 kWth, ils ont montré que la formation de  $\text{NO}_x$  combustible est plus importante avec des charbons générant beaucoup d'azote volatil. Cette formation de  $\text{NO}_x$  est par ailleurs plus faible lorsque l'azote est inclus dans le squelette carboné du charbon.

Greene *et al.* [37] ont trouvé que l'utilisation d'un combustible de reburning possédant de l'azote totalement ou presque totalement volatil entraîne une meilleure efficacité du reburning. Ils ont comparé des résultats obtenus avec deux combustibles de reburning différents mais possédant le même pourcentage d'azote (propane dopé à l'ammoniaque et charbon américain). Les émissions de  $\text{NO}_x$  sont plus importantes avec le charbon à cause de l'azote combustible qui, resté dans le coke (azote « fixé ») le long de la zone de reburning, s'oxyde dans la zone de postcombustion.

### II-1-3 Formation de radicaux $\text{CH}_i$

La réduction des  $\text{NO}_x$  dans la zone de reburning se fait grâce aux radicaux  $\text{CH}_i$  (réactions 1.31 à 1.33) ; sans une quantité importante de ces radicaux, la réduction des  $\text{NO}_x$  par les espèces  $\text{NH}_i$  selon les réactions 1.41 à 1.43 devient prédominante [41].

Mereb *et al.* [41] ont indiqué par ailleurs que le charbon est un combustible de reburning moins efficace que le gaz naturel notamment parce qu'il ne permet pas une formation assez importante de radicaux  $\text{CH}_i$ .

Parmi les charbons, ceux dont l'indice de matières volatiles est élevé génèrent une concentration importante de ces radicaux dans la zone de reburning. Pour des charbons à indice de matières volatiles faibles, il est nécessaire d'augmenter le débit afin de générer une quantité suffisante de ces radicaux nécessaires à la bonne efficacité du procédé [40].

### II-1-4 Réactivité du coke (cas du charbon)

Knill [32] considère que la réactivité du coke est un paramètre mal défini. Elle décrit l'aptitude d'un résidu de carbone à brûler, peu après la dévolatilisation. C'est un paramètre qui ne peut être utilisé quantitativement pour améliorer l'efficacité du reburning. D'après Knill, un charbon à indice de matières volatiles élevé produit un coke plus réactif qu'un charbon à faible indice de matières volatiles. Un coke très réactif peut brûler dans la zone secondaire et réduire la stœchiométrie de cette zone en utilisant l'oxygène résiduel. Un coke faiblement réactif brûle peu dans la zone secondaire et entraîne par sa combustion dans la troisième zone une augmentation des émissions de  $\text{NO}_x$  s'il contient de l'azote.

La teneur en azote et l'indice de matières volatiles sont donc des caractéristiques importantes pour un combustible de reburning. Le gaz naturel ne contenant pas d'azote et étant complètement volatil permet d'obtenir selon certains auteurs de meilleures réductions des émissions de  $\text{NO}_x$ . Les combustibles de reburning solides ou liquides comme les charbons ou les fuels entraînent des réductions moins importantes en raison de l'azote contenu dans le combustible. Plusieurs auteurs remarquent l'importance de l'indice de matières volatiles pour de tels combustibles (et donc de la réactivité du coke) et notamment de la part d'azote volatil. Un charbon utilisé comme combustible de reburning et dont la part d'azote volatil est non négligeable peut entraîner des réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  importantes. Un combustible de reburning efficace doit cependant permettre une formation importante de radicaux  $\text{CH}_i$  afin de réduire les  $\text{NO}_x$  émis ; cette formation dépend du type de combustible (gazeux, solide ou liquide).

## II-2 Influence de la stœchiométrie des différentes zones

Pour une combustion classique, l'excès d'air est de 20 %, ce qui équivaut à une stœchiométrie de 1,2. Pour appliquer le reburning sur une installation, l'excès d'air doit être

ajusté (stœchiométrie de la première zone légèrement supérieure à 1) afin d'obtenir une zone secondaire réductrice. La troisième zone qui permet de finir la combustion doit être oxydante.

Plusieurs chercheurs ont étudié l'influence de la stœchiométrie dans les différentes zones sur l'efficacité du reburning et ont obtenu différentes valeurs optimales, fonction du type de combustible de reburning, de l'installation utilisée et des autres conditions opératoires.

### II-2-1 Stœchiométrie de la zone primaire

Miyamae *et al.* [42] ont mené plusieurs expériences de reburning sur un pilote de 10 MW avec différents combustibles de reburning. Ils ont cherché entre autres à mettre en évidence l'influence de la stœchiométrie primaire et ont déterminé les valeurs optimales. Ils ont trouvé que :

- pour du butane (fraction de reburning de 15-18 %), la stœchiométrie primaire optimale est de 1-1,1 environ, ce qui a permis de réduire de moitié les émissions de NO<sub>x</sub>. Au-delà de 1,1, les réductions de NO<sub>x</sub> deviennent moins importantes.
- pour du fuel liquide à 0,02 % d'azote (fraction de reburning de 15-20 %), la stœchiométrie optimale est de 0,9-1.
- pour du charbon (fraction de reburning de 15 %), la stœchiométrie optimale est de 0,9-1, ce qui a entraîné une réduction des NO<sub>x</sub> de 40-45 %.

Overmoe, Mccarthy, Chen *et al.* [43] ont trouvé que, dans le cas de l'utilisation de gaz naturel ou de charbons américains comme combustible de reburning (fraction de combustible de reburning de 15 %), la diminution de la stœchiométrie primaire de 1,1 à 0,9, entraîne une baisse des émissions de NO<sub>x</sub>. Cette baisse est encore plus importante lorsque la fraction de combustible de reburning passe à 25 %.

Au travers d'une série d'expériences, Greene, Chen *et al.* [37] ont constaté que la stœchiométrie de la zone primaire (de 1,3 à 1,05) ne semble pas influencer l'efficacité de réduction des émissions de NO<sub>x</sub> par le reburning, que ce soit pour du propane ou pour du charbon américain comme combustible de reburning. il a cependant été noté qu'il est préférable de ne pas avoir une stœchiométrie primaire trop importante afin de limiter la quantité de combustible de reburning pour obtenir une stœchiométrie de reburning adéquat. Dans le cas d'un charbon, une augmentation du débit de combustible de reburning provoque une augmentation de la quantité d'azote combustible en zone de réduction.

Les différences de résultats obtenus par ces auteurs s'expliquent par les différences dans les dispositifs expérimentaux utilisés (géométrie, écoulement...). Greene *et al.* [37] ont mené des expériences sur un banc d'essai de 17,6 kW alors que Overmoe *et al.* [43] ont travaillé sur un pilote cent fois plus important.

### II-2-2 Stœchiométrie secondaire (zone de reburning)

En expérimentant plusieurs types de combustibles de reburning (gaz naturel, propane, fuel lourd et divers charbons) sur un banc d'essai et sur un four pilote de 3 MW, Chen *et al.* [27, 39] ont montré que, pour une stœchiométrie primaire de 1,1, la stœchiométrie idéale de la zone de reburning pour du charbon ou du fuel lourd comme combustible de reburning est de l'ordre de 0,9 environ. Pour un combustible de reburning exempt d'azote comme le gaz naturel ou du propane, la stœchiométrie idéale est inférieure à 0,9. Selon Chen, la

stœchiométrie optimale correspond à un équilibre entre la destruction des  $\text{NO}_x$  primaires et la formation des espèces azotées tel que le HCN susceptibles de former des  $\text{NO}_x$  dans la troisième zone.

Kicherer *et al.* [44] ont trouvé quant à eux que la stœchiométrie idéale de la zone de reburning pour du gaz naturel était de 0,76. Selon les auteurs, une stœchiométrie inférieure à la valeur optimale, pour du charbon ou du fuel lourd comme combustible de reburning, entraîne une augmentation du débit de combustible de reburning et donc de la quantité d'azote introduite avec le combustible de reburning. Les émissions de  $\text{NO}_x$  augmentent en conséquence. Avec un four de 15 MW, Leikert *et al.* [40] ont remarqué que, lors du reburning au charbon, les réductions de  $\text{NO}_x$  sont plus importantes lorsque la stœchiométrie de reburning passe de 0,8 à 0,65 (débit de combustible de reburning constant, diminution de la stœchiométrie primaire). Kelly *et al.* [26], qui ont étudié l'influence de la stœchiométrie primaire et de reburning lors du reburning au charbon sur un pilote de 16 kW, ajoutent que la stœchiométrie idéale de la zone de reburning est comprise dans l'intervalle 0,6-0,8. En deçà, les émissions de  $\text{NO}_x$  re-augmentent légèrement, au-delà, elles deviennent très importantes.

Selon Bilbao *et al.* [45], la zone de reburning doit être réductrice pour pouvoir générer des radicaux et pour entraîner leur réaction avec les  $\text{NO}_x$ . La décomposition du gaz naturel en radicaux  $\text{CH}_i$  dépend également de la température du lieu d'injection :

- à de hautes températures (autour de 1400-1500 °C), la décomposition est pratiquement complète pour toutes les concentrations en oxygène dans la zone de reburning. Lorsque la teneur en  $\text{O}_2$  est faible, il y a formation de radicaux disponibles d'où une haute réduction des  $\text{NO}_x$ . Lorsque la teneur en  $\text{O}_2$  est élevée, les réactions d'oxydation de l'hydrocarbure seraient dominantes et cela résulterait en une chute de la réduction des  $\text{NO}_x$  (diminution de la quantité de radicaux  $\text{CH}_i$  disponibles pour réagir avec les  $\text{NO}_x$ ).
- pour des températures moins élevées (vers 1200-1300 °C), la pyrolyse du gaz naturel est moins importante. La décomposition du gaz naturel et la formation de radicaux  $\text{CH}_i$ , entraînant une réduction des  $\text{NO}_x$  nécessitent dans ce cas une certaine teneur en oxygène dans la deuxième zone. Une teneur en oxygène plus importante permet une totale transformation du gaz naturel mais les réactions d'oxydations prédominent et la réduction des  $\text{NO}_x$  diminue. La présence d' $\text{O}_2$  est donc indispensable pour permettre cette décomposition et permettre la transformation des espèces azotées intermédiaires (HCN,  $\text{NH}_i$ ).

### II-2-3 Stœchiométrie tertiaire (zone de postcombustion ou de burnout)

La stœchiométrie de la zone de postcombustion doit assurer avant tout une bonne efficacité de combustion. Dans la plupart des études, la stœchiométrie de la zone finale est égale à 1,2-1,3.

Selon Greene *et al.* [37], la stœchiométrie de la zone de postcombustion n'a aucun effet sur l'efficacité du reburning.

On peut donc conclure que le reburning est efficace quand la stœchiométrie primaire est égale ou légèrement supérieure à 1 et la stœchiométrie de reburning inférieure à 1. Knill

[32] a remarqué que les différences concernant les valeurs optimales de stœchiométrie de reburning viennent essentiellement des différentes conditions opératoires (notamment le type et la quantité ou fraction de combustible de reburning). Chen *et al.* [27] ont indiqué par ailleurs que la valeur optimale de la stœchiométrie de reburning change avec la taille du dispositif expérimental. Pour un four pilote, la stœchiométrie optimale de la zone de reburning est de 0,8-0,9. Avec un banc d'essai, elle est supérieure à 0,9. Pour une installation industrielle, il est préférable d'opérer à stœchiométrie inférieure à 0,9. Certains auteurs ont par ailleurs trouvé que la stœchiométrie optimale de la zone de reburning dépend de la température de la zone d'injection mais aussi du temps de séjour des gaz dans cette zone [28].

### II-3 Fraction de combustible de reburning

La fraction de combustible de reburning peut être définie comme le rapport de l'énergie délivrée par le combustible de reburning à l'énergie totale délivrée par l'installation (voir relation 1.29). Habituellement de 10 à 20 %, les valeurs optimales varient toutefois en fonction de l'installation utilisée et des conditions opératoires.

Kelly *et al.* [26] ont mené, sur un banc d'essai, plusieurs expériences afin de connaître l'influence de la fraction de combustible de reburning sur l'efficacité du reburning. Lorsque la stœchiométrie de la zone primaire est supérieure ou égale à 1, la modification de la fraction de combustible de reburning de 25 à 50 % n'entraînait aucune variation sur les réductions des émissions de NO<sub>x</sub>. La réduction des NO<sub>x</sub> par le reburning est alors insensible à la fraction de combustible.

Selon Knill [32], une fraction minimale de 10 % de combustible de reburning permet de rendre le procédé efficace. Dans les expériences de Chen *et al.* [27] menées sur un four pilote de 3 MW, la fraction de combustible de reburning optimale a été de 20 % ce qui leur a permis de réduire de 50 % leurs émissions de NO<sub>x</sub>.

Sur un banc d'essai de 10 kW et un pilote de 4 MW, Martin *et al.* [46] ont obtenu des réductions des NO<sub>x</sub> proches de 50 % pour des fractions de 10 à 15 % de gaz naturel comme combustible de reburning. La réduction a été plus faible (35 %) pour une fraction de combustible de reburning de 20-30 %. Leikert *et al.* [d'après 32] ont trouvé sur une installation de 30 MW, que le minimum des émissions de NO<sub>x</sub> est obtenu pour des fractions de combustible de reburning plus importantes (30 %).

Toqan *et al.* [25] ont étudié l'influence de la température sur la fraction optimale de combustible de reburning (gaz naturel). Pour une même fraction de combustible de reburning de 25 % :

- aux alentours de 1400 °C, les principales espèces réductrices sont les radicaux CH<sub>i</sub>
- à une température plus importante (1700 °C environ), la réduction des NO<sub>x</sub> par le NH<sub>i</sub> devient prépondérante et entraîne une réduction des émissions de près de 50 %.

Pour une fraction de combustible de reburning plus faible (10 % environ), la concentration en radicaux CH<sub>i</sub> décroissait rapidement, ce qui diminuait leur rôle dans la réduction des NO<sub>x</sub>. Les NO<sub>x</sub> sont alors réduits par les espèces NH<sub>i</sub>.

Les deux variables, fraction de combustible et stœchiométrie primaire, peuvent être assimilées à une seule variable : la stœchiométrie de la zone de reburning qui a été traitée auparavant.

#### II-4 Influence de la température des différentes zones

Le taux de  $\text{NO}_x$  et l'efficacité de la combustion dépendent entre autres des températures dans les zones de reburning et de postcombustion [28, 31]. En particulier, comme il a été discuté auparavant, la température dans la zone de reburning détermine, avec la stœchiométrie dans cette zone, la nature (mécanisme de formation) et la disponibilité des espèces réductrices des  $\text{NO}_x$ . En effet, elle détermine le degré d'oxydation du combustible de reburning, donc la production des radicaux  $\text{CH}_i$  et le taux de réduction des  $\text{NO}_x$ . De nombreuses études ont été menées afin de caractériser l'influence de la température. Toutefois, dans les installations pilotes, on parle le plus souvent de la température à l'endroit de l'injection du combustible de reburning (ou température à l'entrée de la zone de reburning).

A l'aide d'un banc d'essai, Chen *et al.* [35] ont montré, en utilisant du charbon comme combustible de reburning, que le refroidissement de la zone de reburning permet de diminuer les émissions finales de  $\text{NO}_x$ . Bien qu'elle influe peu sur la concentration du HCN et du  $\text{NH}_3$  sortant de la zone de reburning, elle perturbe la réduction des  $\text{NO}_x$  dans la zone de reburning et entraîne une quantité plus importante de coke dans la troisième zone. La formation de  $\text{N}_2$  à partir des espèces azotées ( $\text{NO}_x$ , HCN et  $\text{NH}_3$ ) ne se fait plus dans la zone de reburning mais plutôt dans la troisième zone. La quantité d'azote combustible disponible dans la zone finale (zone de postcombustion) augmente. Selon Chen, le refroidissement de la zone de reburning réduit la température de la troisième zone diminuant ainsi la quantité d'azote (contenu dans le coke ou azote « fixé ») transformée en  $\text{NO}_x$ . La température de la troisième zone est alors propice à la réduction des oxydes d'azote par les radicaux  $\text{NH}_i$ .

Néanmoins, selon Chen *et al.* [35], les effets bénéfiques de ce refroidissement et la réduction des  $\text{NO}_x$  par le  $\text{NH}_3$  dépendent principalement de la stœchiométrie de la zone de reburning et du type de combustible utilisé dans cette zone ; le charbon de reburning optimal serait un charbon à indice de matières volatiles élevé permettant une production importante de  $\text{NH}_3$ .

Knill [32] a toutefois montré qu'une température élevée dans la zone de reburning accentue la réduction des  $\text{NO}_x$ . Dans le cas du charbon, cela provoque la dévolatilisation accélérée du combustible et l'oxydation des fragments volatils. Ces derniers réagissent ensuite avec le  $\text{NO}_x$  pour produire du HCN. Dans une autre publication, Knill *et al.* [31] ont noté qu'une température au lieu d'injection de 1400 °C permet d'obtenir une meilleure réduction des  $\text{NO}_x$  par rapport à une température de 1100 °C. Les températures élevées favorisent la transformation des espèces HCN et  $\text{NO}_x$  en  $\text{NH}_3$  et pour des temps de séjour plus longs en  $\text{N}_2$ .

Pour des combustibles de reburning gazeux (propane, gaz naturel, méthane), Chen *et al.* [27, 35, 39] ont montré que l'augmentation de la température de la zone de reburning qui accentue la réduction des  $\text{NO}_x$ , augmente également la conversion des espèces azotées en  $\text{NO}_x$  dans la zone de reburning : les transformations du NO, du HCN et du  $\text{NH}_3$  sont très rapides à hautes températures dans la zone de reburning. Chen *et al.* ont finalement conclu que, dans le cas d'un combustible gazeux, la réduction finale des émissions de  $\text{NO}_x$  est indépendante de la température dans la zone de reburning alors que, pour du charbon comme combustible de reburning, la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  dépendrait de la température.

Greene *et al.* [37] ont également montré que l'augmentation de la température dans la zone de reburning entraîne une réduction plus importante des NO<sub>x</sub> avec un combustible de reburning gazeux. McCarthy *et al.* [38] confirment ces résultats en remarquant une diminution des émissions de NO<sub>x</sub> pour plusieurs combustibles de reburning en augmentant la température du lieu d'injection de 1400°C à 1500°C. Bilbao *et al.* [45, 47] ont par ailleurs remarqué qu'une très haute température dans la zone de reburning (>1400 °C) peut engendrer la formation de NO<sub>x</sub> thermique dans cette zone : en effet, cette formation est déjà observable à des températures supérieures à 1350 °C et devient significative pour une température proche de 1500 °C.

Chen *et al.* [27, 35] ont observé, dans le cas d'un reburning au charbon, que la baisse de la température de la zone de postcombustion (de 1300 à 1000 °C environ) diminue les émissions de NO<sub>x</sub>. D'après Chen, la température de la zone de postcombustion doit être comprise dans l'intervalle (800-1100 °C) pour permettre la réduction des NO<sub>x</sub> par les espèces NH<sub>i</sub>. Chen admet toutefois que les émissions finales de NO<sub>x</sub> sont en général insensibles à la température de la zone de postcombustion : la température doit être suffisamment haute pour permettre la réduction des NO<sub>x</sub> par le NH<sub>3</sub> (cas de l'injection de lignite) et suffisamment basse pour ne pas générer des NO<sub>x</sub> thermiques.

Il est assez difficile de déterminer la température optimale du lieu d'injection du combustible de reburning. En effet, les expériences citées auparavant et diverses autres ont été réalisées sur des plages de températures assez diversifiées. Néanmoins, Il est possible que, de façon générale, la température minimale du lieu d'injection pour un reburning au gaz naturel soit de 1200 °C. Pour un reburning au charbon, rien ne peut être affirmé avec certitude. Il semble néanmoins que le type du charbon utilisé pour le reburning influence la température optimale du lieu d'injection [32]. Cependant, quelque soit les températures optimales pour les zones de reburning et de postcombustion, elles doivent cependant permettre de terminer la combustion dans la troisième zone : une température optimale pour la réduction des NO<sub>x</sub> peut être trop faible pour finir la combustion du charbon ce qui diminue l'efficacité de combustion.

## **II-5 Influence du temps de séjour des différentes zones**

Les temps de séjour dans les trois zones sont déterminés par les lieux d'injection du combustible de reburning et de l'air de postcombustion. Comme pour les autres paramètres, plusieurs études ont été menées afin de déterminer la valeur optimale des temps de séjour permettant de réduire les NO<sub>x</sub> mais également de conserver l'efficacité de combustion.

### **II-5-1 Zone primaire**

Lorsque le combustible principal de l'installation est du charbon, un temps de séjour trop faible dans la zone primaire entraîne une combustion incomplète [27, 43]. Chen *et al.* [27] considèrent que le temps de séjour optimal de la zone primaire est au minimum de 300 ms. Dans le cas contraire, l'azote du coke risque d'être transporté jusqu'à la zone de postcombustion où il va se transformer en NO<sub>x</sub> [32]. Par ailleurs, une combustion incomplète peut entraîner un excès d'oxygène dans la zone de reburning et nuire à l'efficacité du procédé de réduction des NO<sub>x</sub>.

### **II-5-2 Zone de reburning**

Kicherer *et al.* [44] ont indiqué que le temps de séjour optimal dans la zone de reburning semble être différent pour des combustibles de reburning solides et gazeux. En

effet, le gaz réagit plus vite que les combustibles solides qui ont besoin de plus de temps pour assurer leur dévolatilisation et ainsi la réduction des NO<sub>x</sub>. Pour des temps de séjour plus long, les différences disparaissent entre les deux types de combustible.

Ainsi, selon Lanier *et al.* [28], dans le cas d'un reburning au gaz naturel, le temps de séjour dans la zone de reburning doit être de l'ordre de 50 à 75 ms. Dans le cas d'un reburning au charbon, la longueur de la zone de reburning optimale sur le pilote de Mulholland *et al.* [36] a été de 0,5 à 1 m, ce qui correspondait à un temps de séjour de 200 à 400 ms. Leurs résultats ont montré que, pour minimiser la conversion de l'azote du combustible de reburning en NO<sub>x</sub>, le temps de séjour de la zone de reburning doit être suffisant pour permettre la formation de N<sub>2</sub> et la stœchiométrie de la zone primaire doit être minimisée. Plus grande est la teneur en azote du combustible, plus grande est l'influence de la stœchiométrie de la zone primaire.

D'après Miyamae *et al.* [42], le temps de séjour dans la zone de reburning doit être au minimum de 400 ms. Cela permet aux espèces azotées comme le NH<sub>3</sub> ou le HCN de se décomposer progressivement en N<sub>2</sub>, de sorte qu'ils ne pourront pas former des NO<sub>x</sub> dans la troisième zone.

D'ordre général, l'augmentation du temps de séjour des particules dans la zone de reburning permet de mieux décomposer les espèces azotées [38] et d'accentuer les réductions de NO<sub>x</sub> de 15 à 20 % [42, 43]. Toutefois, selon Lanier *et al.* [28], il ne faut pas prendre un temps de séjour trop grand pour la zone de reburning car la température de la zone de postcombustion deviendra insuffisante.

### II-5-3 Zone de postcombustion

Le temps de séjour dans la zone de postcombustion doit être suffisant pour assurer la combustion complète du combustible et permettre la conversion du HCN/NH<sub>3</sub> en N<sub>2</sub> : le temps de séjour optimal dépend non seulement de la température de cette zone et de la réactivité du charbon [32] mais également de la géométrie de l'installation.

### II-6 Influence de la concentration en NO<sub>x</sub> issus de la zone primaire

Pour des faibles teneurs de NO<sub>x</sub> primaires, on n'obtient pas de bons résultats avec le reburning au charbon [42]. Dans ce cas, le recours à du gaz naturel pour le reburning est plus efficace. Cela s'explique par l'azote contenu dans le charbon [39]. McCarthy *et al.* [38] indiquent qu'avec du gaz naturel, les réductions restent sensiblement constantes, quelque soit la teneur initiale en NO<sub>x</sub>.

D'après Lanier *et al.* [28], pour des taux de NO<sub>x</sub> primaires très bas, il y a peu ou pas de réduction de NO<sub>x</sub>. Une augmentation des émissions de NO<sub>x</sub> est même possible. En effet, l'activation de N<sub>2</sub> devient plus rapide que la destruction des NO<sub>x</sub> :



Mereb *et al.* [41] ont montré sur un banc d'essai que l'azote moléculaire réagit avec les radicaux CH<sub>i</sub>. Cette réaction diminue la réduction des NO<sub>x</sub> par les radicaux CH<sub>i</sub> pour des teneurs de NO<sub>x</sub> primaires relativement faibles.

Pour des teneurs en NO<sub>x</sub> primaires plus importantes, le taux de réduction devient indépendant de la teneur initiale [35].



## II-7 Autres facteurs

D'autres facteurs influencent la réduction des émissions de NO<sub>x</sub> par le reburning dont notamment la qualité du mélange du combustible de reburning avec les gaz de combustion issus de la zone primaire mais également la géométrie de l'installation. Dans le cas où le charbon est utilisé comme combustible de reburning, le transport et la granulométrie du charbon influencent également l'efficacité du procédé.

### II-7-1 La qualité du mélange

L'importance de la qualité du mélange du combustible de reburning avec les gaz issus de la zone primaire a été reconnue par plusieurs auteurs [27, 32]. Elle conditionne le taux de réduction mais également l'oxydation de l'azote contenu dans le combustible de reburning ainsi que celle des espèces azotées gazeuses et du coke dans la zone de reburning [27].

Selon Knill [32], la forme des injecteurs du combustible de reburning est de première importance pour l'obtention d'un mélange rapide et homogène entre les fumées issues de la zone primaire et le combustible de reburning.

De nombreuses études ont été menées sur l'injection optimale du combustible de reburning. Ainsi, Greene *et al.* [37] ont trouvé que l'injection radiale ou axiale de propane n'entraîne aucune différence dans les émissions de NO<sub>x</sub>. Chen *et al.* [27] ont cependant obtenu, par une injection radiale de gaz naturel et de charbon comme combustible de reburning, de meilleures réductions des émissions de NO<sub>x</sub>.

Kolb *et al.* [48] ont montré qu'avec une faible vitesse d'injection radiale, les jets de combustible de reburning ne pénètrent pas suffisamment dans les gaz issus de la zone primaire. Le mélange est de très mauvaise qualité entraînant une réduction des émissions de NO<sub>x</sub> très hétérogène. Avec une vitesse d'injection plus importante, le mélange est plus rapide, le NH<sub>3</sub> et le HCN se décomposent très vite. La réduction est alors pratiquement uniforme dans la zone de reburning. Les auteurs ont proposé comme paramètres pour caractériser le mélange, la longueur de mélange (distance entre la buse d'injection et le lieu où le mélange du gaz injecté avec les fumées de la zone primaire est total), le temps de mélange (temps pour avoir un mélange total) et la longueur de pénétration maximale du jet :

$$\text{Longueur de mélange } l = (1 / 0,32) \cdot d_2 \cdot [(m_1 + m_2)/m_2] \left[ \rho_2 / \rho_1 \right]^{1/2} \quad (1.46)$$

$$\text{Temps de mélange } \tau = [(C_i \cdot l^2) / (u_2 \cdot d_2)] \cdot \left[ \rho_1 / \rho_2 \right]^{1/2} \quad (1.47)$$

$$\text{Pénétration du jet } l_{\max} = 1.224 \cdot d_2 \cdot \left[ (\rho_2 \cdot u_2^2) / (\rho_1 \cdot u_1^2) \right]^{1/2} \quad (1.48)$$

où :

d est le diamètre des trous d'injection en m

m est le débit massique en kg.s<sup>-1</sup>

u est la vitesse en m.s<sup>-1</sup>

ρ est la masse volumique en kg.m<sup>-3</sup>

C<sub>i</sub> est une constante égale à 0,075 pour un jet de gaz naturel dans de l'air

l'indice 1 est relatif aux gaz de la zone de combustion primaire et l'indice 2 au gaz du jet.

Overmoe, Mccarthy, Chen *et al.* [43] ont indiqué que la configuration des injecteurs de reburning peut être optimisée par modélisation. Selon Chen *et al.* [27], la réduction des NO<sub>x</sub> par le reburning ne dépend pas du mélange de l'air de postcombustion avec les gaz issus de la zone de reburning tant que cet air ne re-circule pas dans la zone de reburning, ce qui réduirait le temps de séjour dans cette zone. Overmoe, Mccarthy, Chen *et al.* [43] ainsi que McCarthy *et al.* [38] ont noté également que la configuration des injecteurs d'air de postcombustion et donc la qualité du mélange au niveau de la zone de postcombustion affectent peu les émissions finales de NO<sub>x</sub>. Quelque soit le combustible de reburning, les réductions de NO<sub>x</sub> sont les mêmes avec une injection d'air de postcombustion radiale ou axiale [37].

Plusieurs auteurs ont conclu que le mélange rapide du charbon utilisé comme combustible de reburning avec les gaz issus de la zone primaire favorise la réduction des NO<sub>x</sub> primaires mais facilite également l'oxydation de l'azote du combustible, particulièrement si le charbon est transporté avec de l'air. Certains ont noté l'intérêt de transporter le charbon avec une partie des gaz de combustion prélevée en sortie du foyer (re-circulation des gaz de combustion ou Flue Gas Recirculation, FGR), limitant cette l'oxydation [27].

### II-7-2 Géométrie de l'installation expérimentale

D'après Chen *et al.* [39], quelque soit la taille de l'installation expérimentale, les paramètres influençant le taux de réduction des NO<sub>x</sub> sont : la zone de reburning qui doit être aussi large et chaude que possible et la stœchiométrie de cette zone qui doit être égale à environ 0,9. L'efficacité du reburning dépend de la configuration et de la géométrie du foyer : les temps de séjour dans les différentes zones doivent être respectés pour obtenir une bonne dénitrification des fumées [32].

Spliethoff *et al.* [49] ont comparé les résultats obtenus avec un réacteur de laboratoire à ceux obtenus avec un pilote de 0,5 MW. La comparaison a montré que les effets des paramètres d'études et les émissions de NO<sub>x</sub> sont similaires pour les deux installations. Seul l'effet du temps de séjour de l'installation diffère. En effet, lorsqu'il est élevé dans le pilote de 0,5 MW, l'air de postcombustion est injecté tardivement ce qui entraîne la formation d'imbrûlés. Or, la teneur en imbrûlés doit être un critère essentiel pour l'application d'un procédé de réduction de NO<sub>x</sub> sur une installation.

Miyamae *et al.* [42] ont montré que la réduction des NO<sub>x</sub> par le reburning est possible pour une installation industrielle (chaudière de 55 et de 600 MW). La stœchiométrie optimale pour la zone de reburning est de 0,9 environ. Le mélange du combustible de reburning avec les gaz issus de la zone primaire est amélioré par une vitesse d'injection élevée de ce combustible. Le pourcentage de réduction des NO<sub>x</sub> est toutefois supérieur en expérimentant le reburning sur un four pilote. Miyamae en a conclu que, globalement, l'efficacité du reburning appliqué à une installation industrielle dépend entre autres du mélange entre les gaz issus de la zone primaire et le combustible de reburning, du temps de séjour dans la zone de reburning, du moyen de transport du combustible de reburning, de la température et de la stœchiométrie de la zone de reburning.

### II-7-3 Transport du combustible de reburning

D'après McCarthy *et al.* [38], il est préférable d'utiliser un gaz inerte pour transporter le charbon de reburning. Selon Miyamae *et al.* [42] et Overmoe *et al.* [43], les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> sont plus importantes lorsque le charbon est transporté par des fumées prélevées en sortie du foyer (re-circulation des fumées ou Flue Gas Recirculation, F.G.R.).

C'est un mode de transport qui diminue l'apport d'oxygène dans la zone de reburning et limite l'oxydation de l'azote du combustible. En utilisant de l'air comme moyen de transport du charbon, il est nécessaire d'augmenter la fraction de combustible de reburning (McCarthy indique 30 % au lieu de 20) et de baisser la stœchiométrie primaire (1,0 au lieu de 1,1) pour obtenir les mêmes résultats.

Overmoe *et al.* [43] signalent aussi que l'influence du gaz de transport sur les émissions de NO<sub>x</sub> devient moins importante lorsque la stœchiométrie de reburning est plus faible (fraction de combustible de reburning de 25 % et stœchiométrie de reburning égale à 0,85).

Par ailleurs, McCarthy *et al.* [38] ont noté que les performances d'un jet (obtention d'un mélange homogène avec les gaz de combustion issus de la zone primaire) dépendent du combustible de reburning utilisé (charbon ou gaz naturel) mais aussi, dans le cas du charbon, du gaz de transport (air ou FGR).

#### **II-7-4 Granulométrie du charbon utilisé comme combustible de reburning**

Knill *et al.* [31, 32] ont étudié l'influence de la granulométrie du charbon utilisé comme combustible de reburning avec un four à chute : l'utilisation d'un charbon plus finement broyé (93 % en masse des particules d'une taille inférieure à 75 µm) voire micronisé (100 % en masse des particules d'une taille inférieure à 40 µm) réduit la teneur en carbone imbrûlé retrouvé dans les cendres mais n'influence pas beaucoup la réduction des teneurs en NO<sub>x</sub> et en d'autres espèces azotées.

Chen *et al.* [27] ont indiqué que décroître la taille des particules est intéressant car cela permet l'oxydation de l'azote combustible dans une zone pauvre en oxygène et améliore la combustion du carbone.

Par ailleurs, sur un pilote de 200 kW, Yang *et al.* [34] ont obtenu de meilleures réductions de NO<sub>x</sub> avec du charbon finement broyé comme combustible de reburning. Une réduction de la taille des particules de 75 à 100 % en masse des particules d'une taille inférieure à 63 µm a permis d'augmenter le taux de NO<sub>x</sub> éliminés de 46 à 52 %.

### **II-8 Conséquences du reburning**

L'application du reburning sur une installation industrielle a pour objectif de réduire les émissions des NO<sub>x</sub> (NO+NO<sub>2</sub>) mais, en même temps, d'autres effets apparaissent : détérioration de l'efficacité de combustion (CO dans les fumées, carbone dans les cendres ou « imbrûlés solides »), dégradation du brûleur et apparition potentielle d'un autre oxyde d'azote, le N<sub>2</sub>O, dont les effets indésirables ont été présentés dans le chapitre 1 de cette partie.

#### **II-8-1 Imbrûlés solides**

Dans son rapport, Knill [32] cite quelques références concernant l'augmentation des imbrûlés solides dans les conditions de reburning. Cette augmentation qui peut devenir très importantes dépendraient de plusieurs paramètres, en particulier du combustible. Chen *et al.* [27] ont noté qu'une réduction de 50 % des émissions de NO<sub>x</sub> avec du gaz naturel comme combustible de reburning n'entraîne aucune modification significative du carbone imbrûlé.

Miyamae *et al.* (d'après [32]) ont remarqué que les teneurs en carbone imbrûlé dans les cendres sont plus faibles (4 % pour des émissions de NO<sub>x</sub> entre 100 et 200 ppm) lorsque l'on applique le reburning au charbon sur une chaudière à charbon pulvérisé. Leikert *et al.* (d'après [32]) ont cependant montré que les teneurs de carbone imbrûlé peuvent être très importantes (10 à 20 %) avec des charbons bitumineux comme combustible de reburning.

Lisauskas *et al.* (d'après [32]) ont trouvé que le carbone imbrûlé dépend également de plusieurs paramètres dont la fraction de combustible de reburning (une importante fraction de charbon introduite comme combustible de reburning peut entraîner de hautes teneurs en carbone imbrûlé dans les cendres), la stœchiométrie primaire, la température et le temps de séjour dans la zone de postcombustion.

### II-8-2 Emission de CO

Chen *et al.* [39] n'ont pas trouvé d'augmentations significatives des émissions de CO jusqu'à une certaine valeur de la fraction de combustible de reburning (cas du reburning au charbon et au gaz). A partir d'une fraction de combustible de reburning de 15 à 20 %, les émissions de CO et le carbone trouvé dans les cendres augmentent sensiblement.

### II-8-3 Emission de N<sub>2</sub>O

Kristensen *et al.* [50] ont signalé que la réduction des émissions de NO<sub>x</sub> par le reburning peut s'accompagner d'une formation de N<sub>2</sub>O en particulier dans la zone de postcombustion. Toutefois, selon Chen *et al.* [35], le N<sub>2</sub>O apparaît comme intermédiaire : c'est un composé relativement instable à haute température qui se décompose rapidement en N<sub>2</sub>. En effet, la formation de N<sub>2</sub>O a lieu vers 700-800 °C et vers 1000 °C, il se décompose en N<sub>2</sub> [50, 51].

D'après Lanier *et al.* [28], le HCNO qui résulte de l'oxydation du HCN peut entraîner la formation de N<sub>2</sub>O mais la concentration du N<sub>2</sub>O est inférieure à 1 ppm dans la zone de reburning et de postcombustion.

La réduction des émissions de NO<sub>x</sub> par le reburning s'accompagne donc d'une augmentation des imbrûlés solides et gazeux dont les teneurs varient en fonction des conditions opératoires du reburning (température, temps de séjour, stœchiométrie) et du combustible de reburning utilisé.

## III – Les dispositifs expérimentaux des organismes de recherche

Les résultats discutés auparavant ont été obtenus avec des installations de différentes tailles. Beaucoup de chercheurs ont utilisé des réacteurs de petite taille permettant de simuler la zone primaire et les réactions ayant lieu dans la zone de reburning. La température est obtenue en chauffant électriquement le réacteur jusqu'à 1400-1500 °C et les temps de séjour sont faibles (généralement inférieurs à 300 ms). D'autres ont utilisé des fours à chute voire des pilotes pour expérimenter entre autres le reburning au charbon. Le temps de séjour est plus grand (entre 300 ms et 4 s) et la température est obtenue par un brûleur à gaz ou à charbon. La variation de la teneur en NO<sub>x</sub> primaires est généralement obtenue en ajoutant de l'ammoniaque au combustible principal ou du NO dans le cas de combustibles gazeux.

Ainsi, Bilbao *et al.* [45, 47, 52] ont expérimenté le reburning au gaz naturel sur un réacteur de 2500 mm de long et de 20 mm de diamètre, muni d'un foyer électrique permettant

d'atteindre 1500 °C (figure 1.20). Le temps de séjour varie de 100 à 280 ms. Les gaz de combustion de la zone primaire sont simulés par un mélange d'oxygène, de N<sub>2</sub> et de CO<sub>2</sub>. Du gaz naturel et du NO sont ensuite mélangés à ces gaz afin de simuler l'injection du combustible de reburning et la teneur en NO primaire avant d'être dirigé vers le réacteur.

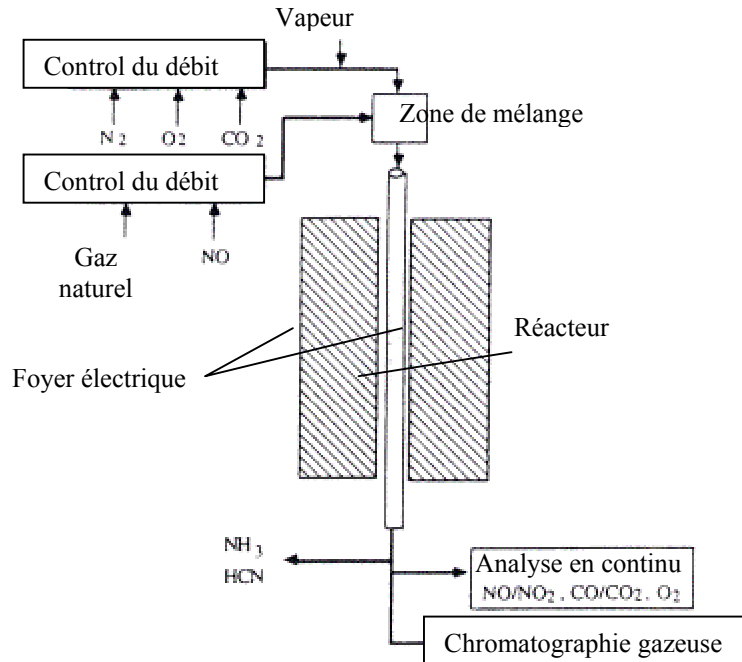


Figure 1.20 : Réacteur simulant le reburning au gaz naturel [45, 47, 52]

Knill [32] a étudié le reburning au charbon au moyen d'un four à chute équipé d'un brûleur à gaz et d'un réacteur de 2000 mm de haut et de 117 mm de diamètre (figure 1.21). La combustion dans la première zone est simulée en brûlant du gaz naturel avec de l'air, NO étant additionné aux gaz de combustion.

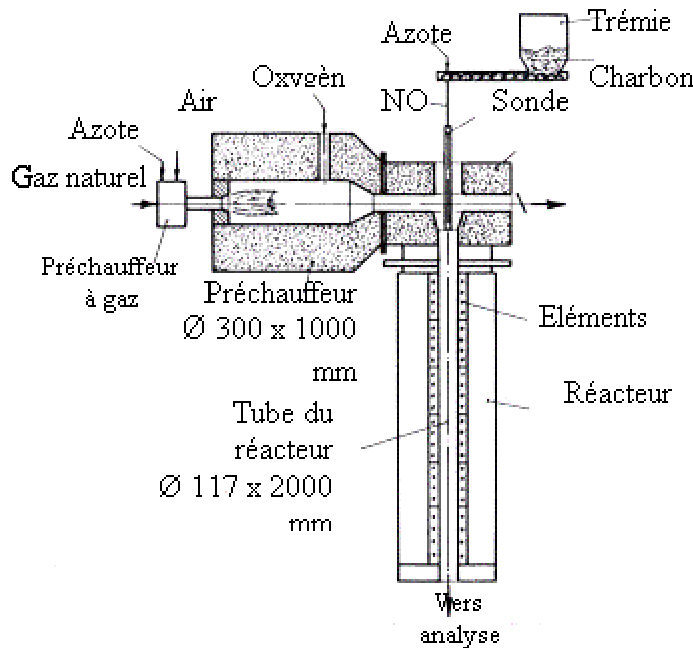


Figure 1.21 : Four à chute (Flame Research International Foundation, F.R.I.F.) [31, 32]

La vitesse des gaz est de l'ordre de 5 à 15 m.s<sup>-1</sup>. Du charbon est injecté comme combustible de reburning dans les gaz de combustion issus de la première zone. L'ensemble des gaz est ensuite dirigé vers le réacteur dont la température est de 1400 °C puis analysé. Le temps de séjour dans le réacteur peut atteindre 300 ms maximum.

Yang *et al.* [34] ont étudié le reburning sur un pilote de 3 m de long délivrant au maximum 0,2 MW (figure 1.22). Ce pilote est équipé d'un brûleur à propane. Le temps de séjour total du pilote est de 1,2 à 1,8 s selon les conditions opératoires. Les injections du combustible de reburning et d'air de postcombustion permettant d'obtenir les meilleures réductions de NO<sub>x</sub> sont radiales et se situent respectivement à 40 et 110 cm du brûleur. La distance entre les deux points d'injection peut toutefois être variée. La concentration en NO<sub>x</sub> primaires peut être modifiée en ajoutant de l'ammoniac au propane.

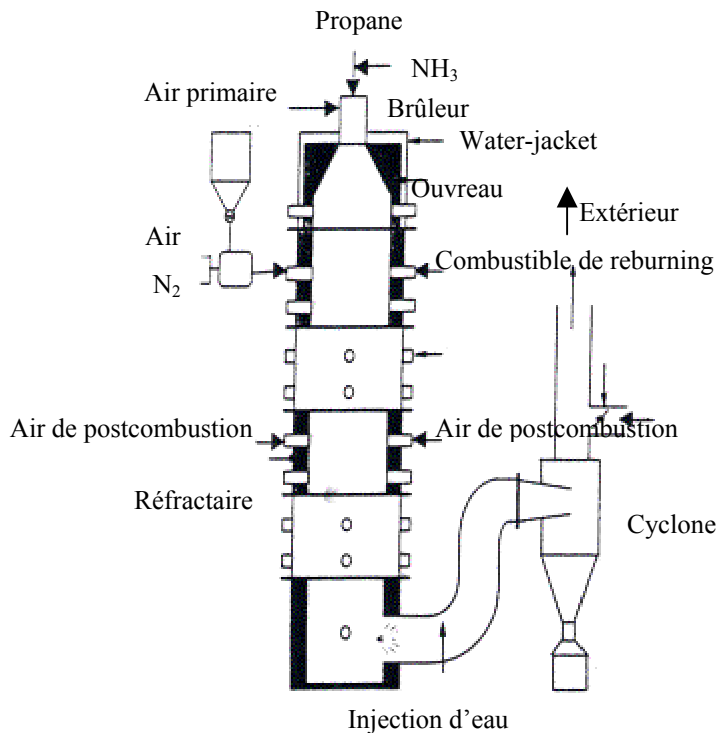


Figure 1.22 : Four de 0,2 MW [34]

Lanier *et al.* [28] et Mulholland *et al.* [36] ont effectué leurs essais sur un pilote muni d'un brûleur bas-NO<sub>x</sub> délivrant 0,75 à 0,88 MW (figure 1.23). Le pilote fait 3 m de longueur et 0,6 m de diamètre. La température du lieu d'injection du combustible de reburning est de 1400 °C environ au centre de la chaudière et de 1000 °C près de la paroi. Les gaz de combustion ont une vitesse de 3 à 8 m.s<sup>-1</sup>.

Les injections axiales de combustible de reburning et d'air de postcombustion permettant d'obtenir le maximum de réduction des NO<sub>x</sub> se situent respectivement à 1,02 m et à 1,62 m. Le maximum de réduction est obtenu avec une longueur de 0,6 m pour la zone de reburning en modifiant le point d'injection de l'air de postcombustion.

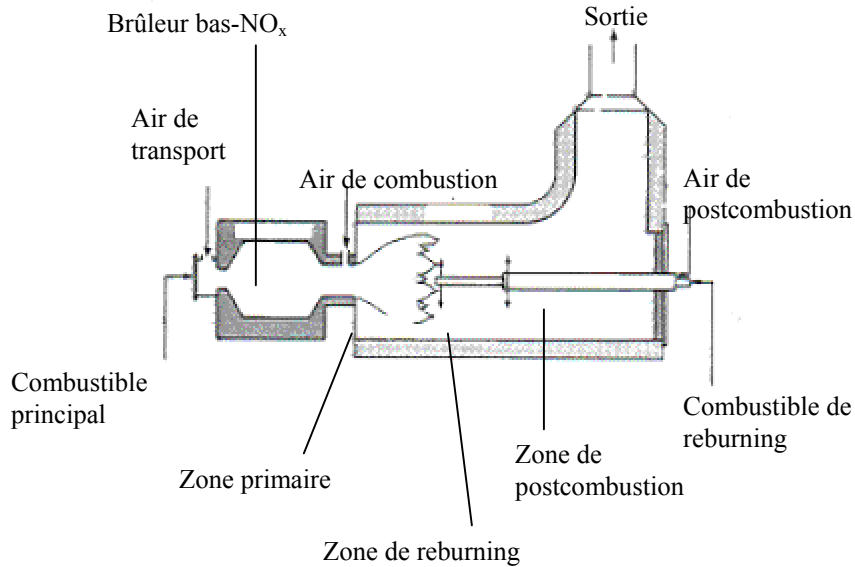


Figure 1.23 : Pilote de 0,80 MW [28, 36]

Chen *et al.* [29, 35, 39] ont mené des expériences de reburning sur un réacteur délivrant 25 kW avec du gaz naturel, du propane et du charbon pulvérisé comme combustible de reburning (figure 1.24). Les injections ont été faites radialement afin de permettre un rapide mélange avec les gaz issus de la zone primaire. D'autres expériences [27, 35] ont été réalisées sur un four pilote délivrant 3 MW (figure 1.24). Ce four a une longueur de 8 m et un diamètre de 1,2 m. Il est possible d'injecter une fraction de 15 à 20 % de combustible de reburning. L'injection se fait à une température de 1400 °C et à une distance de 3,2 m des brûleurs. L'injection de l'air de postcombustion se fait à 4,9 m de la zone principale, au moyen de 4 injecteurs, chacun avec un diamètre de 14,5 cm. La stœchiométrie de la zone de postcombustion est de 1,2.

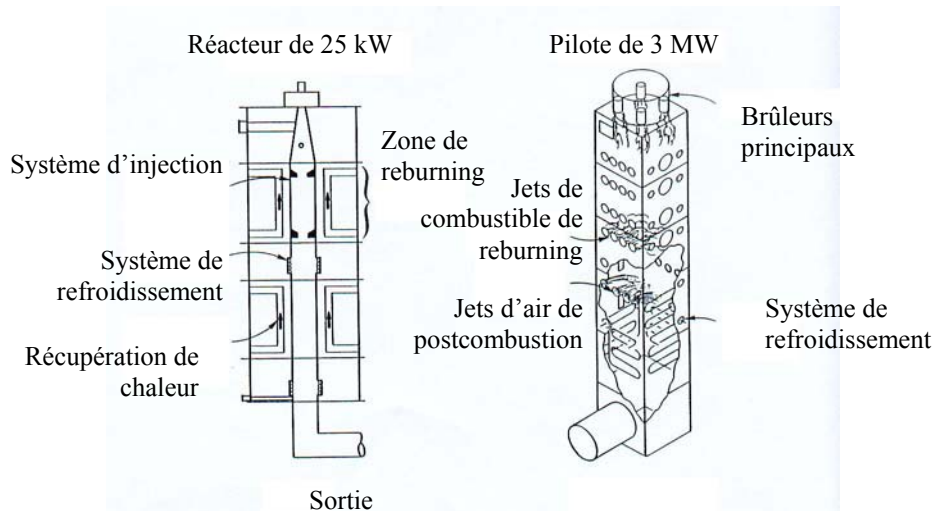


Figure 1.24 : Réacteur de 25 kW [29, 35, 39] et four de 3 MW [27, 35]

En dehors de ces expérimentations de reburning sur des réacteurs ou des pilotes de petite taille, plusieurs démonstrations ont eu lieu sur des installations industrielles aux Etats-

Unis. Smoot *et al.* [33] présentent quatre projets de démonstration aux Etats-Unis ayant pour objet de démontrer l'efficacité du reburning au gaz sur trois types de chaudière (chaudière tangentielle, frontale et à cyclone) et du reburning au charbon sur une seule unité. Ces unités sont relativement petites (30 à 170 MWe) et les réductions des NO<sub>x</sub> ont été de l'ordre de 30 à 70 %. La réduction dépend du type et de la puissance de la chaudière, du combustible de reburning et de l'utilisation simultanée de brûleurs bas NO<sub>x</sub>. Un tel procédé a été appliqué sur une chaudière à cyclone de 330 MWe. Un autre projet démontra l'efficacité d'un reburning au charbon micronisé sur une unité de 175 MWe.

En Europe, plusieurs pays ont établi un partenariat pour la démonstration d'un tel procédé au gaz sur une unité encore plus importante (600 MWe à Longannet en Ecosse) et au charbon sur une unité de 320 MWe (Vado-Ligure, Italie ; voir chapitre 4).

#### IV – Conclusion

L'utilisation du procédé reburning dépend d'abord de sa capacité à réduire les NO<sub>x</sub>, tout en maintenant l'efficacité de la combustion et le rendement de la chaudière, à un coût compétitif vis-à-vis d'autres techniques de réduction. Par ailleurs, il est possible de combiner le procédé du reburning avec d'autres technologies de réduction de NO<sub>x</sub> comme la SNCR ou de réduction d'autres polluants (en particulier les SO<sub>x</sub>, Greene *et al.* [37]).

L'efficacité du reburning dépend principalement :

- de la stœchiométrie, de la température et du temps de séjour dans la zone de reburning,
- du taux de NO<sub>x</sub> primaires entrant dans la zone de reburning,
- de la capacité du combustible de reburning à former des radicaux CH<sub>i</sub>, de sa teneur en azote et de son indice de matières volatiles,
- de la qualité du mélange entre le combustible de reburning et les gaz issus de la combustion primaire,

Les diverses expériences indiquent que la stœchiométrie optimale pour la zone de reburning est de 0,9, que la zone de reburning doit être aussi large et chaude que possible et qu'il est difficile de réduire les taux de NO<sub>x</sub> avec un combustible de reburning contenant de l'azote, surtout lorsque la teneur de NO<sub>x</sub> primaires est faible. Par contre, le gaz naturel, qui ne contient pas d'azote, permet d'atteindre des réductions très importantes, même si la teneur de NO<sub>x</sub> primaires est faible. Le tableau 1.3 indique en conclusion les valeurs ou solutions idéales des divers paramètres influençant le procédé du reburning. Au travers de ces études, on peut noter que l'influence des paramètres d'études semble être indépendante de la taille des installations expérimentales.



Paramètres d'études	Optimum	Commentaires
Type de Combustible	Gaz naturel souvent plus efficace que le charbon	Le charbon et le gaz naturel peuvent être équivalents en terme d'efficacité de réduction des NO <sub>x</sub>
Fraction de combustible de reburning	Fraction de combustible de reburning au minimum de 10 % et au maximum de 20-30 % en fonction de l'installation	Radicaux CH <sub>i</sub> en quantité suffisante pour réduire les NO <sub>x</sub>
Stœchiométrie de reburning	0,65 - 0,95	Faible quantité d'oxygène pour oxyder le HCN en HNCO
Temps de séjour dans la zone de reburning	Temps de séjour selon le combustible de reburning : entre 300 ms et 1 s	Temps nécessaire pour transformer le HCN en N <sub>2</sub>
Température de la zone de reburning	Température supérieure à 1200 °C	Température de 1500 °C entraîne une importante formation de NO <sub>x</sub> thermiques
Mélange du combustible de reburning avec les gaz issus de la zone primaire	Rapide	Nécessité de modéliser l'écoulement et l'injection
Teneur en azote du combustible de reburning	Faible teneur en azote afin de limiter la formation de NO <sub>x</sub>	Problèmes pour des concentrations faibles en NO <sub>x</sub> primaires
Matières volatiles et réactivité du coke (charbon pulvérisé)	Haute teneur en matières volatiles, réactivité élevée	Fonction de la nature du charbon
Teneur en NO <sub>x</sub> primaires	Fonction du type de combustible de reburning	Faible efficacité du reburning pour teneur initiale en NO <sub>x</sub> faible

Tableau 1.3 : Synthèse

## Chapitre IV

# Applications industrielles du reburning

### Introduction

Le reburning est un procédé pratique permettant de contrôler les émissions de NO<sub>x</sub> de chaudières industrielles de grandes tailles, à combustibles fossiles (charbon, fuel ou gaz naturel) ou brûlant des déchets. C'est aussi un procédé flexible et efficace ne nécessitant pas de modifications des brûleurs existants et d'utilisations d'agents chimiques ou catalytiques [53]. Plusieurs autres techniques existent mais elles présentent différents inconvénients notamment au niveau des coûts d'exploitation trop élevés.

En 1972, alors que la législation environnementale devenait de plus en plus stricte, Wendt et Sternling de Shell Development Company ont mis en évidence en laboratoire le procédé du reburning. Au début des années 1980, les Japonais ont expérimenté le reburning d'abord sur des pilotes puis commercialement. Par la suite, le reburning a été expérimenté aux Etats-Unis, avec l'aide de plusieurs organisations gouvernementales, commerciales et de recherche, sur plusieurs installations industrielles de types différents. Ces essais ont permis d'élaborer une base de données sur le reburning. Actuellement, plusieurs installations de combustion à charbon, d'incinérateurs de déchets ou/et de fours de verreries aux Etats-Unis ont recours au reburning au gaz naturel car c'est une des techniques qui peut engendrer des réductions de NO<sub>x</sub> considérables. Le charbon ou le fuel utilisé comme combustible de reburning permettent également de réduire les émissions de NO<sub>x</sub> [54, 55, 56 57].

### I – Applications industrielles aux Etats-Unis

#### I-1 Introduction

Les applications industrielles nord-américaines du reburning au gaz naturel ou au charbon ont eu lieu sur des unités à charbon d'une centaine de mégawatts. Le gaz apparaît comme le combustible de reburning préféré, permettant de réduire globalement les émissions de NO<sub>x</sub> de 58 à 77 %. Toutefois, le charbon pulvérisé a également donné de bons résultats : les

réductions des émissions sont de 35 à 55 %. Les résultats sont encore meilleurs lorsque le broyage du charbon est amélioré (charbon dit micronisé), les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> peuvent alors atteindre 60 à 70 %. Certaines installations ont utilisé le reburning, combiné avec d'autres technologies de réduction des émissions de NO<sub>x</sub> (brûleurs bas-NO<sub>x</sub>) et/ou avec la re-circulation d'une partie des fumées de combustion.

## **I-2 Reburning au gaz naturel**

### **I-2-1 Configuration d'une chaudière équipée du procédé de reburning**

Plusieurs facteurs conditionnent la configuration optimale du reburning : les caractéristiques du foyer, le type de combustible, la forme des injecteurs de gaz naturel et d'air et le contrôle de la flamme. De ce fait, de nombreuses études de modélisation ont été menées et ont démontré entre autres que le reburning ne requiert aucune modification du système principal de combustion de la chaudière. Elles ont également confirmé que plusieurs types de combustibles pouvaient être utilisés ; néanmoins, le gaz naturel reste le combustible privilégié car il ne contient pas de cendres, de soufre ni d'azote. Cela permet de réduire les cendres volantes et les cendres du foyer, le SO<sub>2</sub> et les NO<sub>x</sub>. Par ailleurs, le gaz naturel est un combustible facile à manutentionner [58, 59].

La mise en place d'un reburning sur une unité demande cependant la réunion de certaines conditions. Parmi celles-ci, on peut noter la forme des injecteurs de gaz naturel (comme l'injection doit se faire dans une zone à haute température, les injecteurs doivent se situer dans une zone proche des brûleurs et permettre un mélange rapide avec les gaz de combustion issus de la zone primaire). Pour augmenter la vitesse du jet de gaz et optimiser cette injection, il est possible de re-circuler une partie des fumées ou améliorer la configuration des injecteurs de gaz. Concernant les injecteurs d'air, ils doivent être localisés assez loin des brûleurs pour maximiser le temps de séjour de la zone de reburning. L'injection doit permettre un mélange efficace, complet et rapide.

### **I-2-2 Installations industrielles**

Le reburning au gaz naturel a été appliqué sur plusieurs installations avec comme objectif de ne pas modifier le fonctionnement de la chaudière. Le gaz naturel était, dans la plupart des cas, mélangé avec une partie des fumées de combustion re-circulées avant son injection dans la chaudière. Le combustible principal est du charbon pulvérisé.

#### ➤ La chaudière tangentielle de Hennepin, Illinois (figure 1.25) [58, 59]

C'est une chaudière d'une puissance de 71 MW équipée de brûleurs répartis sur 3 étages. Les essais de reburning au gaz ont débuté en 1992. Les émissions de référence (avant reburning) étaient de 0,75 lbNO<sub>x</sub>.10<sup>6</sup> Btu (323 grammes/GigaJoule) ou 550 ppm à 3 % d'O<sub>2</sub>. Des essais paramétriques de longue durée ont montré que les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> par le reburning pouvaient atteindre 67 à 75 %. L'apport énergétique du combustible de reburning représentait alors 18 % de la charge énergétique totale de la chaudière. D'autre part, il a suffi d'apporter 10 % de l'énergie par le gaz naturel de reburning pour réduire les émissions de NO<sub>x</sub> de 55 %.

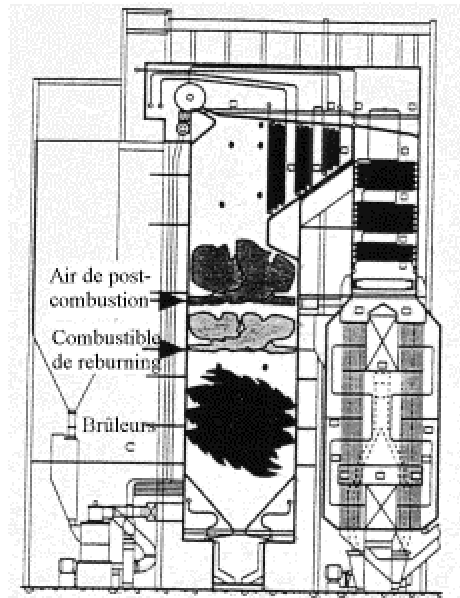


Figure 1.25 : Exemple de reburning sur une chaudière tangentielle

Les impacts du procédé sur les autres paramètres de combustion sont les variations de la teneur en CO de -1 à + 9 ppm et de la teneur en carbone imbrûlé de + 0,5 à + 1,7 %. L'efficacité thermique de la chaudière a diminué de 0,3 à 1,1 %. Le gaz naturel a été injecté avec une re-circulation des fumées de combustion.

➤ La chaudière frontale de Cherokee, Colorado (figure 1.26) [54, 58, 59, 60]

C'est une chaudière d'une puissance de 158 MW. La chaudière a déjà été équipée de brûleurs bas- $\text{NO}_x$ , ce qui a permis de réduire les émissions de  $\text{NO}_x$  de 30 à 40 %. Les essais de reburning ont débuté en 1993. Les émissions de  $\text{NO}_x$  de référence (avant reburning) étaient de  $0,73 \text{ lbNO}_x \cdot 10^6 \text{ Btu}$  ( $314 \text{ g/GJ}$ ) ou 535 ppm à 3 % d' $\text{O}_2$ . La réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  par la mise en place du reburning a été de 60 à 73 %.

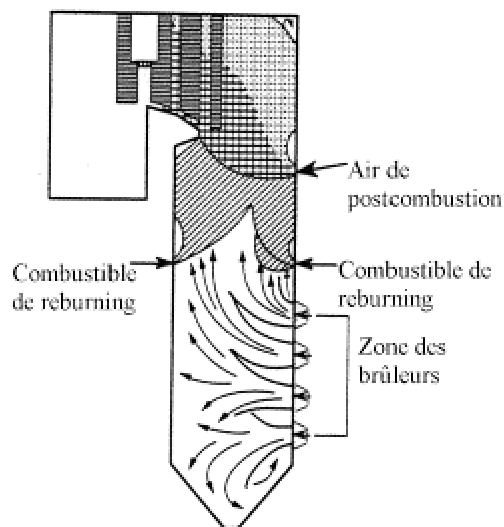


Figure 1.26 : Exemple du reburning sur une chaudière frontale

La charge énergétique apportée par le combustible de reburning était de 18 % de la charge énergétique totale de la chaudière : 5 à 10 % de charge fournie par le gaz naturel comme combustible de reburning permet d'obtenir 60 à 65 % de réduction des émissions de NO<sub>x</sub>. Les principaux brûleurs ont été dirigés vers le bas et ont fonctionné à faible excès d'air. Malgré ces modifications, le rendement de la chaudière ne s'est pas trouvé sensiblement modifié.

➤ La chaudière à cyclone de Lakeside Station, Springfield, Illinois (figure 1.27) [58, 59]

C'est une chaudière d'une puissance de 33 MW. Les essais de reburning ont débuté en 1994. Les émissions de NO<sub>x</sub> de référence (avant reburning) étaient de 0,95 lbNO<sub>x</sub>.10<sup>6</sup> Btu (430 g/GJ) ou 695 ppm à 3 % d'O<sub>2</sub>. La réduction des émissions de NO<sub>x</sub> a été de 52 à 77 %.

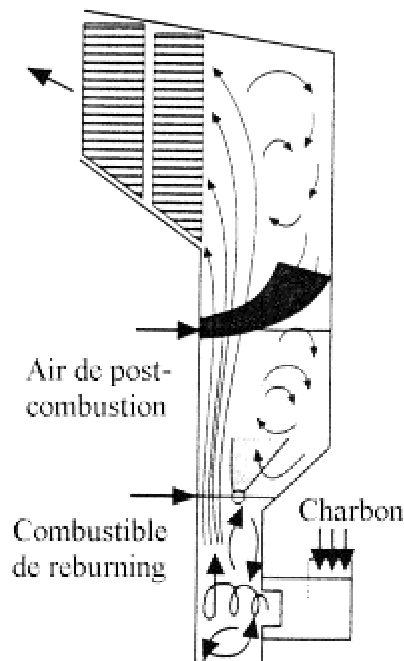


Figure 1.27 : Exemple de reburning sur une chaudière à cyclone

Pour ces trois unités de démonstration de reburning au gaz naturel, les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> ont varié globalement de 50 à 70 %. L'excès d'air dans la première zone était en règle générale de 10 %. La re-circulation des gaz de combustion a été utilisée pour optimiser les temps de mélange et la stœchiométrie de la zone de reburning. L'excès d'air dans la troisième zone était de 15 %. Dans les trois cas, la stœchiométrie optimale de la zone de reburning était de 0,9. Les temps de séjour dans la zone de reburning étaient de 0,5 s pour les chaudières tangentielle et frontale et de 0,25 s pour la chaudière à cyclone.

La charge énergétique fournie par le combustible de reburning, pour laquelle les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> ont été maximales, était de 10 à 20 % pour la chaudière tangentielle et frontale. Concernant la chaudière à cyclone, plus le pourcentage de gaz de reburning augmentait, plus la réduction des émissions de NO<sub>x</sub> devenait importante.

Les impacts sur le rendement de l'installation lors du reburning ont été relativement mineurs pour les trois types de chaudière (perte de rendement compris entre 0,5 et 1,7 %). Des dépôts de cendres n'ont pas été significativement accrus.

Sur les mêmes chaudières tangentielles (Hennepin) et frontale (Cherokee), le gaz naturel utilisé comme combustible principal et comme combustible de reburning a par ailleurs permis d'obtenir des réductions des émissions de NO<sub>x</sub> de 56 à 64 %.

Par ailleurs, ces démonstrations ont mis en évidence le fait que l'utilisation de la re-circulation des fumées accentue peu les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> et entraîne des coûts d'installation importants. De plus, le reburning au gaz naturel peut être appliqué à une chaudière munie de brûleurs classiques. L'utilisation de brûleurs bas-NO<sub>x</sub> permet d'accroître les réductions des NO<sub>x</sub>.

➤ Chaudière à cyclone de Niles Station [61, 62]

C'est une chaudière d'une puissance de 108 MW. Les émissions de NO<sub>x</sub> de référence (sans reburning) étaient de 705 ppm à 3 % d'O<sub>2</sub>. La réduction des émissions de NO<sub>x</sub> était de l'ordre de 30 à 70 %.

La stœchiométrie de reburning optimale est fonction de la charge délivrée par la chaudière : pour une puissance totale de 108 MW et 18 % de charge énergétique délivrée par le gaz naturel de reburning, la stœchiométrie optimale était de 0,88 à 0,9 ; pour 86 MW et toujours 18 % de charge énergétique délivrée par le combustible de reburning, elle était de 0,92. La réduction des émissions des NO<sub>x</sub> est également fonction de la stœchiométrie de reburning. Néanmoins, quelque soit la puissance délivrée par la chaudière, la réduction maximale des émissions de NO<sub>x</sub> est constante.

Les teneurs en CO ont eu tendance à augmenter et la perte par le carbone imbrûlé était de 1 à 1,2 %. Pour une charge thermique, délivrée par la chaudière, constante, le rendement de la chaudière diminue de 0,7 % lors de l'application du reburning. En conservant un bon rendement de chaudière et des émissions de CO acceptables, les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> peuvent être de 50 à 60 %.

### **I-3 Le reburning au charbon**

Le prix du gaz est indexé sur celui du pétrole. Il subit donc périodiquement des envolées qui rendent aléatoire la rentabilité du reburning au gaz. L'utilisation du charbon dont les prix sont moins volatils à la place du gaz peut permettre de remédier à ce problème. Le défi à relever avec le charbon est d'arriver à réduire correctement les NO<sub>x</sub> tout en préservant un rendement de combustion élevé.

#### **I-3-1 Le reburning au charbon pulvérisé**

Le procédé du reburning au charbon pulvérisé a été implanté sur une chaudière à cyclone de 110 MW (Cassville, Wisconsin) [54]. Le combustible de reburning a été le même que le combustible principal. Les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> ont été de plus de 50 %. Les stœchiométries optimales pour la zone de reburning étaient comprises dans l'intervalle 0,85-0,95. La re-circulation des fumées de combustion a été utilisée afin de refroidir les brûleurs et afin d'obtenir un bon mélange du charbon avec les gaz issus de la combustion

primaire. Aucun impact négatif n'a été relevé, seule une légère réduction de l'efficacité de la chaudière a été enregistrée lors du reburning au charbon. Aucun dépôt de cendres ni de corrosion de tubes d'eau n'a été signalé.

### **I-3-2 Le reburning au charbon très fin (charbon micronisé)**

L'utilisation de charbon très fin (« micronisé » défini par 80 % de particules de taille inférieure à 43  $\mu\text{m}$ ) permet d'améliorer la combustion du mélange air/charbon. Plusieurs unités ont été modifiées afin d'utiliser un tel combustible en vue d'augmenter les performances du reburning au charbon [54, 63].

#### ➤ Chaudière tangentielle de 150 MW (Lansing, New York) [54]

Cette chaudière est équipée de quatre niveaux de brûleurs à charbon pulvérisé. Les brûleurs supérieurs ont été utilisés pour injecter le charbon de reburning dans la partie supérieure du foyer. 20 % de la charge énergétique totale de la chaudière était délivrée par le combustible de reburning. Les émissions de  $\text{NO}_x$  de référence (sans reburning) sont de 0,35 lb/million Btu (150 g/GJ).

14 % de charge énergétique délivrée par le combustible de reburning a permis d'obtenir 28 % de réduction. Les pertes par imbrûlés ont été maintenues inférieures à 4 %. Durant les essais paramétriques, les excès d'air étaient un paramètre très important influençant la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  : un grand excès d'air augmente les émissions de  $\text{NO}_x$  mais diminue les pertes par imbrûlés. Par ailleurs, la granulométrie plus fine du charbon a augmenté les émissions de  $\text{NO}_x$  mais a diminué les pertes par imbrûlés. Inversement, l'augmentation de la charge délivrée par le combustible de reburning a diminué légèrement les émissions de  $\text{NO}_x$  mais a augmenté les pertes par imbrûlés.

#### ➤ Chaudière à cyclone de 50 MW (Rochester, New-York) [54]

Pour maximiser la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$ , le combustible de reburning de diamètre moyen des particules de 20  $\mu\text{m}$ , était transporté par une re-circulation des fumées de combustion. Les émissions de  $\text{NO}_x$  de référence (sans reburning) ont été de 1,25 lb/million Btu (540 g/GJ). La réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  a été en moyenne de 52 %.

Avec une charge énergétique de 17 % fournie par le combustible de reburning, la réduction était de 59 %. L'augmentation de la vitesse d'injection du charbon de reburning a permis d'atteindre des niveaux de réduction des  $\text{NO}_x$  comparables à ceux obtenus avec du gaz naturel. La perte par imbrûlés (teneur en carbone dans les cendres) a par contre considérablement augmenté. Initialement de 10 à 12 %, elle a été de l'ordre de 35 à 45 % avec le reburning.

#### ➤ Chaudière frontale de 175 MW (Shawnee, Tennessee) [63]

Peu de modifications ont été nécessaires au niveau de cette chaudière pour y implanter le reburning avec du charbon finement broyé. Seul un broyage très fin du charbon de reburning a été introduit permettant d'obtenir des diamètres de particules de 10 à 20  $\mu\text{m}$ . Les émissions de  $\text{NO}_x$  de référence (sans reburning) ont été de 0,82 à 0,95 lb/million Btu (354 à 410 g/GJ).

La charge énergétique délivrée par le combustible de reburning était de plus de 30 % de la charge totale de la chaudière. Les essais ont permis de réduire les émissions de NO<sub>x</sub> de 50 à 60 %.

## **I-4 Conclusion des applications du reburning**

### **I-4-1 Résultats**

L'application du reburning au charbon aux chaudières industrielles a permis une réduction des émissions de NO<sub>x</sub> de 50 à 60 %. Il a été démontré que le reburning au gaz naturel ou au charbon micronisé pouvaient être appliqués aux chaudières tangentielles, à cyclone ou frontales. Les réductions obtenues dépendaient de plusieurs facteurs dont le niveau d'émission de NO<sub>x</sub> avant reburning, les caractéristiques du foyer et la fraction énergétique délivrée par le combustible de reburning. La plus importante variable était la stœchiométrie de la zone de reburning dont les valeurs optimales étaient comprises dans l'intervalle 0,85-0,95, valeurs obtenues avec une fraction énergétique délivrée par le combustible de reburning de 10 à 30 %.

Les essais à longs termes ont montré des impacts mineurs sur la chaudière et sur ses équipements. Une perte de l'efficacité de la chaudière a souvent été enregistrée. En terme d'efficacité de réduction de NO<sub>x</sub>, le gaz et le charbon apparaissent tous les deux comme étant des combustibles efficaces [54].

Le reburning apparaît comme un procédé applicable à de nombreux types de chaudière (tangentielles, frontales, à cyclone) et combinable aux brûleurs bas-NO<sub>x</sub> ou à d'autres technologies de réduction des émissions de polluants gazeux (SO<sub>2</sub>). Avec la législation de plus en plus sévère pour les chaudières industrielles, le reburning a un réel potentiel de développement. Toutefois, utilisé seul, le reburning ne permet pas d'atteindre les seuils imposés par les nouvelles législations et doit être combiné à d'autres techniques telles que les brûleurs bas-NO<sub>x</sub>.

### **I-4-2 Coûts du reburning**

#### **a - Coûts du reburning au gaz naturel**

Les coûts d'installation du reburning au gaz naturel dépendent du type de chaudière, du type de combustible principal, de la disponibilité en gaz naturel de l'unité etc... Le coût du reburning au gaz naturel pour une chaudière frontale d'une puissance supérieure à 300 MWe (pour laquelle est supposée disponible une alimentation au gaz naturel) est estimé à 15 \$/kW (sans re-circulation des fumées de combustion) [58]. Ce coût, jugé raisonnable par les exploitants, n'englobe pas la maintenance. L'utilisation des brûleurs bas-NO<sub>x</sub> engendre un coût d'installation de 14 \$/kW [54, 58, 60].

Le recours au reburning au gaz réduit les problèmes liés à l'utilisation du charbon (dépôt de cendres, maintenance du broyage) mais augmente en général le coût « combustible ». Le tableau 1.4 présente les performances de différentes technologies permettant de réduire les NO<sub>x</sub> ainsi que leur coût global [60].



	Coûts (\$/kW)	Réduction
Brûleurs bas NO <sub>x</sub>	10-20	30-50 %
Etagement de l'air	10-20	10-20 %
SNCR	10-20	30-50 %
Reburning au gaz naturel	30-35	50-70 %
Reburning au gaz avec SNCR	40-45	70-90 %
Reburning au gaz avec brûleur bas-NO <sub>x</sub>	45-50	70-80 %
SCR	90-125	70-90 %

Tableau 1.4 : Estimation des coûts (avec maintenance) et réductions pour diverses techniques de réduction des émissions de NO<sub>x</sub> (base : chaudière de 500 MWe) [60]

### b - Coûts du reburning au charbon

Pour une chaudière à cyclone d'une puissance de 110 MWe, le coût du reburning au charbon pulvérisé est de 66 \$/kW dans le cas où l'on se fixe une réduction des émissions de NO<sub>x</sub> de 50 % (1075 \$/tonne de NO<sub>x</sub>). Pour une chaudière à cyclone de plus grande puissance (605 MWe), le coût est de l'ordre de 43 \$/kW (408 \$/tonne de NO<sub>x</sub>) [54]. En fait, le coût pour l'application du reburning au charbon sur une chaudière dépend entre autres de la configuration de l'unité industrielle, du type de chauffe, de combustible principal...

### c - Le choix du combustible

Le choix du gaz naturel ou du charbon comme combustible de reburning est une décision basée sur des considérations économiques. Les facteurs qui affectent la comparaison sont le coût différentiel entre le gaz naturel et le charbon, les coûts d'installations et opératoires, la disponibilité sur le site du gaz naturel, les impacts du combustible de reburning sur l'efficacité de la chaudière et/ou autres [54].

Par ailleurs, le coût de l'application du reburning au charbon peut être plus important que celui de l'application du reburning au gaz naturel notamment lorsque le charbon nécessite un broyage plus fin. Néanmoins, lorsque le gaz naturel n'est pas disponible sur le site, les coûts d'installation du reburning au gaz naturel peuvent excéder les coûts d'installation du reburning au charbon.

Par ailleurs, la re-circulation des fumées de combustion peut être utilisée aussi bien pour le reburning au gaz qu'au charbon afin d'améliorer la qualité du mélange dans la zone de reburning. En optimisant la forme des injecteurs, il est possible d'éliminer la re-circulation des fumées. Si elle peut être évitée, les coûts sont alors réduits.

### d- Résumé des applications de procédés de réduction des émissions de NO<sub>x</sub>

Le tableau 1.5 permet de résumer les différentes applications de reburning et de divers autres procédés permettant la réduction des émissions de NO<sub>x</sub> sur une installation industrielle.

	Unités	Techniques appliquées	Réduction des NO <sub>x</sub>
Les	Labadie (600MW)	LNCFS	30-50% [10]
Chaudières	Lynn Haven ( 180MW)	LNCFS	37-47% [16]
tangentielles	Hennepin (80MW)	Reburning au gaz	58-77% [16, 20]
	Greenidge (105MW)	Reburning au gaz	65% [21]
Les	Salem Harbor (87MW)	LNB	37-54% [24]
Chaudières	Salem Harbor (155MW)	LNB+O.F.A	52% [24]
frontales	Gibson Plant (650MW)	LNB+O.F.A	40-75% [10]
	Plant Hammond (500)	AO.F.A	24% [16, 20]
	Plant Hammond (500)	LNB	48% [16, 20]
	Plant Hammond (500)	AO.F.A+LNB	67% [16, 20]
	J.M.Stuart Pt (605MW)	LNCB	+de 50% [16, 20]
	Denver (172MW)	LNB+O.F.A+Reb.gaz	60-70% [16]
	Paducah (175MW)	Reb. Ch. Micron.	But:50-60% [20]
Les	Springfiel (40MW)	Reburning au gaz	+de 60% [16, 20]
Chaudières	Niles Station (108MW)	Reburning au gaz	45-50% [20]
à	Niles Station (108MW)	Reburning au gaz+FGR	50% [20]
cyclone	Cassville (110MW)	Reburning au CP	35-55% [16]
	Dewey (100MW)	Reburning au CP	57% [13]
	Rochester	Reburning. au Ch. micron.	58-77% [21]

Tableau 1.5 : Applications industrielles de procédés de réduction des émissions de NO<sub>x</sub>

## Lexique

LNB : brûleur bas-NO<sub>x</sub>

LNCB : brûleurs cellulaires bas-NO<sub>x</sub>

OFA ou AOFA : étagement de l'air

FGR : re-circulation des fumées de combustion

LNCFS : système de foyer concentrique bas-NO<sub>x</sub>

CP : charbon pulvérisé

## II – Situation en Europe

### II-1 Reburning au gaz naturel

#### II-1-1 Présentation et objectifs

Suite aux expérimentations effectuées aux Etats-Unis démontrant l'efficacité du reburning dans la réduction des émissions de NO<sub>x</sub>, une application du reburning au gaz naturel a été entreprise sur une chaudière frontale à charbon de 600 MWe dans le cadre du

programme européen THERMIE. Cette chaudière est située à Longannet en Ecosse [55, 56, 57, 64, 65, 66].

L'objectif était de démontrer le potentiel du reburning au gaz naturel pour la réduction des émissions de NO<sub>x</sub> sur des chaudières importantes (600 MWe), cela sur une durée de 12 mois. Un autre objectif était de développer et de valider des outils de design permettant de reproduire ce procédé sur des chaudières de plus petite taille.

Une étude de faisabilité effectuée en 1993 a conclu à la possibilité d'utiliser du reburning au gaz combinée avec des brûleurs bas-NO<sub>x</sub> [55, 56]. Des modélisations et expérimentations ont été menées afin de déterminer la configuration optimale du reburning (nombre, position et conditions opératoires des injecteurs de gaz et des entrées d'air) permettant d'obtenir des réductions importantes des émissions de NO<sub>x</sub> [57, 64, 65].

### **II-1-2 Expérimentation préliminaire sur un banc d'essai**

Les conditions opératoires du reburning au gaz naturel ont été évaluées sur un pilote de 160 kWth appartenant à Mitsui Babcock Energy Limited (MBEL) en Ecosse [64, 67]. Ce pilote avait un diamètre de 0,5 m et une longueur de 5 m. Cela donnait un temps de séjour dans le foyer de 3 s, correspondant à celui dans les chaudières industrielles à charbon. Le gaz était injecté par des buses qui assuraient un mélange rapide et uniforme. Les émissions de NO<sub>x</sub> obtenues lors du reburning étaient de 359 mg.Nm<sup>-3</sup> alors que les émissions de base étaient de 973 mg.Nm<sup>-3</sup>. Des valeurs de températures et de concentrations d'espèces chimiques ont été estimées par calcul, vérifiées expérimentalement et utilisées pour valider une modélisation. Ces essais ont permis de déterminer les stœchiométries optimales pour le reburning (1,12 pour la première zone, 0,9 pour la zone de reburning et 1,17 pour la zone de *postcombustion*). Ces stœchiométries correspondaient à une charge énergétique de 20 % fournie par le combustible de reburning par rapport à la charge totale de la chaudière. Il a été démontré que l'augmentation des temps de séjour dans les zones primaires et de reburning réduisaient les émissions de NO<sub>x</sub>. Ces temps de séjour étaient par ailleurs plus longs que ceux habituellement reportés dans la littérature. Les essais ont également montré l'importance du mélange du gaz naturel et de l'air de postcombustion avec les gaz de combustion. Les facteurs influençant l'efficacité d'un tel mélange étaient les vitesses d'injection, le nombre de jet, le profil des tuyères, l'angle et leur position autour du périmètre du foyer.

### **II-1-3 Modélisation**

#### **a- Modélisation de l'écoulement**

Une étude de modélisation de l'écoulement et de la combustion a été entreprise par Ansaldo en Italie afin de calculer des prédictions d'émissions de NO<sub>x</sub> et de teneur en carbone imbrûlé lors du reburning au gaz naturel [64]. L'influence du mélange (vitesses d'injection, nombre de jets, angle et position des tuyères) a été étudiée grâce à la modélisation numérique à 3 dimensions. Les prédictions ont confirmé l'importance de la re-circulation des gaz de combustion pour améliorer l'injection du gaz. La validation du modèle a été faite en utilisant des données obtenues sur le banc d'essai avant d'utiliser des données préliminaires issues de la chaudière de Longannet. L'accord entre les résultats était assez bon mais une comparaison détaillée mettait en évidence quelques différences et indiquait la nécessité de prendre en compte la modélisation cinétique chimique plus détaillée pour des prédictions des NO<sub>x</sub>.

### **b- Modélisation détaillée de cinétique chimique**

Une modélisation cinétique chimique a été entreprise par BG Technology afin de modéliser la chimie en phase gaz dans la chaudière de Longannet [64]. Néanmoins, malgré le degré de complexité du mécanisme chimique retenu, il y avait un manque d'informations concernant la chimie des NO<sub>x</sub> et la combustion dans des systèmes réactifs riches en combustible. Le modèle chimique utilisé a été celui de Miller/Bowman associé au logiciel GRI-Mech. La première phase de cette modélisation a eu pour but la simulation d'une flamme méthane-air à une dimension. La chaudière de Longannet a ensuite été schématisée sous la forme d'un système de plusieurs réacteurs couplés, cela afin de prédire la réduction des NO<sub>x</sub> par le reburning au gaz. Bien que cette image ne permette pas de donner des résultats quantitatifs détaillés, elle permet néanmoins de dire que la réduction des NO<sub>x</sub> a eu lieu en phase gaz et que l'impact des particules de charbon et de cendres dans la zone de reburning était faible. Le modèle a fonctionné pour des conditions opératoires d'installations et a montré clairement l'importance des facteurs comme la température de la zone de reburning et la combustion du charbon sur les réductions de NO<sub>x</sub> ; Une combustion complète du charbon dans la première zone donnait les plus grandes réductions de NO<sub>x</sub> : en effet, plus la combustion dans la première zone était complète, moins d'air entrainé dans la zone de reburning et donc plus faible était la stœchiométrie dans la zone de reburning. Des conditions oxydantes dans la zone de reburning réduisaient l'efficacité de réduction des NO<sub>x</sub>. Les prédictions donnaient des réductions de NO<sub>x</sub> de l'ordre de 65 % malgré un grand degré d'incertitudes sur les températures dans les différentes zones et le degré de combustion dans la zone primaire.

Un autre code de calcul a été utilisé par la société MBEL afin de prédire le rendement thermique du foyer et d'estimer l'impact du procédé de reburning au gaz à partir de paramètres comme la température des fumées en sortie pour cette même chaudière. Il a été prédit une efficacité de chaudière de 95 %. Plusieurs finesses de charbon ont été testées au niveau de la modélisation : pour une opération de broyage standard, les calculs indiquaient que le reburning augmentait les taux de carbone imbrûlé de près de 30 %. Les résultats obtenus sur la chaudière montraient une petite augmentation de carbone imbrûlé : des taux de 5 à 7 % de carbone imbrûlé étaient obtenus.

Pour une pleine efficacité du reburning au gaz, la stœchiométrie de la zone de reburning devait être contrôlée. Afin de la contrôler, il était nécessaire de contrôler les débits d'air, de charbon et de gaz envoyés dans la chaudière. Par ailleurs, les caractéristiques des charbons variaient beaucoup et affectaient les problèmes de maintenance et de contrôle. Aussi, un système de contrôle du reburning au gaz a dû être élaboré.

#### **II-1-4 Résultats des essais de reburning sur la chaudière de Longannet**

Après mise en place du matériel et modifications de la chaudière, des essais de reburning au gaz naturel ont été effectués sur la chaudière. Ils ont permis de déterminer l'influence du débit de gaz naturel, de la re-circulation des fumées de combustion, de la teneur en O<sub>2</sub>, des stœchiométries des différentes zones et de la charge délivrée par la chaudière sur la réduction des émissions de NO<sub>x</sub>. D'autres données ont été enregistrées (imbrûlés, compositions des gaz, vitesse, températures).

Les résultats préliminaires de reburning ont montré 50 % de réduction des émissions de NO<sub>x</sub>. Les émissions de référence étaient de 600 mg.Nm<sup>-3</sup> avec des brûleurs bas-NO<sub>x</sub>. Ces réductions étaient plus importantes que celles obtenues grâce à l'étagement de l'air. Par

rapport aux conditions opératoires de base, le reburning entraînait peu de changement au niveau des émissions de CO et des teneurs en carbone imbrûlé. Les paramètres ajustables étaient les stœchiométries, les températures et les temps de séjour dans les trois zones. Plusieurs combinaisons étaient possibles, les tests sur banc d'essai et la modélisation du procédé ont joué un rôle important dans l'optimisation de ce procédé, notamment au niveau de l'injection du gaz naturel (position, nombre et conditions opératoires des injecteurs de gaz et des injecteurs d'air). Les résultats préliminaires sur les émissions de NO<sub>x</sub> obtenus sur la chaudière ont été comparés à ceux obtenus sur le banc d'essai. Les émissions de NO<sub>x</sub> ont été sensiblement les mêmes lors du reburning au gaz pour des stœchiométries de la zone de reburning variant de 0,8 à 0,95 [55, 56].

D'autres essais ont été réalisés par la suite et ont permis d'obtenir des réductions des émissions de NO<sub>x</sub> de 60 % avec une charge énergétique de 20 % délivrée par le gaz naturel. Les émissions de NO<sub>x</sub> de référence variaient de 670 à 760 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> pour un excès d'air primaire de 10 %. Avec le reburning, les émissions de NO<sub>x</sub> variaient de 440 à 275 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>. Les émissions de CO étaient de 140 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> pour une stœchiométrie de reburning de 0,85 et de 350 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> pour une stœchiométrie de reburning de 0,825. Globalement, les émissions de CO augmentaient lorsque la stœchiométrie de reburning diminuait. Les différences avec une combustion normale étaient toutefois inférieures à 20 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>. La teneur en carbone imbrûlé augmentait lorsque la stœchiométrie de reburning diminuait. Pour une stœchiométrie de reburning de 0,9, on avait 5-7 % d'augmentation de carbone imbrûlés alors que la référence était de 4-5,5 % d'imbrûlés. Pour une stœchiométrie de 0,85, l'augmentation était de 7,8-9 %. L'optimum de la stœchiométrie de reburning était de 0,85-0,9 (voir tableau 1.6) tenant compte d'une augmentation limitée de la teneur en carbone imbrûlé et d'une réduction considérable des émissions de NO<sub>x</sub>. La re-circulation des fumées de combustion a permis par ailleurs de limiter d'avantage les émissions de NO<sub>x</sub>.

Stœchiométrie de reburning	0,825	0,85	0,875	0,9
Réduction de NO <sub>x</sub> (%)	54-59	51-55	47-54	42-49
Augmentation des imbrûlés (% abs)		7 à 9		5 à 7

Tableau 1.6 : Réduction des émissions de NO<sub>x</sub> en fonction de la stœchiométrie de reburning

## II-2 Reburning au fioul

La société italienne ENEL a expérimenté le reburning au fioul sur plusieurs chaudières frontales et tangentielles au fioul et à charbon. Plusieurs autres techniques (modifications des brûleurs) ont été utilisées mais les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> n'étaient pas conséquentes. Son objectif était d'atteindre des émissions de NO<sub>x</sub> inférieures à 200 mg.Nm<sup>-3</sup>. Le fioul utilisé avait une teneur en soufre inférieure à 0,2 %. Des réductions des émissions de NO<sub>x</sub> de l'ordre de 80 % (voir tableau 1.7) ont été obtenues permettant d'atteindre des valeurs limites de 160 mg.Nm<sup>-3</sup>. Ces réductions étaient toutefois fonction de la chaudière, du type de combustible principal utilisé (charbon ou fioul) et de la configuration des brûleurs. Plusieurs types de brûleurs ont par ailleurs été expérimentés au cours du reburning au fioul [68, 69].

Unité (tangentielle)	S. Gilla 2	Fusina 5	Torrevaldaliga 2.	Porto Tolle 1
Puissance	35 MWe	160 MWe	320 MWe	660 MWe
Combustible de reburning	Fioul et gaz naturel	Fioul lourd et léger	Fioul et gaz naturel	Fioul lourd
Teneur initiale en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> )	440	750	750	500
Réduction (%)	64-55	77-80	79-80	65

Tableau 1.7 : Expérimentations du reburning par ENEL

## II-3 Reburning au charbon

### II-3-1 Expérimentation de Vado-Ligure (Italie)

Une expérimentation de reburning au charbon a été entreprise sur une chaudière tangentielle de 320 MWe en Italie (Vado Ligure). Les émissions de NO<sub>x</sub> de référence (avant reburning avec des brûleurs standards) étaient de 1200 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>. Les objectifs étaient d'atteindre 65 % de réduction des émissions de NO<sub>x</sub> avec des teneurs en carbone imbrûlé inférieures à 7 % et des teneurs en CO inférieures à 200 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>. Les principaux paramètres étudiés au cours de ces essais, étaient la teneur en NO<sub>x</sub> et la température à l'entrée de la zone de reburning, la stœchiométrie et le temps de séjour dans cette zone, les caractéristiques des injections de charbon et d'air de postcombustion (nombre, position et taille des injecteurs) et d'autres paramètres comme la qualité (indice de matières volatiles, teneur en azote). La finesse du charbon de reburning est fixée : 65-70 % en masse des particules ont une taille inférieure à 80 µm. La re-circulation des fumées de combustion était également étudiée afin d'optimiser le mélange du combustible de reburning avec les gaz de combustion. Les brûleurs de la chaudière ont été remplacés par des brûleurs à bas NO<sub>x</sub> et ont permis d'atteindre des émissions de NO<sub>x</sub> sans reburning de 620 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> [70, 71].

Des essais préliminaires de reburning au charbon ont été effectués sur des pilotes dont la puissance variait de 20 kW à 1 MW. Ces expérimentations ont permis de déterminer les valeurs optimales pour la stœchiométrie de reburning (0,89 pour une fraction de combustible de reburning de 20 %) et le temps de séjour dans la zone de reburning (470 ms). Une modélisation numérique de l'écoulement a par ailleurs permis de déterminer les positions et les configurations optimales des injecteurs de charbon et d'air de postcombustion. Contrairement à d'autres études, la quantité et la finesse du charbon de reburning modifiaient peu les émissions de NO<sub>x</sub>. L'utilisation de la re-circulation des fumées de combustion pour le transport du combustible a de plus été démontrée très importante pour l'efficacité du reburning.

Les essais de reburning au charbon ont permis d'obtenir des émissions de NO<sub>x</sub> de 300 à 370 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> (réduction des émissions de NO<sub>x</sub> de 40 à 50 %). La teneur en carbone imbrûlé dans les cendres a augmenté de 1 à 3 %. Les teneurs en CO ont été très faibles. L'efficacité énergétique de la chaudière a légèrement diminué.

### II-3-2 Expérimentation de Ladyzhin (Ukraine)

C'est une chaudière frontale à charbon de 300 MWe équipées de 16 brûleurs à *swirl* (voir chapitre II, partie 2). L'objectif était d'étudier l'impact du reburning à la fois sur l'efficacité de la combustion (teneur en CO, teneur en carbone imbrûlé) et sur le rendement de la chaudière. Les expérimentations ont porté en premier lieu sur le reburning au gaz naturel, puis sur le reburning au charbon. L'application du reburning a nécessité peu de changements sur la chaudière [72, 73].

Les facteurs clefs étaient la stœchiométrie des trois zones (entre 0,9 et 0,99 pour la zone de reburning), le temps de séjour (0,5 s pour la zone de reburning et 0,6 s pour la zone de postcombustion) et la configuration des injections de combustible de reburning et d'air de postcombustion. L'utilisation de la re-circulation des gaz comme moyen de transport au gaz naturel ou au charbon permettait d'améliorer l'injection.

Une étude de modélisation a permis de déterminer une stœchiométrie et un temps de séjour optimaux pour les trois zones de combustion. Un calcul de trajectoire a par ailleurs permis d'optimiser l'injection (vitesse, nombre et orientation des injections) du combustible de reburning permettant une pénétration profonde du jet et un mélange avec les fumées de combustion, sans modification excessive du foyer principal. La vitesse optimale de l'injection du combustible a reburning a été calculée à  $45 \text{ m.s}^{-1}$  et celle de l'injection d'air de postcombustion à  $56\text{-}70 \text{ m.s}^{-1}$ . La configuration optimale comprenait une re-circulation des fumées de combustion de 10 % et une charge énergétique de 20 % délivrée par le combustible de reburning.

Des essais à long terme de reburning au gaz naturel ont permis d'obtenir en moyenne 50 % de réduction pour des émissions de  $\text{NO}_x$  de référence de 600 ppm ( $0,52 \text{ lb.}10^6 \text{ Btu}$  ou  $215 \text{ g/GJ}$ ). Les réductions variaient de 40 à 60 % selon les conditions opératoires. Les émissions de CO atteignaient au maximum 250 ppm. La teneur en carbone imbrûlé dans les cendres volantes a toutefois augmenté de 1 à 2 %. D'autres essais avec un charbon très fin (100 % de particules de taille inférieure à  $150 \mu\text{m}$ ) comme combustible de reburning ont également eu lieu. Les réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  ont varié de 25 à 40 %.

# Conclusion et problématique de l'étude

Aujourd'hui, la réglementation nationale, européenne voire même mondiale en matière d'émissions d'oxydes d'azote est de plus en plus sévère en raison des impacts négatifs de ces polluants sur la santé humaine et sur l'environnement. Les premiers concernés par cette réglementation sont les installations de combustion telles que les centrales thermiques, les incinérateurs de déchets, les fours de l'industrie verrière ou autres. Il devient important d'étudier leurs mécanismes de formation et de déterminer les différentes méthodes de réduction envisageables et appropriées à des installations nouvelles et/ou existantes (retrofit). Différentes études aux Etats-Unis ont conclu que le reburning occupe une place intermédiaire par rapport aux autres procédés de réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  permettant d'obtenir des réductions prometteuses et engendrant des coûts de réalisation et de fonctionnement acceptables.

Le reburning consiste à réduire les émissions de  $\text{NO}_x$  en étageant la combustion. Alors que le combustible principal est brûlé dans une zone légèrement oxydante, un combustible complémentaire et de l'air de combustion sont successivement injectés en aval de cette zone, créant respectivement une zone réductrice permettant la transformation des  $\text{NO}_x$  et une zone oxydante achevant la combustion. L'efficacité de ce procédé dépend de plusieurs facteurs notamment des températures à l'entrée des zones de reburning et de postcombustion (ou de burnout), du temps de séjour des fumées, de la stœchiométrie dans les différentes zones [20]. D'autres paramètres doivent également être pris en compte pour ce procédé dont le mode d'injection du combustible de reburning et de l'air de postcombustion (distance de pénétration, vitesse), le mélange combustible de reburning et gaz de combustion issus de la zone primaire etc...

Contrairement aux applications américaines, de plus en plus courantes, du reburning sur des chaudières industrielles [73, 74], ce procédé n'est en Europe qu'en phase expérimentale, à Longannet et à Vado-Ligure avec du gaz naturel ou du charbon comme combustible de reburning. Ces expérimentations ont pour objectifs non seulement de valider le procédé du reburning sur des installations industrielles de grande puissance, mais également de valider les études de modélisations et de corroborer les résultats obtenus sur des pilotes. Elles vont permettre de caractériser l'influence des brûleurs bas  $\text{NO}_x$  et de la recirculation des fumées de combustion gaz sur les réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  mais également d'étudier leur combinaison avec le reburning.

Le reburning au gaz naturel a été intensivement étudié de par le monde. Plusieurs études s'accordent pour dire que le gaz naturel est un combustible de reburning efficace. D'autres études concernaient l'utilisation de gaz de pyrolyse, de biomasse ou autres comme combustible de reburning [75]. Le reburning au charbon est quant à lui plus intéressant pour certaines chaudières : en effet, le combustible est déjà présent sur le site, il est moins cher que d'autres combustibles comme le gaz naturel ou le fuel, et les réserves de charbon sont importantes. Bien que des expérimentations de reburning au charbon aient déjà eu lieu aux Etats-Unis, les expérimentations en Europe sont seulement en cours et des incertitudes demeurent quant aux divers mécanismes réactionnels ayant lieu dans les trois zones. Par ailleurs, beaucoup d'expérimentations de reburning au charbon n'ont été menées que sur des pilotes de petite taille (de puissance inférieure à 1 MW) et non sur des installations semi-industrielles. Les comparaisons deviennent difficiles sur des installations de grande puissance telles que la chaudière de Vado-Ligure.



La forme relativement simple du four de 4 MW du CERCHAR permet de s'affranchir de certains paramètres d'études. En accord avec la revue bibliographique de ce chapitre, nous déterminerons expérimentalement l'influence des paramètres suivant sur l'efficacité du reburning : la température et la teneur en  $\text{NO}_x$  à l'entrée de la zone de reburning, le temps de séjour et la stœchiométrie de la zone de reburning, et le combustible de reburning. Différents combustibles seront en effet étudiés : quatre charbons de diverses origines et le gaz naturel. L'expérimentation du reburning au charbon sur ce pilote apparaît en effet d'un grand intérêt afin de lever les nombreuses contradictions relevées dans la littérature. Cela doit permettre à la fois de mieux caractériser l'influence de divers facteurs sur la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  (injection et caractéristiques du charbon de reburning, paramètres opératoires) mais également de contrôler l'efficacité de la combustion (teneur en CO et en imbrûlés solides). Une simulation numérique (modélisation C.F.D., réseau de neurones) doit être associée au travail expérimental afin de mieux cerner les différents mécanismes chimiques et hydrodynamiques en jeu et afin d'optimiser le procédé.

## **PARTIE 2**

# **LE FOUR 4 MWTH DU CERCHAR ET LES CONDITIONS EXPERIMENTALES**



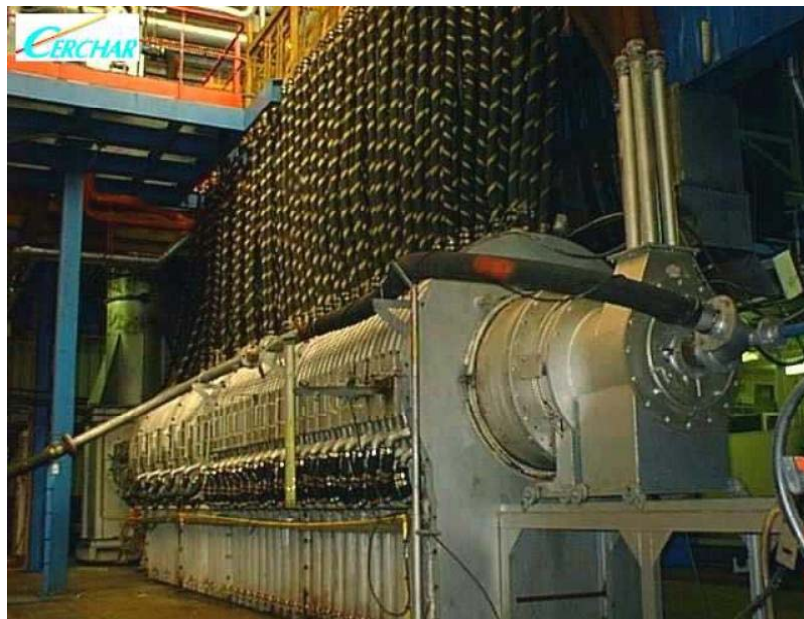
# Chapitre I

## Description de l'outil expérimental Le Four d'Etudes des Flammes

### I - Le Four d'Etudes de Flamme de 4 MWth du CERCHAR

#### I-1 Description

Le CERCHAR dispose sur sa plate-forme de Mazingarbe d'un outil expérimental destiné à générer et à étudier des flammes à gaz ou à charbon pulvérisé d'une puissance thermique pouvant atteindre 4 MW (figures 2.1 et 2.2).



*Figure 2.1 : le four 4 MWth du CERCHAR*

Ce four, horizontal et cylindrique, a un diamètre intérieur de 1,5 m et une longueur totale de 7,7 m.

Il est constitué :

- de deux premiers éléments chaudronnés de 2,05 m de longueur, chacun étant muni de 10 boucles calorimétriques de 0,20 m de longueur. Ces éléments sont percés d'une fente continue de 0,25 m de hauteur, fermée par 10 portes permettant l'observation des flammes et l'introduction des sondes de mesure.
- de deux autres éléments chaudronnés de 1,8 m, chacun étant muni de trois boucles calorimétriques de 0,6 m de longueur et équipés chacun de trois lucarnes frontales fermées par dix portes pour observations et mesures.

Ces éléments sont complétés par :

- un élément convergent avant carneau de mesure (0,9 m de longueur),
- un carneau de mesure permettant le dosage en continu des principaux constituants des fumées à savoir  $O_2$ ,  $CO_2$ ,  $CO$ ,  $SO_2$  et  $NO_x$ . Ce carneau est situé à 9 m du point d'injection du combustible. La pression au point d'échantillonnage est réglée à environ 50 Pa pour éviter les entrées d'air parasites,
- une plaque frontale porte-brûleur percée d'un orifice de 1 m de diamètre, afin d'accepter différents types de brûleurs,
- un cendrier de forme parallélépipédique, situé dans la partie inférieure du four et séparé de ce four par des tubes d'eau disjoints, formant une grille.

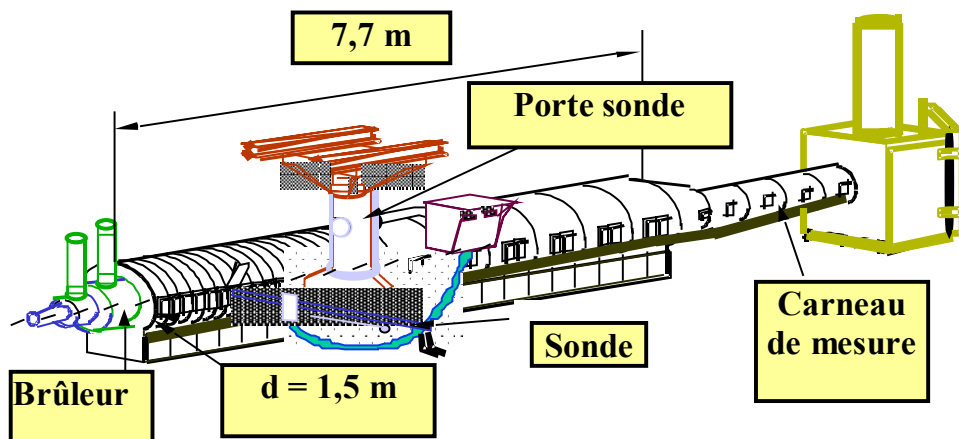


Figure 2.2 : le four 4 MWth et son brûleur

La chambre de combustion se trouve donc entièrement refroidie à l'eau (température entrée 30°C, température sortie 60°C maximum) au moyen de 28 boucles calorimétriques. Le four est un « four à parois froides ».

## I-2 Equipements annexes du four

Ces équipements permettent :

- La distribution d'air de combustion : l'air, dont le débit peut atteindre  $10000 \text{ kg.h}^{-1}$ , est réparti entre trois lignes indépendantes avec réglage automatique du débit massique et de la température suivant consigne. Le ventilateur est du type centrifuge ; il est entraîné par un moteur 5000 V, d'une puissance de 135 kW.
- Le réchauffage de l'air : il est assuré par un réchauffeur de type SETREM permettant de préchauffer l'air de combustion de la température ambiante jusqu'à  $250 \text{ °C}$  pour des débits compris entre 1500 et  $10000 \text{ kg.h}^{-1}$ . L'air à réchauffer parcourt une zone à rayonnement puis une zone à convection.
- L'alimentation du brûleur en charbon pulvérisé (80 % en masse des particules ont un diamètre compris entre 64 et  $96 \mu\text{m}$ , voir annexe 3) : il est assuré par un broyeur SEPTU, les débits peuvent varier de 150 à  $500 \text{ kg.h}^{-1}$ . Le broyeur est alimenté en charbon par une vis sans fin qui régule le débit.
- Le refroidissement du four : l'eau de refroidissement du four circule en boucle fermée avec un échangeur eau-eau (double paroi métallique). Chaque boucle calorimétrique est munie d'un robinet télécommandé et d'un compteur à turbine pour régler et mesurer le débit d'eau ( $0$  à  $4.10^{-3} \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$  par boucle).
- Le traitement des fumées : les fumées chaudes (dont la température est de l'ordre de  $600 \text{ °C}$ ) sont amenées au dépoussiéreur par une gaine de liaison. Elles pénètrent dans une première zone de traitement avec éventuellement une addition contrôlée d'air froid qui permet de réguler la dépression dans la chambre de combustion. Elles traversent ensuite un rétrécissement où elles subissent une accélération puis une détente adiabatique. A la sortie du rétrécissement, un pulvérisateur capte les particules qui sont entraînées par centrifugation.
- Une salle de commande et de mesure située à proximité du four, rassemble les éléments nécessaires à la conduite de l'installation et à l'enregistrement des mesures.

## II - Le brûleur

### II-1 Description et fonctionnement

Le four est muni d'un brûleur bas- $\text{NO}_x$  à étagement de l'air, mis au point par le CERCHAR. Ce brûleur (figure 2.3) se caractérise essentiellement par un mode original de réglage de la turbulence de la flamme, permettant d'assurer la stabilité de celle-ci et la rapidité de la combustion dans une large gamme de puissance. Il permet d'obtenir des teneurs de  $\text{NO}_x$  comprises entre 200 et  $1200 \text{ mgNO}_2.\text{Nm}^{-3}$  selon le combustible utilisé et les réglages adoptés.

Il est composé :

- d'un tube central dans lequel peut éventuellement venir s'insérer une canne de fuel ou de gaz lors d'un fonctionnement poly-combustible.
- autour de ce tube central, un espace annulaire dans lequel est injecté le mélange charbon pulvérisé/air de transport (appelé air I).
- autour du tube contenant l'écoulement d'air I est injecté l'air II, mis en rotation par le générateur à ventelles CERCHAR. L'intensité de rotation est réglable au moyen d'une plaque mobile en translation le long de l'axe, permettant ainsi de modifier la largeur de passage de l'air II à travers les ventelles.
- un ouvreau divergent dans lequel débouchent les écoulements d'air I et II.
- une chambre de confinement qui ménage un espace annulaire autour de l'ouvreau par lequel s'écoule l'air III.

Dans le brûleur CERCHAR, le charbon pulvérisé est introduit à la base de l'ouvreau par l'injecteur annulaire du brûleur avec l'air I (ou air de transport). Le point d'injection du combustible est situé à 0,58 m en retrait par rapport à la plaque frontale. L'air de combustion est fractionné en plusieurs parties (air II et III) afin de permettre la combustion des matières volatiles (par l'air II) et la combustion plus en aval du semi-coke (formé lors de la dévolatilisation) par l'air III.

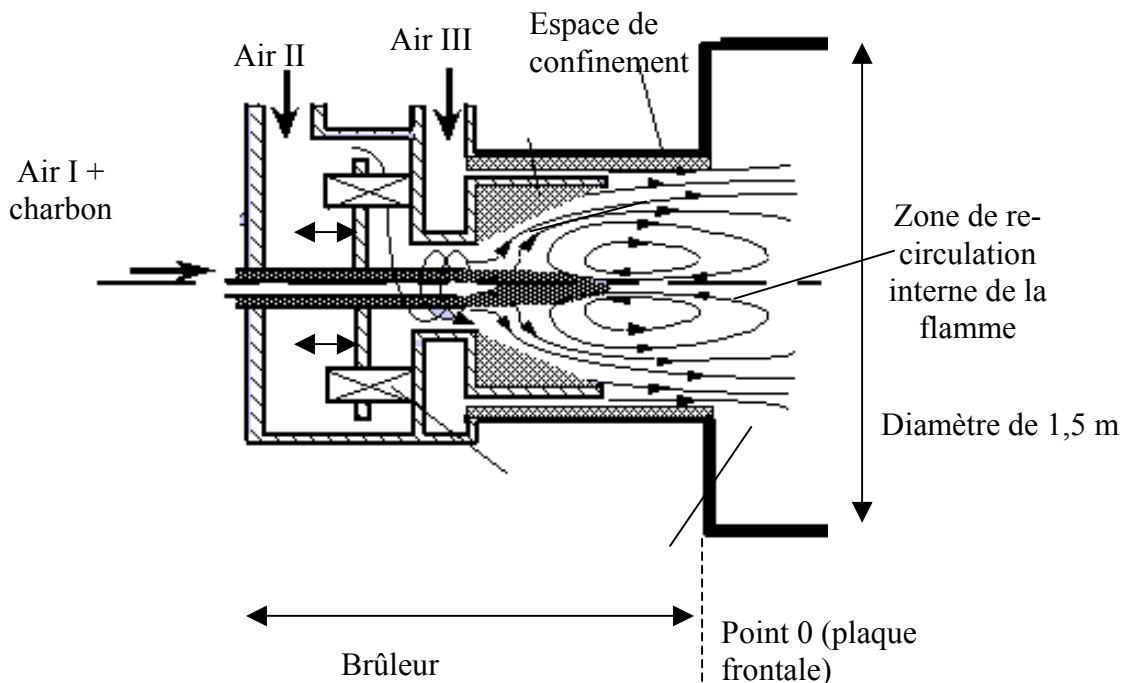


Figure 2.3 : Le brûleur bas-NO<sub>x</sub> CERCHAR

Comme nous l'avons signalé dans la première partie, dans les flammes de charbon, on estime que 70 % des émissions de NO<sub>x</sub> sont dues à l'oxydation de l'azote contenu dans le combustible (dont les deux-tiers sont liés à l'oxydation des matières volatiles) contre 30 %

dues à l'oxydation de l'azote de l'air (à température élevée). Dans un brûleur à étage de l'air, les matières volatiles brûlent dans une zone pauvre en oxygène ce qui permet de limiter l'oxydation de l'azote du combustible et donc les émissions de NO<sub>x</sub>. D'autre part, en s'écartant du réglage optimal, on peut obtenir les teneurs en NO<sub>x</sub> variables allant jusqu'à 1000 mg<sub>NO<sub>2</sub></sub>.Nm<sup>-3</sup>. Cette caractéristique a été utilisée dans ce travail pour faire varier la teneur en NO<sub>x</sub> à l'entrée de la zone de reburning (teneur initiale en NO<sub>x</sub>).

Le principe de fonctionnement du brûleur à étage de l'air consiste à réduire les débits d'air I et II (leur somme est nettement inférieure au débit d'air stœchiométrique), ce qui permet d'obtenir une température de flamme élevée dans l'ouvrage où doit se stabiliser le front de flamme. Le confinement de la flamme à la sortie de l'ouvrage est propice à une inflammation stable, car il limite l'extraction de chaleur de la flamme. L'injection d'une quantité significative d'air III le long de la chambre de confinement protège cette chambre de l'impact de cendres fondues et permet un abaissement de la température de la paroi.

## II-2 Comparaison avec des brûleurs classiques

Le brûleur à étage de l'air est un brûleur de conception avancée par rapport aux brûleurs équipant les chaudières classiques. Pour de tels brûleurs, on utilise seulement deux débits d'air : l'air I qui assure le transport du combustible et l'air II qui se mélange rapidement à l'air I afin d'assurer la combustion des matières volatiles, de stabiliser le front de flamme et de participer ensuite à la combustion du semi-coke.

Certaines analogies sont cependant possibles entre le brûleur à étage de l'air et les brûleurs industriels. En effet, dans le cas de brûleurs d'une chaudière de type frontal, l'air II est mis en rotation afin de créer une zone géométrique favorable à l'accrochage de la flamme. Ce réglage est analogue à celui qui existe sur notre installation. Dans le cas de brûleurs d'une chaudière de type tangentiel ou vertical, l'air de combustion est distribué et ajusté au moyen de ventelles qui permet de modifier la richesse de la zone d'allumage. Ceci est identique à ce qui peut être reproduit avec le brûleur CERCHAR en modifiant les débits d'air II et III.

## II-3 Réglages du brûleur CERCHAR

### II-3-1 La stœchiométrie primaire ST1

La stœchiométrie primaire ST1 se définit comme le rapport de la somme des débits massiques d'air de transport (air I), Q<sub>I</sub>, et d'air injecté dans le premier étage de combustion (air II), Q<sub>II</sub>, au débit massique d'air stœchiométrique (Q<sub>st</sub>) nécessaire à la combustion du charbon :

$$ST1 = \frac{Q_I + Q_{II}}{Q_{st}} = \frac{Q_{allumage}}{Q_{st}} \quad (2.1)$$

En fonctionnement normal, la stœchiométrie primaire est ajustée en fonction de la qualité du combustible. Les courbes de de Grey, (d'après [76]), (figure 2.4) établissent une relation entre la vitesse de propagation du front de flamme et le rapport masse d'air d'allumage/masse de charbon pour différents indices de matières volatiles et teneurs en cendres de ce charbon (% sec). Le maximum de cette vitesse correspond au rapport optimal entre le débit massique d'air d'allumage, Q<sub>allumage</sub>, et le débit de combustible évitant l'extinction de la flamme. La valeur obtenue est la valeur du réglage de référence du brûleur.



La stœchiométrie primaire optimale est calculée en divisant cette dernière valeur par le pouvoir comburivore du combustible (exprimé en kg d'air / kg de charbon). Le pouvoir comburivore est par définition la quantité d'air nécessaire pour brûler 1 kg de charbon. Autour de cette valeur optimale, il existe deux limites de stabilité du front de flamme :

- la limite inférieure, qui correspond à une diminution de la stœchiométrie primaire, a pour effet de ramener la flamme dans le brûleur, ce qui peut provoquer la destruction de ce dernier,
- la limite supérieure obtenue avec l'augmentation de la stœchiométrie primaire repousse la zone d'allumage dans le foyer, ce qui peut provoquer le soufflage de la flamme.

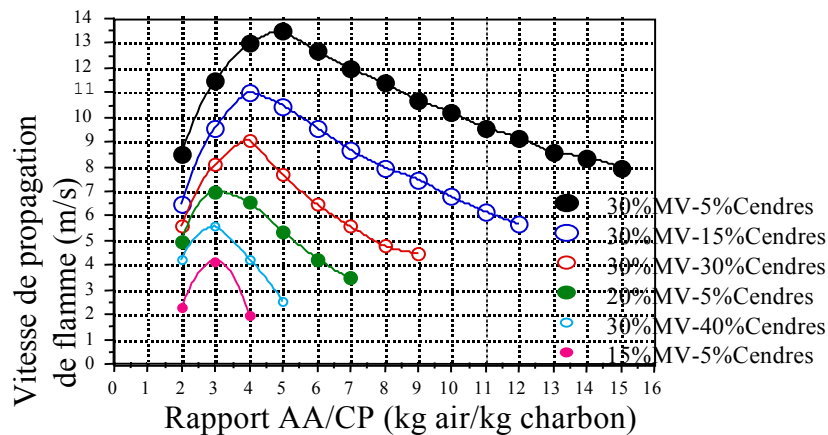


Figure 2.4 : Relation entre le rapport masse d'air d'allumage/masse de charbon et la vitesse de propagation de flamme (Grey, d'après [76]) selon l'indice de matières volatiles (MV) et la teneur en cendres du charbon.

### II-3-2 L'excès d'air

L'excès d'air représente le pourcentage d'air fourni en excès par rapport à l'air stœchiométrique. Il est donné par le rapport entre la somme totale des débits massiques d'air injecté au brûleur (air I + air II + air III),  $Q_{tot}$  et le débit massique d'air stœchiométrique nécessaire à la combustion du charbon,  $Q_{st}$  :

$$e \% = \frac{Q_{tot} - Q_{st}}{Q_{st}} \quad (2.2)$$

### II-3-3 Le nombre de swirl

Dans le brûleur CERCHAR utilisé au cours des essais, la flamme est stabilisée par la mise en rotation de l'air II. Pour quantifier cette rotation, on définit une intensité de rotation  $S$  appelée « nombre de swirl » qui prend en compte la composante tangentielle de la vitesse de l'air II [76]. Plus précisément, cette intensité de rotation se définit comme le rapport du débit de quantité de mouvement de rotation  $G_{\phi}$  au débit de quantité de mouvement axiale  $G_x$  [77].

Le terme  $G_{\phi}$  s'exprime ainsi :

$$G_{\phi} = \int_0^{r_0} 2\pi\rho U W r^2 dr \quad (2.3)$$

où :

$\rho$  est la masse volumique de l'air ;

$r$  est la distance à l'axe du brûleur et  $r_0$  le rayon du conduit ;

$U$  et  $W$  sont respectivement les vitesses axiale et tangentielle au point considéré.

Le débit de quantité de mouvement axiale  $G_x$  s'écrit :

$$G_x = \int_0^{r_0} 2\pi\rho U^2 r dr + 2\pi \int_0^{r_0} \frac{\partial p}{\partial x} r dr \quad (2.4)$$

De ces expressions, il en ressort que  $G_\phi$  s'exprime en  $\text{kg.m}^2.\text{s}^{-2}$  et  $G_x$  en  $\text{kg.m.s}^{-2}$ . Pour caractériser l'intensité de rotation par un nombre sans dimension,  $G_x$  sera multiplié par  $r_0$  et le nombre de swirl  $S$  s'écrira :

$$S = \frac{G_\phi}{r_0 G_x} \quad (2.5)$$

Dans la pratique, le nombre de swirl est calculé en fonction des débits massiques et de la température des airs I et II, ainsi que de la largeur de passage à travers les ventelles grâce à la formule suivante :

$$S = 1,43 \cdot \frac{\left\{ \frac{0,0156}{\left[ \left( \frac{Q_I^2}{Q_{II}^2} \right) \cdot \left( \frac{T_I + 273}{T_{II} + 273} \right) \left( 1 + \frac{Q_{\text{charbon}}}{Q_I} \right) + 0,45 \right]} \right\}}{V} \quad (2.6)$$

où  $T_I$  et  $T_{II}$  sont les températures ( $^{\circ}\text{C}$ ) respectivement des air I et II,  $Q_{\text{charbon}}$  est le débit massique de charbon,  $Q_I$  et  $Q_{II}$  les débits massiques respectivement des airs I et II,  $V$  est la largeur de passage au travers des ventelles (dans notre étude, elle est généralement égale à 0,03 m pour obtenir un swirl de 1).

Plus la valeur du nombre de swirl est élevée, plus le débit de gaz re-circulé dans la zone de re-circulation interne à la flamme est important et plus la flamme est turbulente. Dans les installations industrielles de combustion, le nombre de swirl est voisin de 2.

Par ailleurs, la quantité d'air mise en rotation est déterminée par la stœchiométrie ST1 retenue car en règle générale, le débit d'air I reste constant.

### III - Instrumentation annexe du four

L'instrumentation du four peut se diviser en deux groupes, les sondes et les appareils de mesure.

#### III-1 Les sondes

##### III-1-1 Le pyromètre à aspiration

Le pyromètre à aspiration (figure 2.5) a pour but de mesurer directement la température d'équilibre des gaz ou des fumées de combustion dans le four à l'aide d'un thermocouple à soudure chaude (de type B constitué de platine rhodié à 6 et 30 % ou S constitué de platine / platine rhodié à 10 %). Ces thermocouples permettent de mesurer des températures entre 0 et  $1550^{\circ}\text{C} \pm 1-1,5^{\circ}\text{C}$  (type S) et entre 100 et  $1600^{\circ}\text{C} \pm 1-1,5^{\circ}\text{C}$  (type

B). Le thermocouple est inséré dans un dispositif permettant d'optimiser les échanges de chaleur par convection et minimisant les pertes de chaleur par rayonnement.

Le thermocouple est protégé de l'action chimique des gaz par une gaine étanche en alumine et est placé sur l'axe d'un système d'écrans concentriques (gainés en silimanite : 60 à 80 % de  $\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{SiO}_2$ ), l'isolant du rayonnement environnant. Les gaz dont on veut mesurer la température sont aspirés à très grande vitesse (environ  $200 \text{ m.s}^{-1}$ ) au travers d'une section très faible (éjecteur à air dont le débit d'aspiration est contrôlé par un venturi) situé autour de la gaine étanche et à travers les écrans concentriques. Ceci garantit que la convection est la forme prédominante du transfert de chaleur des gaz vers le thermocouple.

Le pyromètre est par ailleurs équipé d'une double enveloppe dans laquelle circule de l'eau afin d'assurer son refroidissement (« water-jacket »).

La mesure de la température est fiable à 98 % pour une échelle de hautes températures (1400 à 1500 °C). L'erreur de la mesure obtenue avec la sonde est estimée à  $\pm 30^\circ\text{C}$ . Le temps de réponse est de l'ordre de 3 minutes de 0 à 1600 °C.

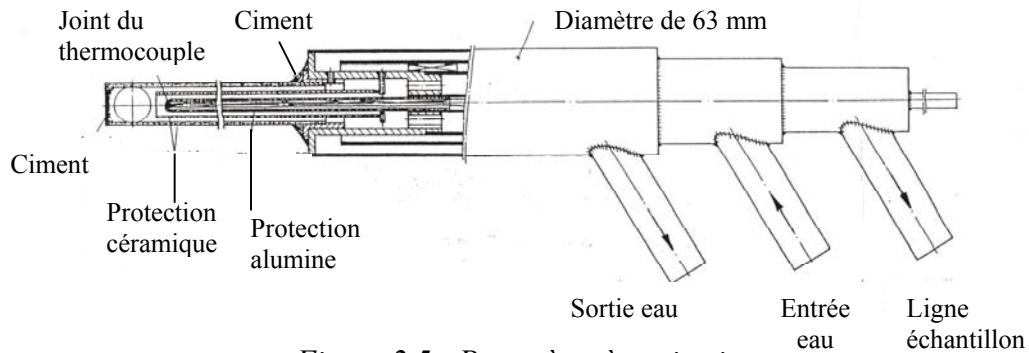


Figure 2.5 : Pyromètre à aspiration

### III-1-2 Le prélèvement d'échantillons de gaz et de solides

Pour déterminer l'efficacité de la combustion et analyser les fumées de combustion, on utilise des sondes de prélèvements solides et gazeux.

#### a-Prélèvements de gaz

Le but est de prélever un échantillon gazeux et de l'amener, via une armoire réfrigérante et filtrante jusqu'à des analyseurs de gaz ( $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{SO}_2$ ). Le prélèvement de l'échantillon gazeux se fait par aspiration au moyen d'une pompe à vide. Les gaz sont refroidis brutalement afin de stopper l'ensemble des réactions chimiques (« quenching ») et filtrés avant d'être dirigés vers les analyseurs.

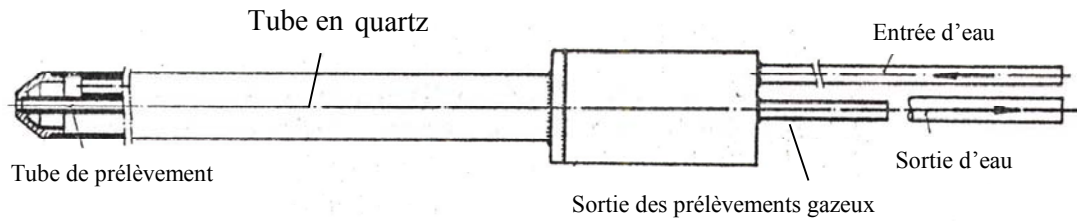


Figure 2.6 : Sonde de prélèvement au carneau

Les prélèvements gazeux sont faits au carneau de mesure (9 m du brûleur), (figure 2.2) à l'aide d'une sonde spécialement conçue pour l'analyse des  $\text{NO}_x$  (figure 2.6). Les gaz à analyser sont aspirés par la tête de la sonde (elle-même refroidie) et sont véhiculés dans un tube central en quartz afin d'empêcher toute réaction de réduction des  $\text{NO}_x$ . La sonde est également insérée dans une double enveloppe au sein de laquelle circule de l'eau pour permettre son refroidissement.

La sonde de prélèvements gazeux utilisée pour les cartographies de flammes est une sonde coudée appelée SFC (appellation CERCHAR), (figure 2.7). Cette sonde est également constituée d'une double enveloppe refroidie à l'eau et d'une tête de sonde coudée (figure 2.8) à l'intérieur de laquelle est inséré un filtre en bronze fritté.

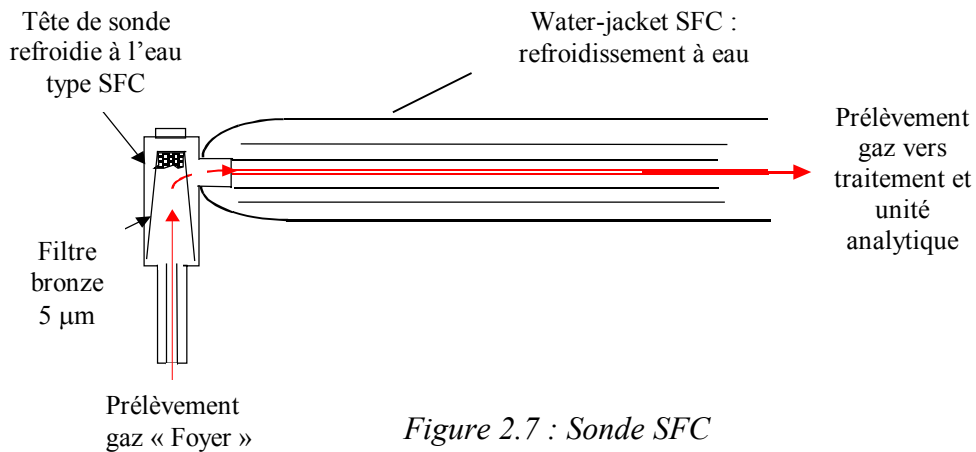


Figure 2.7 : Sonde SFC

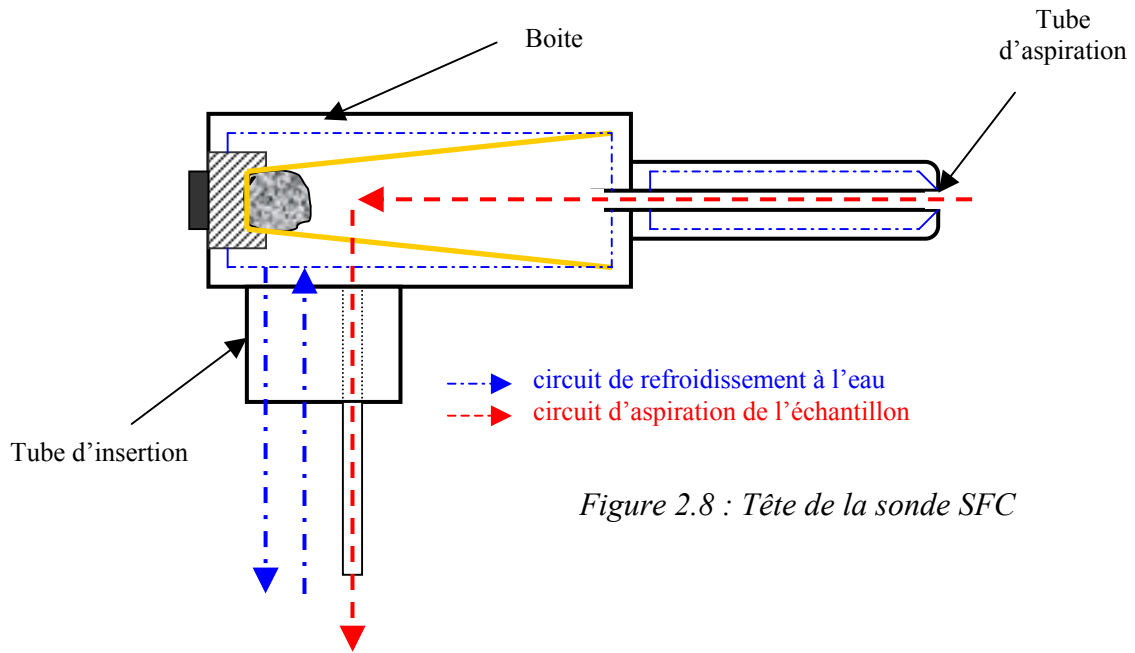


Figure 2.8 : Tête de la sonde SFC

### b-Prélèvements de solides

Le but est de prélever de façon iso-cinétique (c'est-à-dire dans le sens des lignes de courant et avec une vitesse égale à celle de l'écoulement gazeux) un échantillon gazeux dans l'axe du carneau de mesure afin d'y extraire toutes les particules solides pour ensuite les analyser (cendres, matières volatiles, humidité etc...). L'aspiration du prélèvement de solide se fait grâce à une pompe.

La sonde utilisée est équipée d'un filtre de récupération de solides extérieur situé en arrière (figure 2.9). Un cordon chauffant est utilisé pour chauffer le filtre afin d'éviter tout problème de condensation et de collage des particules (« filtre chaud »).

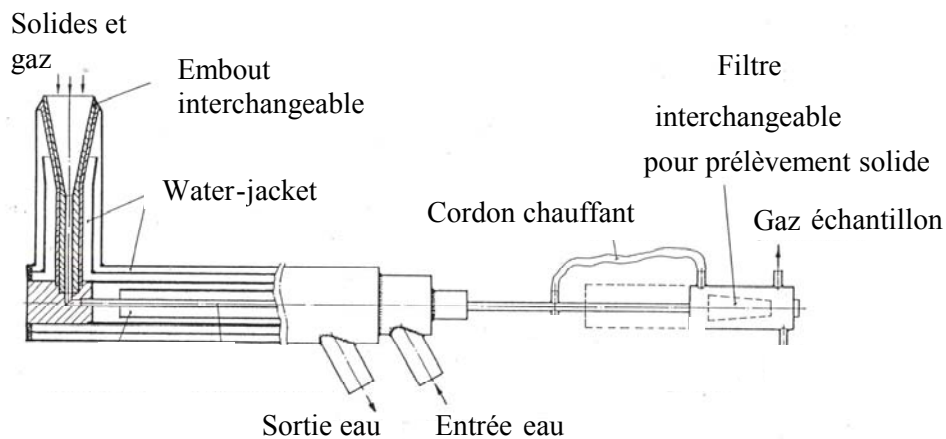


Figure 2.9 : Sonde de prélèvements de solides « Alcan » (appellation CERCHAR)

Le filtre extérieur facilite les opérations de prélèvements et limite les sorties de l'ensemble sonde / water-jacket du four (système de fixation du filtre plus simple, risques

moindres de brûlures). Un prélèvement dure entre 5 et 20 minutes selon la densité de particules au point de prélèvement (les problèmes de bouchage sont prévenus par le contrôle permanent de la dépression au niveau de l'aspiration des gaz). La récupération du produit prélevée et le changement du filtre s'effectuent normalement en une dizaine de minutes.

### **III-2 Les appareils de mesure**

Les mesures comprennent la teneur en O<sub>2</sub> déterminée par paramagnétisme, la teneur en CO et CO<sub>2</sub> par infrarouge, la teneur en NO et en NO<sub>2</sub> par infrarouge ou chimiluminescence. Les appareils utilisés sont un Oxynox 100 Fischer Rosemount (la gamme de mesures varie de 0 à 25 %) pour l'oxygène et un Binox 100 Fischer Rosemount pour le monoxyde de carbone (plusieurs gammes de mesures allant de 0 à 5000 ppm, de 0 à 8000 ppm et de 0 à 5 %) et le dioxyde de carbone (gamme de mesure allant de 0 à 25 %). Concernant les oxydes d'azote, plusieurs appareils ont été utilisés, notamment les analyseurs MLT 5 Fischer Rosemount (par infrarouge avec gamme de mesure allant de 0 à 2000 ppm), Thermo-Electron Megatech (gamme allant de 0 à 1000 ppm) et AC20M Emission SA (0 à 5000 ppm), les deux derniers fonctionnant par chimiluminescence.

### **III-3 Outils informatiques**

Une centrale de saisie de données couplée à un ordinateur permet le stockage et le traitement de mesures utilisées pour la réalisation de bilans massiques et thermiques. La centrale de mesure possède 200 voies de mesure groupées sur quatre cartes analogiques. On utilise le canal de communication de l'interface RS 232 entre le micro-ordinateur et la centrale de saisie. Les caractéristiques de ce canal sont identiques à celles d'un fichier séquentiel et l'on peut initialiser le fonctionnement en Entrée et Sortie, comme un fichier séquentiel de BASIC, ce pour transmettre des informations vers la centrale (ordinateur).



# Chapitre II

## Conditions expérimentales du reburning sur le four pilote du CERCHAR

### **Introduction**

Quatre charbons et du gaz naturel ont été étudiés comme combustible de reburning. Les charbons ont été sélectionnés en fonction de leur origine, de leur composition chimique mais également en fonction de leur disponibilité sur le marché international. Le charbon principal était du charbon français issu de la mine de Freyming en Lorraine.

### **I - Généralités sur le charbon**

#### **I-1 Origine et rang du charbon**

L'origine du charbon remonte à la fin de l'ère primaire, il y a quelque 200 à 300 millions d'années. Il s'est formé à partir d'une accumulation de couches de sédiments végétaux très variés (algues, champignons, fougères, écorce, tiges, pollen...) qui, peu à peu recouverts puis comprimés, ont abouti à la formation d'une roche organique dont la teneur en carbone augmente progressivement avec le temps. Ces débris végétaux ont donc successivement donné naissance à la tourbe, puis au lignite, à la houille, à l'antracite, l'ultime étape étant le graphite. Cette lente transformation des charbons conduit à une classification caractérisée que l'on appelle le rang du charbon. Le rang définit le degré de houillification d'un charbon ; le climat, les associations végétales, le lieu de développement et l'origine géographique des végétaux (hémisphère sud ou nord) sont des facteurs qui déterminent les caractéristiques finales d'un charbon. Il existe donc une multitude de charbons différents avec des origines et des processus de formation différents. Le charbon est essentiellement composé de carbone, d'hydrogène, d'oxygène, d'azote et de soufre. Plus le rang du charbon est élevé, plus le taux de carbone augmente au détriment de l'oxygène et de l'hydrogène [78].



## **I-2 Analyse des charbons**

Il existe trois sortes d'analyses différentes suivant leurs domaines d'applications, fournissant chacune des renseignements portant soit sur des caractéristiques physico-chimiques propres soit sur des paramètres influant directement sur le comportement thermique du charbon pendant sa combustion. On distingue ainsi l'analyse élémentaire, l'analyse macérale et l'analyse immédiate [78]. Toutes ces analyses sont normalisées (voir annexe 3). Les analyses sont généralement exprimées « sur brut » pour un échantillon brut, « sur sec » lorsque l'on fait abstraction de l'humidité ou « sur pur » lorsque l'on fait abstraction de l'humidité et des cendres.

### **I-2-1 Analyse élémentaire**

Cette analyse fournit la composition massique du charbon en carbone, oxygène, hydrogène, azote et soufre. Le carbone est le principal composant des charbons. L'analyse permet de doser l'ensemble de ces éléments. La teneur en oxygène est toutefois déterminée comme le complément à 100 % de la somme des teneurs en C, H, N et S et cumule donc toutes les incertitudes de la détermination.

Le charbon comporte également des matières minérales dites de constitution (c'est-à-dire constitutives des tissus végétaux et donc intimement liées à la matière organique), de dépôt (squelettes d'animaux déposés lors de la formation du charbon) ou encore d'abattage (fragments de roches abattues lors de l'extraction). C'est cette dernière qui est le plus souvent prédominante. La composition des matières minérales est plus liée à l'origine géographique du charbon qu'à son rang. On y distingue des alumino-silicates (kaolinite, illite), des oxydes (silice, hématite) des carbonates (calcite, sidérite, dolomite), des sulfures et des sulfates (gypse, pyrite). Incluses dans le charbon sous la forme de micro-domaines (de quelques microns), les formes oxydées des matières minérales lors de la combustion constituent les cendres (silice, alumine, oxyde ferrique).

Le charbon (ou les charbons) peut (ou peuvent) également contenir d'autres éléments à des concentrations diverses. Le baryum, le bore, le cuivre, l'étain, le manganèse, le strontium et le zinc peuvent en effet être présents jusqu'à 0,1 % [78].

### **I-2-2 Analyse macérale**

L'analyse macérale se fait par simple observation au microscope de la section d'un grain de charbon. On distingue des micro-domaines d'aspects différents appelés macéraux. Ils présentent des niveaux distinctifs de gris (différentes nuances) lorsque la teneur en carbone est inférieure à 90 %. Parmi ces macéraux, on distingue habituellement trois groupes principaux : la vitrinite (de couleur gris moyen, elle provient de la coagulation de tissus végétaux en l'absence d'air, a un aspect relativement homogène et est le composant principal des charbons européens et nord-américains), l'exinite (noir, elle est constituée de débris végétaux autres que le bois et a un aspect hétérogène) et l'inertinite (gris clair ou blanc, elle provient des parois cellulaires carbonifiées et est le composant principal des charbons de l'hémisphère sud).

La réflectance des macéraux, en particulier celle de la vitrinite, évolue selon le processus de houillification. La mesure du pouvoir réflecteur de la vitrinite s'avère ainsi un critère de rang particulièrement pratique [78].

### **I-2-3 Analyse immédiate**

Cette analyse est basée sur une série de tests normalisés (norme américaine ASTM ou norme française NF) qui définissent le taux de cendres (proportion du résidu solide restant après incinération d'un échantillon de charbon sec), l'indice de matières volatiles (matières qui se dégagent à l'état gazeux sous l'effet de la température), le taux de carbone fixe (fraction de carbone qui brûle essentiellement en phase de combustion) et l'humidité (quantité d'eau contenue dans le combustible à l'état brut). Dans le domaine industriel, on utilise l'analyse immédiate pour choisir les charbons et optimiser les réglages des procédés. L'indice de matières volatiles est un critère sensible pour classer les charbons selon leur rang. La teneur en cendres des prélèvements solides effectués au cours de la combustion d'un charbon permet par la suite de connaître le taux (ou efficacité) de combustion du charbon dans le four (voir annexe 3).

### **I-2-4 Le pouvoir calorifique**

Le pouvoir calorifique est la quantité de chaleur dégagée par la combustion complète de l'unité de masse du combustible. On distingue le pouvoir calorifique supérieur (P.C.S.) du pouvoir calorifique inférieur (P.C.I.). Pour le premier, l'eau produite est entièrement condensée et les produits de la combustion ramenés à la température initiale fixée à 25 °C. Pour le P.C.I., l'eau produite reste à l'état de vapeur et tous les produits de combustion sont ramenés à la température de 25 °C. Le P.C.I. est plus directement utilisable dans les conditions normales de combustion.

### **I-2-5 Appareils de mesure**

Un ensemble d'appareils de mesure permet d'effectuer, au CERCHAR, les analyses physico-chimiques des charbons. Pour l'analyse immédiate (humidité, cendres et matières volatiles) et le pouvoir calorifique, les appareils utilisés sont le MAC 400 LECO et le PARR 1261 (P.C.I.). Pour l'analyse élémentaire du charbon (carbone, hydrogène, azote, soufre), on utilise les appareils CHN 600 LECO (mesure du carbone, de l'hydrogène et de l'azote) et SC-432 SULFUR Analyzer LECO (mesure du soufre).

## **I-3 Classification des charbons**

De nombreuses classifications de charbons existent. On peut citer entre autres la norme française NF 10001, la classification ASTM... La figure 2.10 donne un aperçu des principales classifications existantes.

## **I-4 Intérêt énergétique du charbon**

Le charbon est une source d'énergie plus difficile à mettre en œuvre que les autres (pétrole, gaz naturel) mais présente l'avantage d'être abondant et présent uniformément à la surface du globe. Les réserves prouvées, récupérables au rythme actuel de consommation sont de 230 ans pour le charbon alors que pour le pétrole et le gaz naturel, elles sont respectivement de 30 et 50 ans. Concernant le nucléaire, il est en perte de vitesse, les mesures de sécurité des centrales sont de plus en plus draconiennes entraînant des coûts de construction et d'exploitation proportionnels. Le charbon apparaît donc comme une énergie d'avenir qui prendra d'ici quelques années probablement la relève des autres énergies non renouvelables alors épuisées [78].

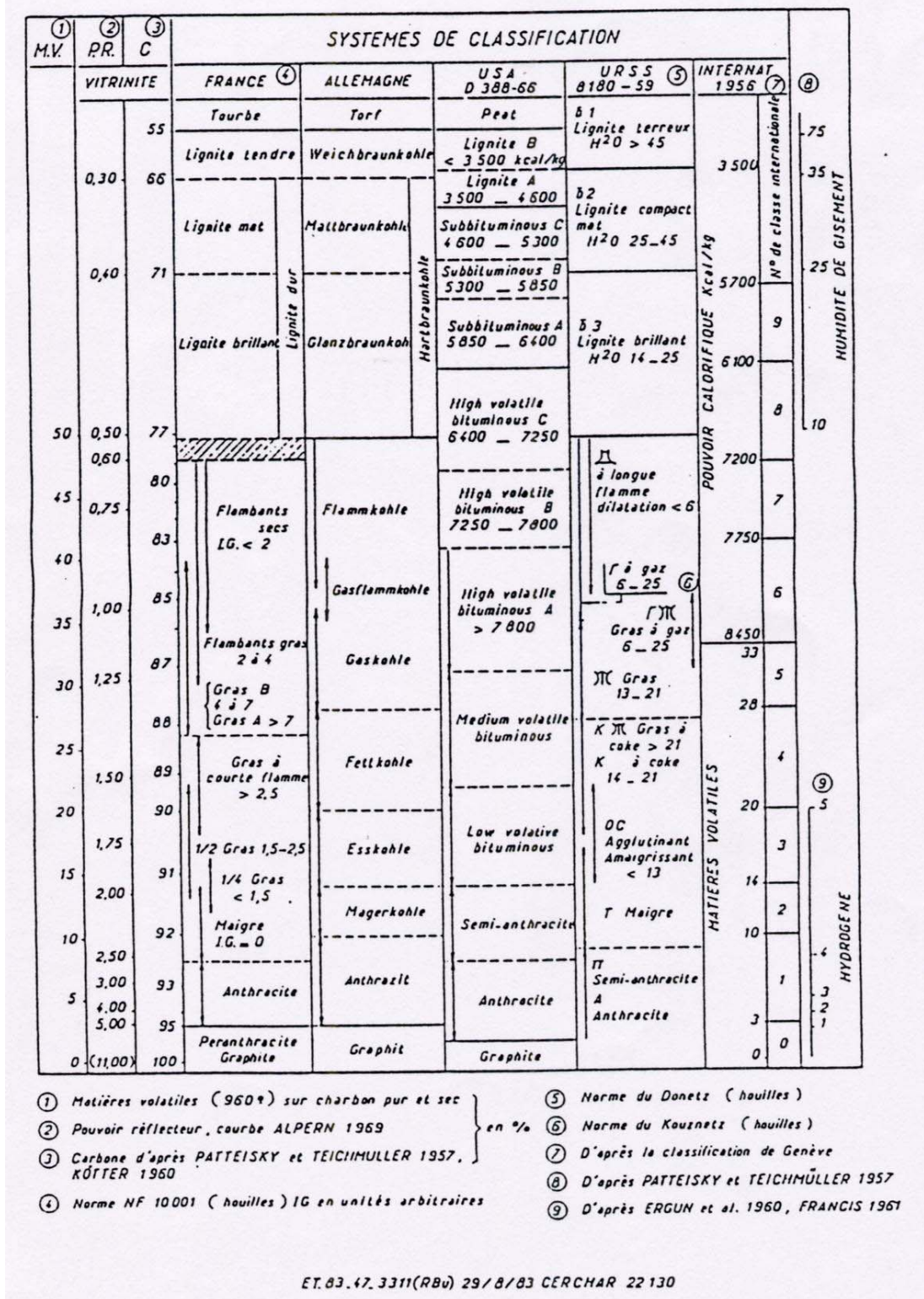


Figure 2.10 : Comparaison des normes

Néanmoins, le charbon est un émetteur important de CO<sub>2</sub> sans oublier son aptitude à former pendant sa combustion d'autres produits gazeux reconnus comme des polluants comme les oxydes d'azote et les produits soufrés ainsi que des poussières. Ceci est cependant valable également pour le pétrole et à un degré moindre pour le gaz [78].

### I-5 Combustion du charbon

Le charbon peut être brûlé dans un cyclone, un four à grille ou un lit fluidisé. Cependant, la combustion du charbon pulvérisé est devenue la méthode dominante car elle rend possible la combustion du charbon sur de très grosses unités de production d'électricité (jusqu'à 1100 MWe).

La technique de combustion du charbon sous forme pulvérisée s'est développée au début du siècle précédent. Elle s'effectue par mise en suspension du charbon finement broyé (généralement 70 à 90 % de particules de diamètre inférieur à 80 microns [78, 79, 80]) dans une partie de l'air de combustion (air primaire) et par injection du mélange air-charbon dans la chambre de combustion.

La combustion du charbon est complexe car elle fait intervenir, dans un milieu multiphasique, trois types de phénomènes étroitement interactifs : phénomènes chimiques, (combustion du grain de charbon), thermiques (dégagement de chaleur lors de la combustion) et aérodynamiques (mélange entre le charbon et l'air de combustion).

La combustion d'une particule de charbon pulvérisé peut se décrire schématiquement comme la succession de plusieurs phases (figure 2.11 et 2.12) :

- échauffement et dévolatilisation (pyrolyse ou décomposition thermique) du grain de charbon. Durant cette phase, la particule s'échauffe par conduction et rayonnement au sein du milieu réactionnel. Sous l'effet de la température, certaines liaisons présentes dans la structure du charbon se rompent et donnent naissance à un « nuage » de matières volatiles telles que  $H_2O$ ,  $CO$ ,  $C_nH_m$ ,  $HCN$ ,  $NH_3$ .
- combustion des matières volatiles en phase homogène. L'oxydation des matières volatiles s'accompagne de la formation de polluants gazeux ( $NO_x$ ,  $SO_x$ ,  $HCl...$ ) et solides (suies),
- l'oxydation du résidu de charbon appelé semi-coke en phase hétérogène gaz-solide : les réactions conduisent également à la formation de polluants gazeux et laissent un résidu à haute teneur en matières minérales (cendres).

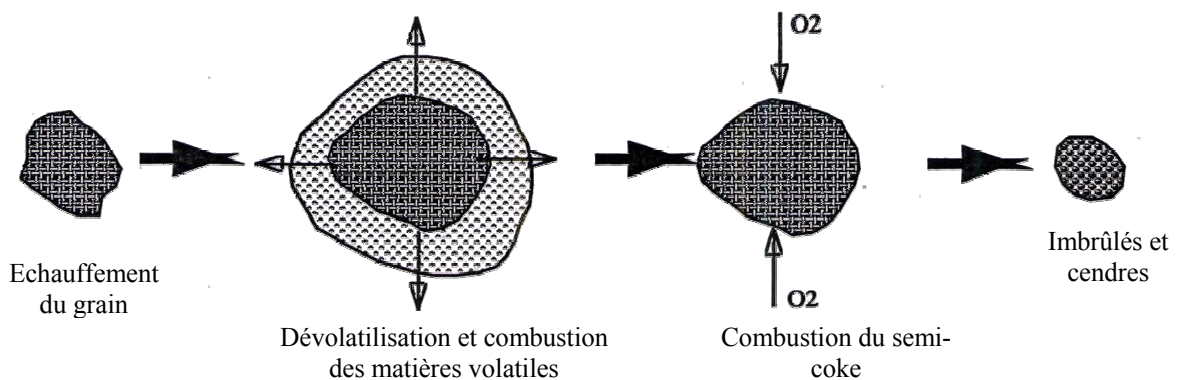


Figure 2.11 : Schéma de combustion d'un grain de charbon

Dans une chaudière à charbon pulvérisé, la dévolatilisation du grain de charbon et l'oxydation des matières volatiles s'effectuent très rapidement, en 100 ms environ. En effet, lorsque le charbon pénètre dans la chambre de combustion, il est soumis à un fort flux thermique. Jusqu'à 400 °C, le grain de charbon perd uniquement l'eau qu'il contenait. A des températures supérieures, les matières volatiles s'échappent du grain. Les matières volatiles sont constituées de produits légers et gazeux (appelés les volatiles primaires ou précoces et composés principalement de CO, CO<sub>2</sub> et les hydrocarbures légers comme le CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>) et de produits plus lourds et condensables (formant les volatiles secondaires voire tardifs ou goudrons). Les volatiles primaires vont alors s'enflammer alors que les volatiles secondaires vont être « craqués ». La quantité et la composition des gaz produits lors de la dévolatilisation du grain de charbon dépend de la nature du charbon, de la taille des particules, de la température de pyrolyse et de la vitesse de montée en température.

Lorsque la combustion des matières volatiles est achevée, l'oxygène atteint la surface du semi-coke. La combustion de ce résidu nécessite souvent plus d'une seconde. C'est cette combustion qui influence le rendement d'une installation (perte par imbrûlés solides). La combustion est terminée et est dite totale lorsque le coke a disparu : la particule n'est alors plus composée que de ses cendres.

La flamme de charbon pulvérisé est le siège de différents mécanismes chimiques qui sont pour certains consécutifs, pour d'autres parallèles ou enfin compétitifs. Ces processus impliquent des réactions rapides en phase gazeuse (combustion des produits gazeux de pyrolyse, formation des oxydes d'azote) ainsi que des réactions hétérogènes plus lentes (oxydation du semi-coke, réduction des oxydes d'azote).

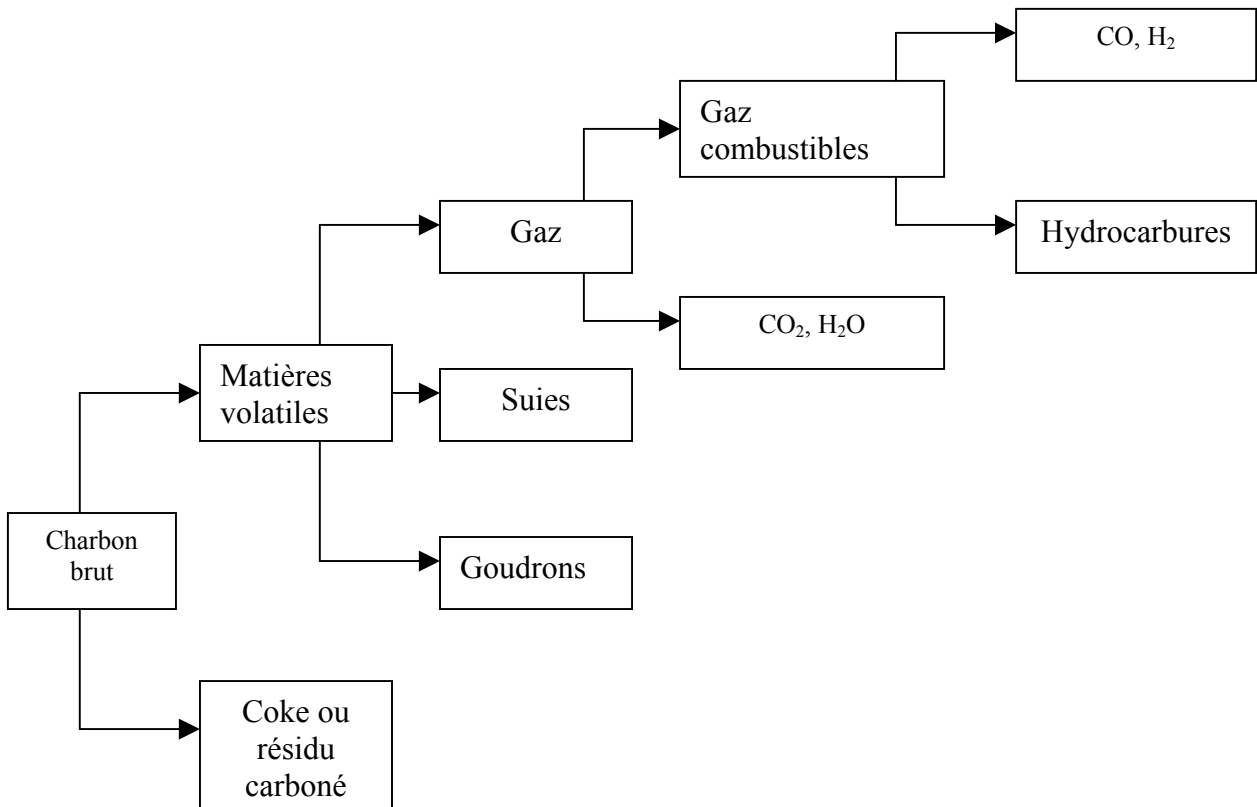


Figure 2.12 : Combustion du charbon

## II - Combustibles utilisés lors des expérimentations de reburning

### II-1 Les charbons

Le combustible principal utilisé pour le brûleur est un charbon flambant gras français issu d'une mine située en Lorraine (mine de Freyming). Au cours de cette étude, sa composition a légèrement varié. La composition Français 1 (tableau 2.1) a permis d'obtenir les réglages 1, 2, 3 et 6, 7, 8 pour le brûleur (flammes de référence, voir III-2-3). La composition Français 2 a permis d'obtenir les réglages 4, 5 et 9, 10 (voir III-2-3).

Quatre charbons ont été étudiés comme combustible de reburning, deux charbons issus de l'hémisphère nord (français 2 issu de la mine de Freyming et polonais) et deux issus de l'hémisphère sud (colombien, sud-africain) ont été utilisés. Les charbons européens ont une teneur en carbone (82 à 83 % sur sec) et un PCI (environ 30-32000 kJ.kg<sup>-1</sup>) pratiquement identiques. Les charbons de l'hémisphère sud ont également une teneur en carbone (71 à 72 % sur sec) et un PCI (28000 kJ.kg<sup>-1</sup>) très proches mais inférieurs aux charbons européens. Les indices de matières volatiles de ces quatre charbons s'échelonnent de 30 à 36 % sur sec. Selon la classification présentée en figure 2.10, ce sont tous des flambants gras. La teneur en azote est plus faible pour les charbons européens (0,82 à 1,27 % sur sec) que pour les charbons de l'hémisphère sud (1,4 à 2 % sur sec).

		Français 1	Français 2	Colombien	Sud-Africain	Polonais
Carbone	%/sec	80,64	83,15	72,14	71,66	82,01
Hydrogène	%/sec	4,97	4,85	4,44	4,13	4,51
Oxygène	%/sec	7,01	4,08	13,91	9,65	6,85
Azote	%/sec	1,11	0,82	1,43	2,03	1,27
Soufre	%/sec	0,7	0,77	0,35	1,05	0,38
Matières volatiles	%/sec	33,63	33,32	36,82	32,33	30,28
Cendres	%/sec	5,57	6,33	7,47	11,48	4,98
Humidité	%	3,36	1,98	5,82	4,11	2,03
Pouvoir Combustible	Nm <sup>3</sup> .kg <sup>-1</sup>	8,0	8,4	6,76	6,92	8,14
PCI sur sec	10 <sup>3</sup> kJ.kg <sup>-1</sup>	29,7	31,7	28,2	27,8	32,0

Tableau 2.1 : Composition des charbons utilisés pour nos expérimentations

### II-2 Le gaz naturel, combustible de reburning de référence

Le gaz naturel a été également étudié comme combustible de reburning. Les résultats obtenus ont servi de référence à ceux obtenus avec les quatre charbons. En effet, par rapport

aux charbons étudiés, le gaz naturel ne contient pas d'azote réactif et est totalement volatil.

Le gaz naturel utilisé est du gaz naturel du réseau G.D.F. composé principalement de méthane (83 %). Sa composition volumique est présentée dans le tableau 2.2 (composition fournie par G.D.F.). Le pouvoir comburivore du gaz naturel calculé à partir du tableau 2.2 est de  $10,55 \text{ Nm}^{-3}$  d'air.kg<sup>-1</sup> de gaz naturel. Son P.C.I. est d'environ 40000 kJ.kg<sup>-1</sup> (33000 kJ.Nm<sup>-3</sup>).

	CH <sub>4</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	C <sub>5</sub> H <sub>12</sub>	CO <sub>2</sub>	N <sub>2</sub>
Pourcentage volumique (%)	83,24	3,8	0,85	0,14	0,04	1,36	10,29

Tableau 2.2 : Composition du gaz naturel de G.D.F.

### III - Conditions d'expérimentations

#### III-1 Granulométrie des charbons de reburning

D'après la partie bibliographique, la granulométrie du combustible de reburning est un paramètre clé pour l'efficacité du procédé. La plupart des études menées sur le reburning concluent à la nécessité d'obtenir une granulométrie du charbon telle que 100 % en masse des particules soient inférieures à 40 µm (charbon micronisé [32]). Pour notre étude, nous avons réussi à obtenir pour les charbons de reburning, une distribution granulométrique telle que 80 à 90 % des particules possèdent un diamètre inférieur à 64 µm (annexe 3). Cela correspond à la limite technique de notre broyeur si l'on veut conserver un temps de broyage « raisonnable ».

#### III-2 Réglages du brûleur

Les paramètres d'étude pour le reburning sont la stœchiométrie et le temps de séjour dans la zone de reburning, la température et la teneur en NO<sub>x</sub> à l'entrée de cette zone et la nature du combustible de reburning (teneur en azote et indice de matières volatiles). La zone de reburning commence à partir du lieu d'injection du combustible secondaire (gaz naturel ou charbon finement broyé), la zone de postcombustion (ou de burnout) à partir du lieu d'injection de l'air.

La réduction de la teneur des NO<sub>x</sub> intervenant dans la zone de reburning dépend tout d'abord de la teneur initiale. Pour faire varier ce paramètre, nous nous sommes décidés d'utiliser la souplesse de réglage du brûleur bas-NO<sub>x</sub> du CERCHAR. Ce brûleur permet en effet non seulement de réduire la concentration des NO<sub>x</sub> mais également de l'augmenter, sans trop perturber la combustion dans la zone primaire. Nous avons donc modifié la répartition de l'air de combustion en gardant un excès d'air final constant.

Le brûleur bas-NO<sub>x</sub> est caractérisé par l'étagement de l'air de combustion (air II et III) et par la turbulence de la flamme (nombre de swirl), (voir II-3-3, chapitre I, partie 2). L'influence de ces deux paramètres sur la concentration en sortie des oxydes d'azote a donc été étudiée au préalable.

### III-2-1 Influence du nombre de swirl

L'influence de l'intensité de rotation de l'air II (nombre de swirl égal à 1 et à 2) a été étudiée par le passé sur le four pilote du CERCHAR [79]. Ces essais ont été réalisés avec un débit de charbon, une stœchiométrie primaire ST1 et un excès d'air identiques pour les deux réglages étudiés (stœchiométrie primaire de 0,7 et excès d'air à 20 %) (tableau 2.3). Le charbon utilisé était du charbon français de Freyming (Lorraine) dont l'indice de matières volatiles était de 34,84 % sur sec et dont la teneur en cendres était de 6,21 % sur sec. Ce charbon est pratiquement identique à celui utilisé dans notre étude (tableau 2.1).

		Flamme 1	Flamme 2
Débit de charbon	kg.h <sup>-1</sup>		450
Débit d'air I	kg.h <sup>-1</sup>		700
Débit d'air II	kg.h <sup>-1</sup>		2300
Débit d'air III	kg.h <sup>-1</sup>		2100
Nombre de swirl		0,98	1,94

Tableau 2.3 : Réglages étudiés [79]

Le tableau 2.4 présente les mesures effectuées au carneau (à environ 11 m du point d'injection du combustible dans une zone où toute transformation chimique peut être considérée comme terminée mis à part le NO qui s'oxydera en NO<sub>2</sub> dans l'atmosphère).

	Taux de combustion	Température des fumées	O <sub>2</sub> (%)	CO <sub>2</sub> (%)	NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )
Flamme 1 (nombre de swirl égal à 0,98)	96,45	852	4,8	14	790
Flamme 2 (nombre de swirl égal à 1,94)	98,32	843	4,9	14,4	827

Tableau 2.4 : Résultats obtenus avec deux nombres de swirl différents [79]

La rotation plus importante de l'air II agit comme un accélérateur de mélange et facilite l'oxydation du combustible. On constate cependant une influence pratiquement négligeable sur la température de la flamme au voisinage du brûleur (figure 2.13 et 2.14), sur l'efficacité de la combustion (tableau 2.4) et sur la composition des gaz sauf le NO. En effet, les réglages de la flamme 2 ont engendré une augmentation des teneurs en oxydes d'azote de 37 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> [79].

Globalement, l'augmentation du swirl améliore la combustion et favorise la formation de NO<sub>x</sub> combustible par oxydation de l'azote du charbon (augmentation de la pression partielle en oxygène au voisinage du grain de charbon). Cela favorise peu la formation de NO<sub>x</sub> thermique du fait de la faible augmentation de la température de la flamme (figures 2.15 et 2.16) [79].



L'augmentation du swirl modifie donc la formation des oxydes d'azote notamment au cours des premiers instants de la combustion et conditionne les émissions finales de  $\text{NO}_x$ . Le swirl élevé améliore l'efficacité de combustion en accentuant la re-circulation interne de la flamme. Le temps de séjour des particules dans cette zone augmente, ce qui est très favorable à la formation des  $\text{NO}_x$ .

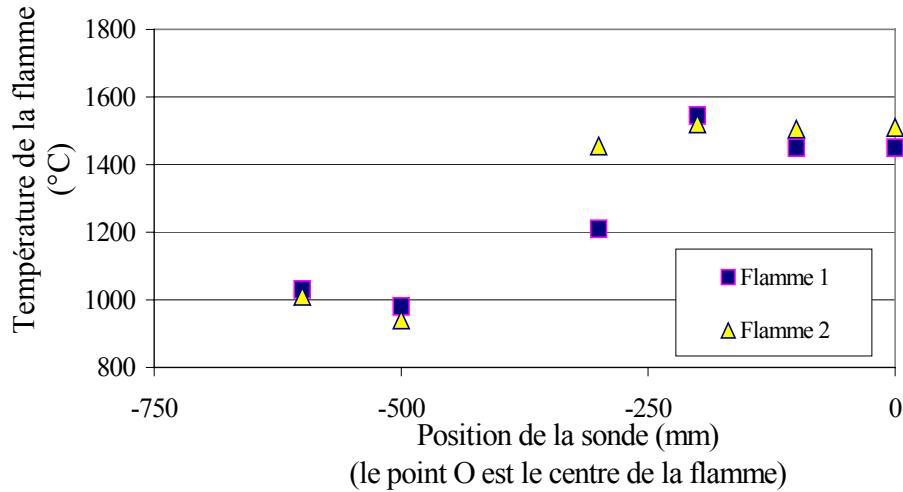


Figure 2.13 : Profil radial de température à 0,68 m du brûleur

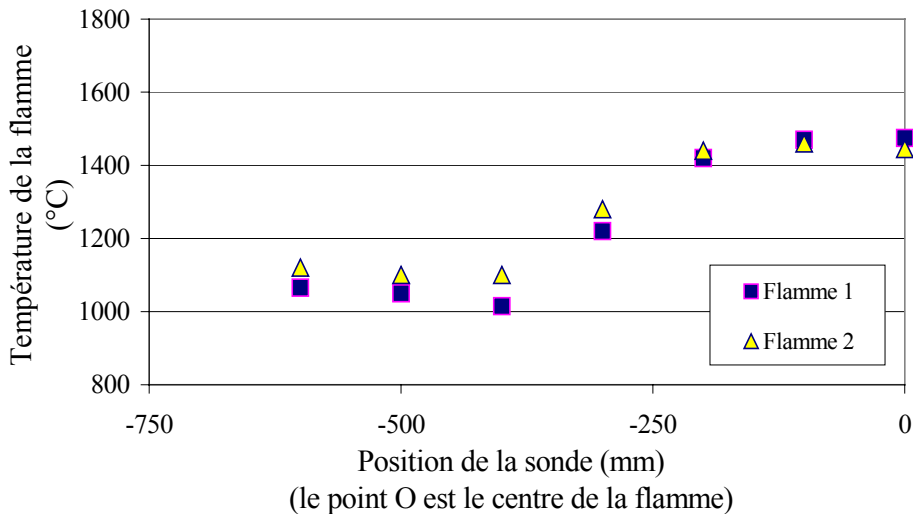


Figure 2.14 : Profil radial de température à 1,08 m du brûleur

Les variations des teneurs en  $\text{NO}_x$  par le changement du nombre de swirl sont relativement faibles. De faibles variations de ce paramètre seront donc considérées comme acceptables.

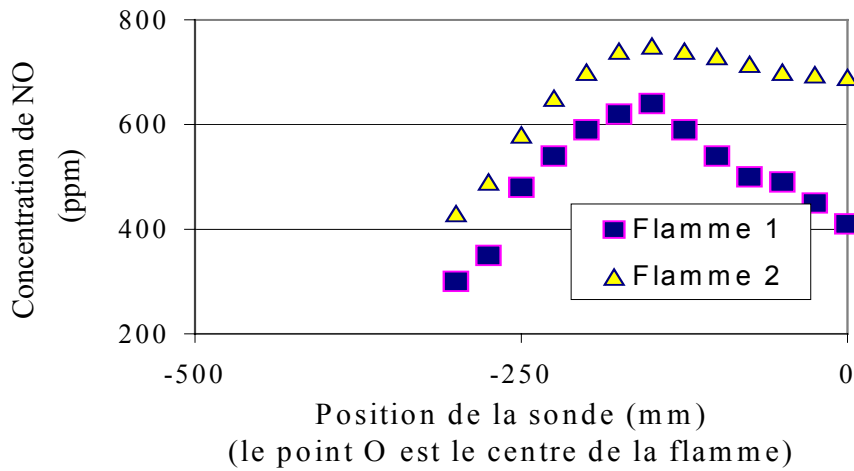


Figure 2.15 : Profil radial de concentration en NO à 0,68 m du brûleur

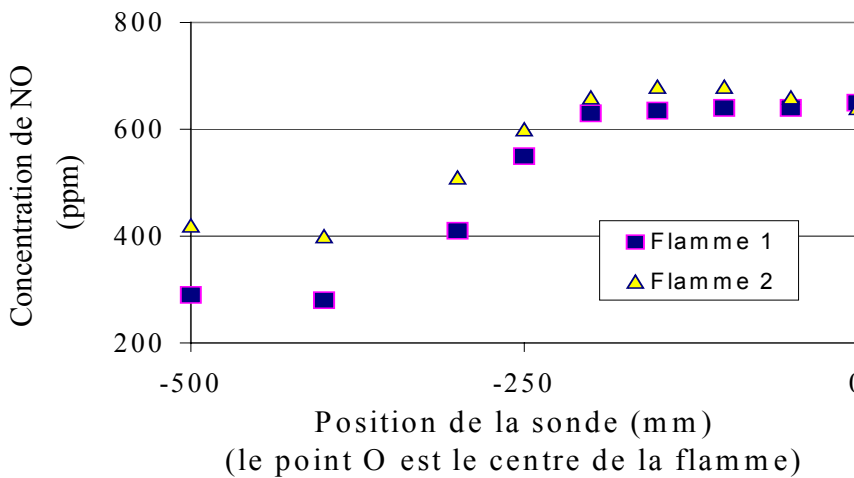


Figure 2.16 : Profil radial de concentration en NO à 1,08 m du brûleur

### III-2-2 Influence de la stœchiométrie primaire ST1

Différentes stœchiométries primaires ST1 pour plusieurs nombres de swirl (0,5 à 1,99) ont également été étudiées par le passé sur le four pilote du CERCHAR [80]. Ces essais ont été réalisés en variant le débit de charbon de 410 à 450 kg.h<sup>-1</sup> et l'excès d'air de 24 à 28 %. Un nombre de swirl de 0,7 représente une limite inférieure au-delà de laquelle il existe une zone de re-circulation interne de dimension significative. Ce réglage s'approche de celui rencontré dans les flammes de diffusion turbulente purement axiales caractérisées par un mélange progressif du combustible et de l'air de combustion. Une valeur de 1,5 correspond à celle obtenue pour des flammes purement tourbillonnaires [80].

Afin de s'approcher des conditions de combustion rencontrées dans les installations industrielles, l'air de combustion a été préchauffé à 250 °C environ. Des essais ont également été menés avec un air de combustion à une température de 40 °C. Le charbon utilisé a été le charbon de Freyming (indice de matières volatiles de 36,5 % et teneur en cendres de 4,66 %) d'un lot différent de celui utilisé précédemment. Les résultats obtenus lors de ces essais sont présentés dans le tableau 2.5. La figure 2.17 représente la variation de la concentration en NO<sub>x</sub> en fonction de la stœchiométrie primaire, pour un nombre de swirl inférieur ou supérieur à 1 et un air de combustion chauffé à 250 °C.

On constate d'après le tableau 2.5 et les figures 2.17 à 2.19 que l'augmentation de l'étagement de l'air (diminution de la valeur du ST1) au sein du brûleur diminue les émissions de NO<sub>x</sub>. En effet, lorsque le ST1 a varié de 0,45 à 0,9 (diminution de l'étagement de l'air), les émissions de NO<sub>x</sub> ont doublé (de 576 à 1187 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>) à swirl (swirl supérieur à 1) et température de flamme (250 °C) pratiquement constants. En contrepartie, les émissions de CO ont légèrement diminué : elles sont passées de 96 à 80 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>.

	Swirl > 1 Tair=250°C			Swirl < 1 Tair=250°C			Swirl > 1 Tair=40°C		
Débit de charbon (kg/h)	416	407,9	416	407,2	409,1	411,6	449	449	449
Température de l'air de combustion (°C)	260	260	260	260	260	260	35	35	35
Swirl	1,99	1,75	1,4	0,47	0,7	0,7	0,99	0,99	1,14
ST1	0,45	0,67	0,89	0,52	0,67	0,9	0,5	0,66	0,76
Excès d'air (%)	24	28	24	27	27	26	28	27	27
Teneur en O <sub>2</sub> au carneau (%)	3,6	4,1	2,7	3,9	4,7	3,9	5,6	4,9	3,9
Teneur en CO <sub>2</sub> au carneau (%)	14,8	14,6	16	14,8	14,2	14,8	13,3	14	14,9
Teneur en CO (mgCO.Nm <sup>-3</sup> )	96	90	80	111	73	75	182	116	126
Teneur en NO (mgNO <sub>2</sub> .Nm <sup>-3</sup> )	576	901	1187	563	772	1128	390	617	756
Taux de combustion (%)	100	100	100	100	99	100	93	96	100
Température des fumées (°C)	796	772	735	758	777	758	764	777	792

Tableau 2.5 : Résultats obtenus pour différentes conditions expérimentales [79]

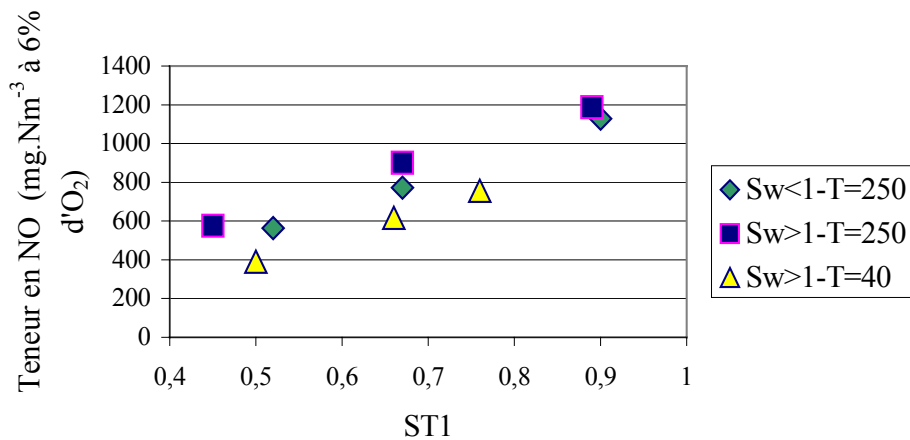


Figure 2.17 : Influence de la stœchiométrie primaire (ST1) sur les teneurs en NO<sub>x</sub> pour différents nombres de swirl (Sw) et températures de l'air de combustion (T)

Les émissions de  $\text{NO}_x$  augmentent donc avec le ST1 (figures 2.17 à 2.19). Dans le même temps, les émissions de CO diminuent (figures 2.18 et 2.19). Le préchauffage de l'air de combustion augmente également les émissions de  $\text{NO}_x$  (figure 2.17).

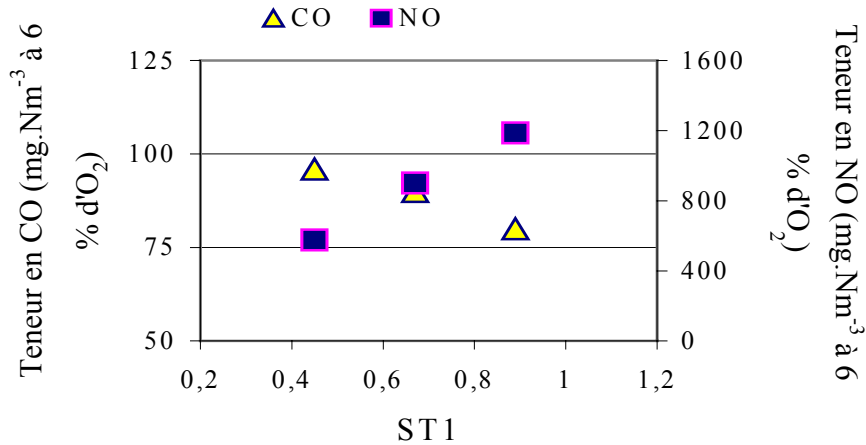


Figure 2.18 : Influence de la stœchiométrie primaire ST1 sur les teneurs en  $\text{NO}_x$  et en CO pour un nombre de swirl inférieur à 1 et un air de combustion à 250 °C

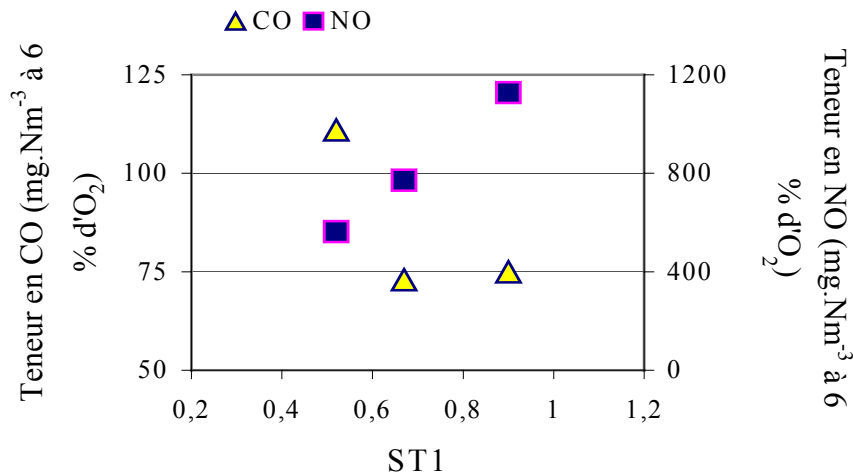


Figure 2.19 : Influence de la stœchiométrie primaire ST1 sur les teneurs en  $\text{NO}_x$  et en CO pour un nombre de swirl supérieur à 1 et un air de combustion à 250 °C

### III-2-3 Réglages adoptés pour notre étude et flammes de référence

Comme nous l'avons précédemment vu, l'intensité de la rotation (nombre de swirl) a une faible influence sur les émissions de  $\text{NO}_x$ . La stœchiométrie primaire ST1 avec un nombre de swirl constant permet toutefois de varier les teneurs en  $\text{NO}_x$  lors de la combustion d'un charbon dans le four.

Afin de rester proche des conditions de fonctionnement des brûleurs industriels, nous avons fixé le nombre de swirl à 1 pour notre brûleur bas- $\text{NO}_x$ , ce qui permet d'obtenir une

zone de re-circulation interne à la flamme, tout en évitant une flamme purement tourbillonnaire (nombre de swirl supérieur à 1,5). Par ailleurs, cela permet d'obtenir une flamme très stable.

L'augmentation de la stœchiométrie primaire ST1, à excès d'air total constant en sortie du brûleur, permet d'accroître les concentrations de NO<sub>x</sub> à la sortie du brûleur. Afin d'étudier l'influence de la concentration en NO<sub>x</sub> initiale (teneur en NO<sub>x</sub> à l'entrée de la zone de reburning) sur l'efficacité du reburning, l'étagement de l'air (variation de la stœchiométrie primaire) a de ce fait été modifié tout en conservant un nombre de swirl et un excès d'air identiques pour toutes nos expériences. Cela nous a permis de travailler dans des conditions hydrodynamiques de flammes très proches.

### **a- Température de l'air de combustion**

Une série d'essais préliminaires a été menée afin de déterminer la température optimale de préchauffage de l'air de combustion. En effet, pour appliquer le reburning, la combustion en sortie du brûleur (première zone) doit s'opérer sous un faible excès d'air (5 %) ce qui entraîne une mauvaise stabilité de flamme et un fort pourcentage d'imbrûlés, lorsque l'on utilise de l'air de combustion à température ambiante. Nos essais ont permis de déterminer une température optimale de 150 °C permettant de garder une bonne stabilité de flamme et de ne pas surchauffer la première zone. Trois concentrations initiales en NO<sub>x</sub> sont ensuite obtenues en étagant différemment la combustion.

### **b- Flammes de référence**

Une combustion classique sur des installations industrielles à charbon s'opère généralement avec un excès d'air de l'ordre de 20 %. D'un point de vue industriel, il est donc nécessaire de quantifier les réductions de NO<sub>x</sub> par le reburning par rapport à ces flammes classiques à 20 % d'excès d'air.

Trois « flammes de référence » ont été obtenues en brûlant du charbon de Freyming (français 1, débit de 395 kg.h<sup>-1</sup>) avec un excès de 20 % et un nombre de swirl d'environ 1 (tableau 2.6). Pour ces trois flammes, les ST1 de 0,6, 0,7 et 0,8, ont été imposés, ce qui a entraîné la variation des émissions de NO<sub>x</sub> de 324 à 500 ppm (618 à 927 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>, tableau 2.6). Ces flammes serviront à « quantifier » la réduction des NO<sub>x</sub> que l'on peut obtenir lors du reburning en fonction de la teneur en NO<sub>x</sub> initial.

Il est important de remarquer que les taux de combustion de 90 % environ sont faibles notamment à cause des parois froides du four (refroidissement des parois par une circulation en boucle d'eau). En effet, la combustion du charbon est incomplète ce qui entraîne une quantité conséquente d'imbrûlés.

Du fait de ces taux de combustion (et de la production d'imbrûlés), la teneur en oxygène au carneau est supérieure à la valeur théorique. On relève 4,4 à 4,8 % au lieu de 3,4 %. Cela correspond à un excès d'air réel de 26 à 30 % (stœchiométrie réelle de 1,26 à 1,3) alors que l'excès d'air théorique est de 20 % en sortie du brûleur (stœchiométrie calculée en sortie du brûleur de 1,2).

	Réglage 1	Réglage 2	Réglage 3
Stœchiométrie ST1	0,6	0,7	0,8
Stœchiométrie théorique (calculée) en sortie du brûleur	1,2	1,2	1,2
Nombre de swirl	0,96	1,04	1,09
Taux de NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6% d'O <sub>2</sub> )	618 +/- 8	776 +/- 5	927 +/- 5
Taux de NO <sub>x</sub> (ppm)	324 +/- 4	411 +/- 3	500 +/- 3
Taux de CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6% d'O <sub>2</sub> )	212 +/- 14	173 +/- 11	133 +/- 9
Taux de CO (ppm)	183 +/- 8	150 +/- 10	118 +/- 8
Teneur en O <sub>2</sub> (%)	4,84 +/- 0,1	4,7 +/- 0,1	4,38 +/- 0,1
Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,3 +/- 0,1	14,47 +/- 0,1	14,74 +/- 0,1
Stœchiométrie réelle en sortie du brûleur (d'après la teneur en O <sub>2</sub> )	1,30 +/- 0,01	1,29 +/- 0,01	1,26 +/- 0,01
Taux de combustion (%)	89,2	91,3	92,5

Tableau 2.6 : Teneurs en NO<sub>x</sub>, CO, CO<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> pour trois réglages différents du ST1 (débit de charbon de 395 kg.h<sup>-1</sup> et excès d'air théorique de 20 %)

Afin d'obtenir un excès d'air réel de 20 %, les réglages du brûleur ont été modifiés. En particulier, le débit de charbon a été augmenté et les débits des airs de combustion ajustés (français 2, tableau 2.7).

	Réglage 4	Réglage 5
Stœchiométrie ST1	0,6	0,8
Stœchiométrie théorique (calculée) en sortie du brûleur	1,2	1,2
Nombre de swirl	0,96	1,04
Taux de NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6% d'O <sub>2</sub> )	668 +/- 15	950 +/- 15
Taux de NO <sub>x</sub> (ppm)	366 +/- 8	533 +/- 7
Taux de CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6% d'O <sub>2</sub> )	158 +/- 17	102 +/- 11
Taux de CO (ppm)	142 +/- 16	94 +/- 11
Teneur en O <sub>2</sub> (%)	4,12 +/- 0,25	3,71 +/- 0,2
Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,97 +/- 0,25	15,54 +/- 0,2
Stœchiométrie réelle en sortie du brûleur (d'après la teneur en O <sub>2</sub> )	1,24 +/- 0,01	1,21 +/- 0,01
Taux de combustion (%)	91	92,2

Tableau 2.7 : Teneurs en NO, CO, CO<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> pour deux réglages différents (débit de charbon de 420 kg.h<sup>-1</sup>)

Par rapport aux résultats obtenus avec un débit de charbon de 395 kg.h<sup>-1</sup>, les teneurs en NO<sub>x</sub> restent sensiblement les mêmes : nous obtenons, pour un ST1 de 0,8, une concentration de 950 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> alors qu'elle était de 927 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> pour un débit de 395 kg.h<sup>-1</sup>. Pour les mêmes réglages, la teneur en CO est de 102 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> alors qu'elle était de 133 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> (réglage 3). La teneur en CO<sub>2</sub> varie de 0,5 à 1 % entre les deux réglages. Le taux de combustion calculé à partir de la teneur en imbrûlés dans les prélèvements solides reste constant à 90-92 %.

### c- Flammes de référence à 5 % d'excès d'air

Afin d'obtenir une zone secondaire réductrice, la combustion du combustible principal doit s'opérer sous un faible excès d'air dans la première zone. Pour des raisons pratiques (limite du débit de combustible de reburning, risque de dégradation de l'ouvrage du brûleur), nous avons retenu un excès d'air de 5 % pour la première zone.

Les flammes ainsi obtenues ont également été considérées comme « flammes de référence » puisque ce sont elles qui déterminent la teneur réelle en NO<sub>x</sub> initial à l'entrée de la zone de reburning. Elles ont été réalisées en brûlant du charbon de Freyming (français 1, débit de 395 kg.h<sup>-1</sup>) avec un excès de 5 % et un nombre de swirl d'environ 1 (tableau 2.8). Comme auparavant, seul varie le ST1 de 0,6 à 0,8 pour ces flammes, ce qui a permis de varier les émissions de NO<sub>x</sub> de 332 à 551 ppm (551 à 913 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>). Ces flammes permettront également de « quantifier » la réduction des NO<sub>x</sub> lors du reburning pour un excès d'air de 5 % en sortie du brûleur.

	Réglage 6	Réglage 7	Réglage 8
Stœchiométrie ST1	0,6	0,7	0,8
Stœchiométrie théorique (calculée) en sortie du brûleur	1,05	1,05	1,05
Nombre de swirl	0,96	1,04	1,09
Taux de NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6% d'O <sub>2</sub> )	551 +/- 3	812 +/- 5	913 +/- 9
Taux de NO <sub>x</sub> (ppm)	332 +/- 2	488 +/- 3	551 +/- 4
Taux de CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6% d'O <sub>2</sub> )	221 +/- 10	130 +/- 7	130 +/- 8
Taux de CO (ppm)	220 +/- 10	130 +/- 6	128 +/- 9
Teneur en O <sub>2</sub> (%)	2,42 +/- 0,04	2,49 +/- 0,06	2,39 +/- 0,2
Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	16,23 +/- 0,07	16,21 +/- 0,06	16,47 +/- 0,17
Stœchiométrie réelle en sortie du brûleur (d'après la teneur en O <sub>2</sub> )	1,13 +/- 0,001	1,13 +/- 0,001	1,13 +/- 0,001
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% absolu)	7,70	6,94	16,66
Taux de combustion (%)	84,5	88,2	84,4

Tableau 2.8 : Teneurs en NO<sub>x</sub>, CO, CO<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> pour différentes valeurs du ST1 (débit de charbon de 395 kg.h<sup>-1</sup> et excès d'air théorique de 5 %)

Un excès d'air de 5 % correspond à une teneur en oxygène calculée de 1 %. Or, la valeur mesurée en O<sub>2</sub> était de 2,4-2,5 % suite à une combustion incomplète du charbon, cela correspond à un excès d'air réel de 13 %. Comme précédemment, afin d'obtenir un excès d'air réel de 5 %, nous avons augmenté le débit de charbon et ajustés les airs de combustion (français2, tableau 2.9). Par rapport aux résultats obtenus avec un débit de charbon de 395 kg.h<sup>-1</sup>, les teneurs en NO<sub>x</sub> restent sensiblement les mêmes : nous obtenons, pour un ST1 de 0,8, une concentration de 853 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> alors qu'elle était de 913 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> pour un débit de 395 kg.h<sup>-1</sup>. Pour les mêmes réglages, la teneur en CO est de 172 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> alors qu'elle était de 130 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> (réglage 8). La teneur en CO<sub>2</sub> a augmenté de 0,5 à 1 % entre les deux réglages. Le taux de combustion varie de 2 à 3 %.

	Réglage 9	Réglage 10
Stœchiométrie ST1	0,6	0,8
Stœchiométrie théorique en sortie du brûleur	1,05	1,06
Nombre de swirl	0,96	1,04
Taux de NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6% d'O <sub>2</sub> )	561 +/- 14	853 +/- 7
Taux de NO <sub>x</sub> (ppm)	365 +/- 8	547 +/- 5
Taux de CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6% d'O <sub>2</sub> )	779 +/- 228	172 +/- 62
Taux de CO (ppm)	834 +/- 246	182 +/- 65
Teneur en O <sub>2</sub> (%)	0,98 +/- 0,1	1,23 +/- 0,04
Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	17,54 +/- 0,1	17,43 +/- 0,03
Stœchiométrie réelle en sortie du brûleur (d'après la teneur en O <sub>2</sub> )	1,049 +/- 0,005	1,062 +/- 0,002
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% absolu)	16,21	14,79
Taux de combustion (%)	81,7	86,4

Tableau 2.9 : Teneurs en NO<sub>x</sub>, CO, CO<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> pour différentes valeurs du ST1 (débit de charbon de 420 kg.h<sup>-1</sup> et excès d'air théorique de 5 %)

### III-2-4 Evolution de la température de la flamme

La variation du ST1 (avec un nombre de swirl constant à 1) pourrait entraîner une modification du gradient de température de la flamme. La température à l'entrée de la zone de reburning étant un paramètre de notre étude, nous avons préalablement vérifié l'impact du changement d'étagement de l'air sur les profils de température dans le four en effectuant des cartographies à l'aide de thermocouples et d'un pyromètre à aspiration.

#### a- Profil de températures enregistré avec des thermocouples de type K (Cr-Ni / Cr-Al)

Pour les réglages 6, 7 et 8 (flammes à 5 % d'excès d'air), le profil de températures de la flamme a été enregistré à l'aide de thermocouples de type K (à 20 cm des parois du four).



Cette première série de mesures très imprécise n'avait pour but que de fournir une première indication avant d'employer des moyens de mesures plus précis mais plus lourds à mettre en œuvre

Réglage	Température à 1,6 m de l'ouveau (°C)	Température à 2 m de l'ouveau (°C)	Température à 2,4 m de l'ouveau (°C)	Température à 2,8 m de l'ouveau (°C)	Température à 3,2 m de l'ouveau (°C)	Température à 3,8 m de l'ouveau (°C)
6	1128	1067	1025	974	936	906
7	1116	1057	1019	970.5	935	905
8	1056	1002	965	930	902	877

Tableau 2.10 : Variation des températures (à 20 cm de la paroi) en fonction du ST1

D'après les mesures obtenues grâce à ces thermocouples, la modification du ST1 de 0,6 à 0,8 n'a entraîné qu'une différence de température de moins de 70 °C sur l'ensemble du profil de température (tableau 2.10). La température de la flamme reste donc sensiblement constante quelque soit la valeur du ST1.

#### b- Températures enregistrées au pyromètre à aspiration

Une cartographie (voir tableau 2.11 et figure 2.20) plus précise effectuée à l'aide d'un pyromètre à aspiration nous a permis de confirmer que la variation du ST1 à swirl constant n'entraînait pas de changements significatifs au niveau des profils de température du foyer.

Ces mesures nous ont permis de déterminer les positions axiales correspondant à des températures de fumées de 1300, 1200 et 1100 °C (paramètre de l'étude). La figure 2.20 montre ainsi qu'à 1 m de l'ouveau du brûleur, la température des fumées est de 1300 °C ; qu'à 1,8 m elle est de 1200 °C et qu'à 2,7 m elle est de 1100°C (extrapolation). Dans notre étude, ces positions correspondent à des températures d'entrée de la zone de reburning c'est-à-dire à des positions d'injection du combustible de reburning.

Type de réglage	Mesures effectuées	Centre de la flamme (0,75 m de la paroi)	0,55 m de la paroi
Réglage 6	Température à 0,9 m de l'ouveau	1326	1327
	1,5 m de l'ouveau	1236	1236
	2 m de l'ouveau	1205	1190
Réglage 7	Température à 0,9 m de l'ouveau	1325	1365
	1,5 m de l'ouveau	1263	1265
	2 m de l'ouveau	1195	1206

Tableau 2.11 : Variation du profil de température (mesurée par un pyromètre) en fonction du ST1

Les mesures de température (par les thermocouples et le pyromètre à aspiration) ont permis de vérifier que la variation du ST1 à swirl constant ne change pas la température en un endroit donné du four. Dès lors, lors des expérimentations du reburning, chaque paramètre opératoire du reburning peut être étudié indépendamment des autres : la modification de la teneur initiale en  $\text{NO}_x$  n'entraîne pas de changement important du profil de température.

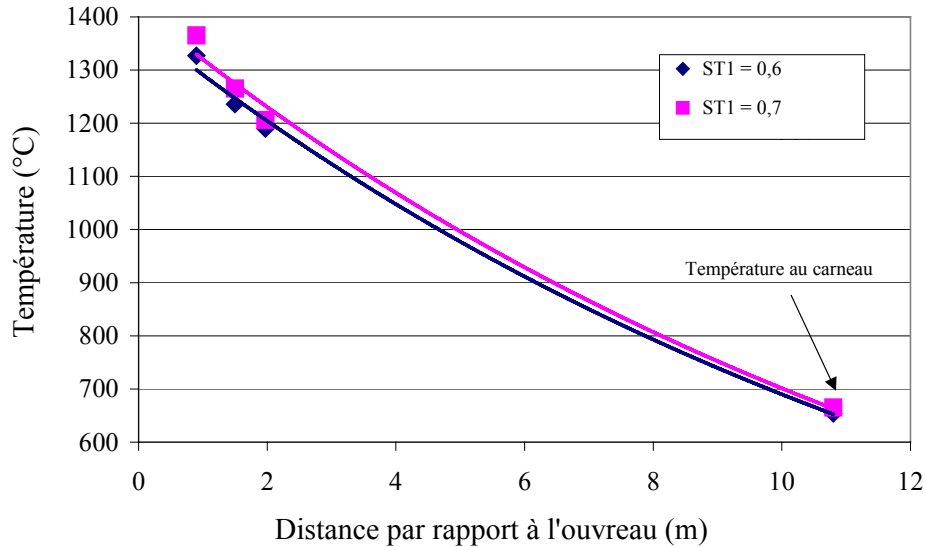


Figure 2.20 : Evolution du profil de température dans le four en fonction du STI

#### IV - Conclusion sur les paramètres d'études

Quatre charbons et du gaz naturel ont été choisis comme combustibles de reburning sur le four pilote. Les charbons diffèrent par leur origine géographique (hémisphère nord et sud), par leur teneur en azote, en carbone et par leur pouvoir calorifique (P.C.I.). Toutefois, les indices de matières volatiles sont assez proches. Les charbons de reburning ont par ailleurs une granulométrie plus fine que celle du combustible principal.

L'utilisation du four pilote du CERCHAR muni d'un brûleur bas  $\text{NO}_x$  à étagement de l'air de combustion permet de modifier la teneur en  $\text{NO}_x$  à l'entrée de la zone de reburning en modulant les réglages du brûleur (modification de la stœchiométrie primaire ST1 à swirl constant à 1 et à excès d'air constant à 5 %). Cette variation entraîne peu de changement sur le profil de température de la flamme. Afin de faciliter la comparaison des résultats, nous avons admis que cette teneur n'évolue pas entre la zone où s'effectue l'injection du combustible de reburning et le carneau, et donc que la teneur en  $\text{NO}_x$  à l'entrée de la zone de reburning est peu différente de celle mesurée au carneau. Les cartographies de température dans le four permettront de vérifier cette hypothèse (partie 3 et 4). La température à l'entrée de la zone de reburning peut être modifiée en variant la position d'injection du combustible de reburning. Trois températures différentes ont été étudiées : 1300, 1200 et 1100 °C, elles correspondent à des distances axiales de 1, 1,8 et 2,7 m de l'ouverture. Ce sont des températures (ou des distances) permettant à la fois de conserver un temps de séjour correct dans la première zone (minimum de 300 ms) et de garder un espace suffisant pour la postcombustion des fumées. Le temps de séjour des particules dans la zone de reburning peut être modifié en variant la distance entre les deux points d'injection du combustible de reburning et de l'air de postcombustion. Différents temps de séjour ont été étudiés : 300, 600 et 900 ms environ. Le temps de séjour dans la zone de reburning est choisi inférieur à 1 s afin

d'assurer une longueur suffisante pour la zone de postcombustion (troisième zone). La stœchiométrie de la zone de reburning peut être modifiée en variant le débit du combustible de reburning. Différentes valeurs de stœchiométries ont été étudiées : 0,85, 0,9 et 0,95 environ.

## V – Modification de l'outil expérimental

Notre objectif a été d'étudier le reburning comme procédé de réduction des oxydes d'azote en commençant dans un premier temps avec du gaz naturel comme combustible de reburning. Le four 4 MWth du CERCHAR a donc été modifié afin de permettre l'injection de gaz naturel et d'air de postcombustion, en aval d'une flamme à charbon pulvérisé. Les détails de ces modifications sont apportés en annexe 4 (reburning au gaz naturel) et 5 (reburning au charbon).

Le bon mélange du combustible de reburning et de l'air de postcombustion avec les fumées issues des zones en amont (zone primaire et de reburning) est un facteur essentiel dans la réduction des émissions des oxydes d'azote [32]. Aussi, nous avons choisi un système d'injection du gaz naturel et de l'air de postcombustion sous la forme de couronnes, perpendiculaires à l'axe du four. Ces deux couronnes sont respectivement munies de 8 buses d'injection de 5 mm de diamètre pour le gaz naturel (figure A4.1, annexe 4) et de 28 buses d'injection de 8 mm de diamètre pour l'air (figure A4.6, annexe 4). Les points d'injection sont diamétralement opposés deux à deux, permettant d'entourer les gaz de combustion sortant des zones en amont (zone primaire et de reburning). Le nombre de buses d'injection est toutefois fonction des limites de l'installation d'injection d'air (annexe 4, [81]). Des essais ont eu pour but de tester et de mettre à l'épreuve l'installation de reburning au gaz naturel (tests des sécurités, vérification des pressions...). Nous avons vérifié par ailleurs la tenue en température des deux systèmes d'injection (refroidissement à l'eau pour la couronne de gaz et à l'air pour la couronne d'air de postcombustion). Nous avons également obtenu de bons résultats préliminaires de réduction des oxydes d'azote ( $\text{NO}_x$ ) avec du gaz naturel comme combustible de reburning et combustible principal en accord avec ceux obtenus par d'autre étude [28].

Le reburning avec le charbon comme combustible secondaire a été étudié sur le même four pilote 4 MWth du CERCHAR. Des modifications ont également été réalisées sur cette installation expérimentale afin de permettre le broyage, le stockage et l'injection régulée dans le four, du charbon utilisé comme combustible de reburning. Comme nous l'avons montré lors de notre étude bibliographique (chapitre III, partie 1), la granulométrie du charbon utilisé comme combustible de reburning a une influence sur le rendement de dénitrification. Nous avons obtenu lors du broyage de ce charbon au moins 80 % de particules (en masse) de taille inférieure à 60  $\mu\text{m}$  (figure A5.1, annexe 5). Le charbon de reburning est injecté radialement dans le four en deux points diamétralement opposés et situés dans le plan horizontal passant par l'axe du four. Les deux injections sont effectuées grâce à deux cannes d'injection équipées d'un cône de rétrécissement en sortie (annexe 5, figure A5.3) et munies d'une plaque en acier de protection et de fixation. Nous avons testé cette installation en effectuant du reburning avec du charbon français comme combustible de reburning et comme combustible principal. Ces essais préliminaires de reburning au charbon ont montré qu'il est possible d'obtenir facilement une réduction des  $\text{NO}_x$  de 40 % par rapport à une flamme classique à 20 % d'excès d'air. Malheureusement, cette réduction s'est accompagnée d'une importante émission de CO par rapport à une combustion classique.

## Conclusion

Les expérimentations du reburning ont été faites sur le four pilote du CERCHAR. L'objectif de ces expériences était de déterminer l'influence de cinq paramètres sur la réduction des émissions finales de  $\text{NO}_x$  par le procédé reburning. Ces paramètres d'études sont la stœchiométrie et le temps de séjour dans la zone de reburning, la température et la teneur en  $\text{NO}_x$  à l'entrée de la zone de reburning et les caractéristiques du combustible utilisé pour le reburning (indice de matières volatiles et teneur en azote).

Afin de procéder à ces essais de reburning, le four pilote a été modifié et un système d'injection radiale de combustible de reburning et d'air de postcombustion y a été intégré. L'objectif est d'injecter dans de bonnes conditions le combustible de reburning et l'air de postcombustion (contrôle des débits, sécurité...).

Le four pilote est muni d'un brûleur bas  $\text{NO}_x$  à étagement de l'air de combustion. Ce brûleur permet d'obtenir différentes teneurs en  $\text{NO}_x$  à l'entrée de la zone de reburning. Pour cela, il suffit de modifier le débit des airs de combustion tout en gardant un excès d'air de 5 %. Les autres paramètres sont facilement modifiables en faisant varier le point d'injection et le débit du combustible de reburning et de l'air de postcombustion. Les différentes valeurs de ces paramètres ont été choisies en fonction des expérimentations de reburning déjà menées à travers le monde (chapitre III, partie 1).

Par ailleurs, différents charbons ont été étudiés comme combustibles de reburning. Ils ont été choisis en fonction de leur composition chimique mais également en fonction de leur disponibilité sur le marché international. Le gaz naturel a d'abord été étudié. Les résultats obtenus vont servir de référence et seront comparés à ceux obtenus avec des charbons comme combustible de reburning.

Les émissions de  $\text{NO}_x$  seront comparées avant et après l'application du reburning ; la réduction des  $\text{NO}_x$  sera quantifiée par rapport à la combustion classique du charbon français sous les excès d'air de 5 et 20 %.



## **PARTIE 3**

# **REBURNING AU GAZ NATUREL**



# Chapitre I

## Essais paramétriques de reburning au gaz naturel

### I - Conditions des essais

Suite à l'étude bibliographique (chapitre III, partie 1), nous avons retenu les paramètres suivants pour les essais de reburning au gaz naturel :

- la température moyenne à l'entrée de la zone de reburning, paramètre modifiable en déplaçant l'injection du combustible de reburning (températures étudiées : 1100, 1200 et 1300 °C correspondant à une injection située respectivement à 2,9, 1,9 et 1 m de l'ouvrage) ;
- le temps de séjour nominal des particules dans la zone de reburning, variation obtenue en modifiant la distance entre les points d'injection de gaz naturel et d'air de postcombustion ;
- la stœchiométrie nominale dans la zone de reburning variable en fonction du débit de gaz naturel injecté comme combustible de reburning (le combustible de reburning fournira 10 à 20 % de la charge thermique totale du four et l'intervalle étudié sera 0,85-0,95) ;
- la teneur moyenne en  $\text{NO}_x$  à l'entrée de la zone de reburning (également appelée teneur initiale en  $\text{NO}_x$  ou teneur en  $\text{NO}_x$  primaires) c'est-à-dire avant injection du combustible de reburning : les diverses teneurs ont été obtenues grâce à différentes valeurs de la stœchiométrie ST1 (chapitre II, partie 2).

Les paramètres constants sont l'excès d'air en sortie du brûleur fixé à 5 % et l'excès dans la zone de postcombustion fixé à 15 %. Le nombre de swirl est fixé à 1 bien que les réglages du brûleur entraînent une légère variation de la valeur de ce nombre autour de 1.



Avant de procéder à des essais de reburning au gaz naturel pour une température de 1300, 1200 et 1100 °C à l'entrée de la zone de reburning, nous avons réglé la flamme du brûleur selon les trois réglages explicités dans la partie précédente (charbon français 1 ; réglages 6, 7 et 8).

## II - Température de 1300°C à l'entrée de la zone de reburning

### II-1 Réglages du brûleur

Les différents débits d'air, le nombre de swirl et la température de l'air de combustion figurent dans le tableau 3.1.

	Réglage 6	Réglage 7	Réglage 8
Excès d'air théorique (%)	5	5	5
Stœchiométrie ST1	0,6	0,7	0,8
Teneur initiale en NO <sub>x</sub> (ppm)	332	488	551
Débit de charbon (kg.h <sup>-1</sup> )	396 +/- 0,5	396 +/- 0,5	396 +/- 0,4
Débit d'air primaire (kg.h <sup>-1</sup> )	600	600	600
Débit d'air secondaire (kg.h <sup>-1</sup> )	1837 +/- 12	2255 +/- 7	2650 +/- 15
Débit d'air tertiaire (kg.h <sup>-1</sup> )	1834 +/- 14	1431 +/- 14	1034 +/- 14
Débit d'air total (kg.h <sup>-1</sup> )	4273 +/- 23	4287 +/- 20	4288 +/- 21
Nombre de swirl	0,969	1,04	1,09
Stœchiométrie sortie brûleur	1,041 +/- 0,006	1,044 +/- 0,005	1,044 +/- 0,007
Température air de combustion	167 +/- 7	176 +/- 7	181 +/- 7

Tableau 3.1 : Réglages des débits d'air pour une température de 1300°C

### II-2 Autres réglages

L'injection du gaz naturel a été effectuée à 1 m de l'ouvrage. Le temps de séjour dans la zone primaire est de 300 ms. L'injection de l'air de postcombustion s'est faite successivement à 1,5, 2,5 et 3,5 m de l'ouvrage correspondant à des temps de séjour dans la zone de reburning respectifs de 160, 475 et 795 ms. Les résultats sont regroupés en annexe 4, tableaux A4.2, A4.3 et A4.4.

## III - Température de 1200°C à l'entrée de la zone de reburning

### III-1 Réglages du brûleur

Les différents débits d'air, le nombre de swirl et la température de l'air de combustion figurent dans le tableau 3.2.

### III-2 Autres réglages

La couronne de gaz naturel est située à 1,9 m de l'ouvrage. Le temps de séjour dans la zone primaire est de 590 ms. L'injection de l'air de postcombustion est faite successivement à 2,4, 3,4 et 4,4 m de l'ouvrage correspondant à des temps de séjour dans la zone de reburning

respectifs de 170, 510 et 850 ms. Les résultats sont regroupés en annexe 4, tableaux A4.5, A4.6 et A4.7.

	Réglage 6	Réglage 7	Réglage 8
Excès d'air théorique (%)	5	5	5
Stœchiométrie ST1	0,6	0,7	0,8
Teneur initiale en NO <sub>x</sub> (ppm)	332	488	551
Débit de charbon (kg.h <sup>-1</sup> )	395 +/- 0,5	395 +/- 0,5	395 +/- 0,5
Débit d'air primaire (kg.h <sup>-1</sup> )	600	600	600
Débit d'air secondaire (kg.h <sup>-1</sup> )	1828 +/- 10	2248 +/- 18	2658 +/- 15
Débit d'air tertiaire (kg.h <sup>-1</sup> )	1838 +/- 23	1432 +/- 20	1020 +/- 30
Débit d'air total (kg.h <sup>-1</sup> )	4266 +/- 15	4280 +/- 31	4279 +/- 21
Nombre de swirl	0,951	1,034	1,083
Stœchiométrie sortie brûleur	1,043 +/- 0,005	1,045 +/- 0,007	1,045 +/- 0,01
Température air de combustion	147 +/- 7	152 +/- 7	158 +/- 7

Tableau 3.2 : Réglages des débits d'air pour une température de 1200°C

#### IV - Température de 1100°C à l'entrée de la zone de reburning

##### IV-1 Réglages du brûleur

Les débits d'air, le nombre de swirl et la température de l'air de combustion figurent dans le tableau 3.3.

	Réglage 6	Réglage 7	Réglage 8
Excès d'air théorique (%)	5	5	5
Stœchiométrie ST1	0,6	0,7	0,8
Teneur initiale en NO <sub>x</sub> (ppm)	332	488	551
Débit de charbon (kg.h <sup>-1</sup> )	395 +/- 1	395 +/- 1	395 +/- 1
Débit d'air primaire (kg.h <sup>-1</sup> )	600	600	600
Débit d'air secondaire (kg.h <sup>-1</sup> )	1839 +/- 8	2248 +/- 13	2652 +/- 10
Débit d'air tertiaire (kg.h <sup>-1</sup> )	1824 +/- 5	1429 +/- 17	1035 +/- 18,99
Débit d'air total (kg.h <sup>-1</sup> )	4263 +/- 11	4277 +/- 20	4288 +/- 16
Nombre de swirl	0,953	1,033	1,086
Stœchiométrie sortie brûleur	1,041 +/- 0,003	1,043 +/- 0,005	1,046 +/- 0,005
Température air de combustion	142 +/- 4	150 +/- 4	156 +/- 3

Tableau 3.3 : Réglages des débits d'air pour une température de 1100°C

##### IV-2 Autres réglages

L'injection du gaz naturel a été effectuée à 2,9 m de l'ouvrage. Le temps de séjour dans la zone primaire est de 933 ms. L'injection de l'air de postcombustion est faite successivement à 3,4, 4,4 et 5,4 m de l'ouvrage correspondant à des temps de séjour dans la

zone de reburning respectifs de 180, 545 et 910 ms. Les résultats sont regroupés en annexe 4, tableaux A4.8, A4.9 et A4.10.

## V - Résultats et discussion

### V-1 Influence des paramètres sur la réduction des $\text{NO}_x$

Les figures 3.1 à 3.9 montrent l'influence des paramètres retenus pour cette étude sur la différence entre les teneurs en  $\text{NO}_x$  obtenues sans reburning ( $\text{NO}_{x\text{init}}$ ) avec un excès d'air de 5 % en sortie du brûleur (zone primaire) et celles obtenues lors du reburning au gaz naturel ( $\text{NO}_x$ ). Globalement, le reburning au gaz naturel réduit la teneur en  $\text{NO}_x$  dans les fumées, cette réduction pouvant atteindre 365 ppm (figure 3.6). L'ensemble des figures indique que l'augmentation du temps de séjour dans la zone de reburning et la diminution de la stœchiométrie dans cette zone réduisent les émissions de  $\text{NO}_x$ .

Une température de 1200 °C à l'entrée de la zone de reburning permet d'obtenir les meilleures réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  par rapport à celles obtenues pour les températures de 1300 et 1100 °C : nous obtenons une réduction maximale de 365 ppm comparée à 310 ppm pour une température de 1300 °C et à 280 ppm pour une température de 1100 °C (conditions opératoires : réglage 8, teneur initiale en  $\text{NO}_x = 551$  ppm, stœchiométrie de 0,88 et temps de séjour de 800-850 ms).

La réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  augmente avec la teneur initiale en  $\text{NO}_x$ . A titre d'exemple, dans le cas d'une température de 1200 °C à l'entrée de la zone de reburning, d'un temps de séjour de 800-850 ms et d'une stœchiométrie de 0,88 (figure 3.6), le réglage 8 ( $\text{ST1} = 0,8$ , teneur initiale en  $\text{NO}_x = 551$  ppm) permet lors du reburning d'obtenir 365 ppm de réduction de  $\text{NO}_x$  au lieu de 320 ppm pour le réglage 7 ( $\text{ST1}$  de 0,7, teneur initiale en  $\text{NO}_x$  de 488 ppm, figure 3.5) et de 200 ppm pour le réglage 6 ( $\text{ST1}$  de 0,6, teneur initiale en  $\text{NO}_x$  de 332 ppm, figure 3.4). On constate ce même comportement pour les deux autres températures.

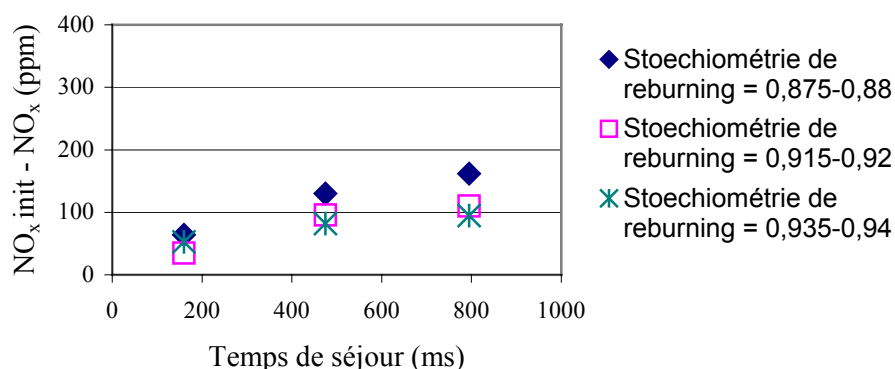


Figure 3.1 : Température de 1300 °C – Réglage 6 (teneur initiale en  $\text{NO}_x = 332$  ppm)

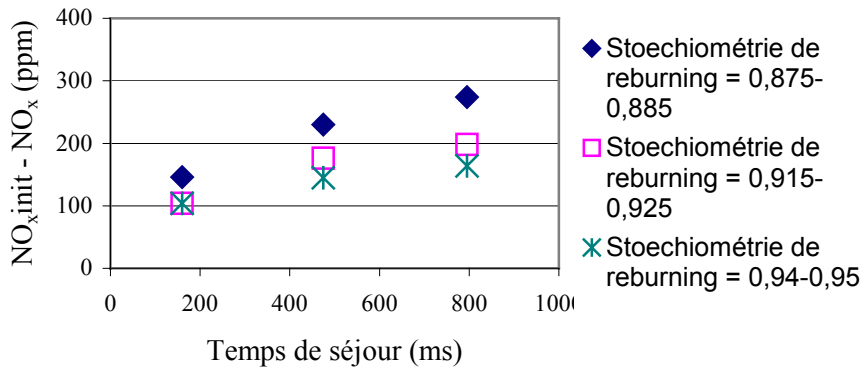


Figure 3.2 : Température de 1300 °C – Réglage 7 (teneur initiale en  $NO_x = 488$  ppm)

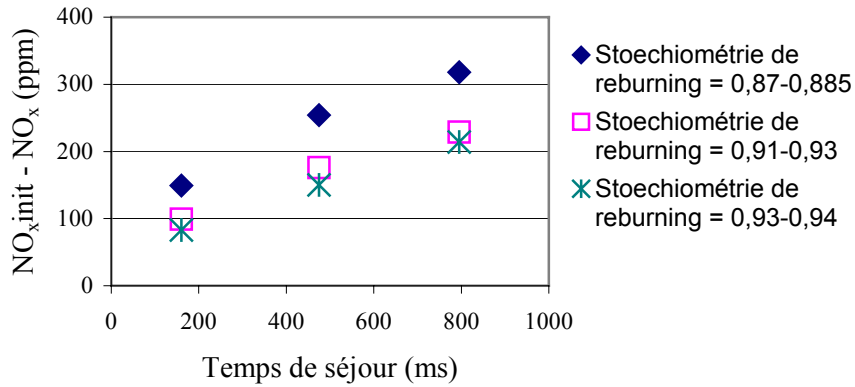


Figure 3.3 : Température de 1300 °C – Réglage 8 (teneur initiale en  $NO_x = 551$  ppm)

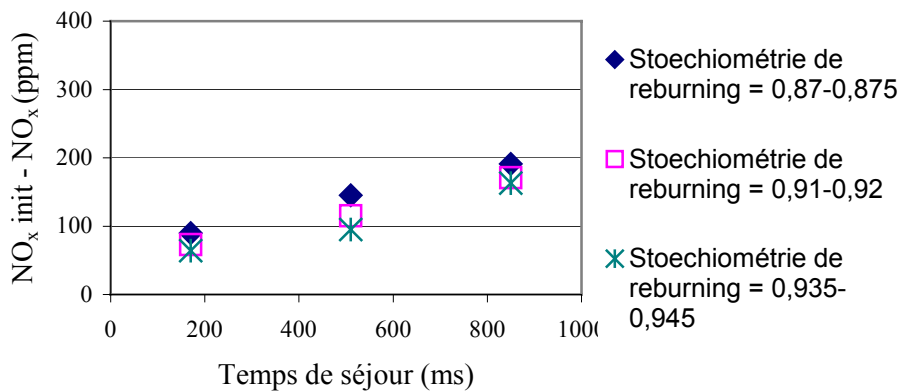


Figure 3.4 : Température de 1200 °C – Réglage 6 (teneur initiale en  $NO_x = 332$  ppm)

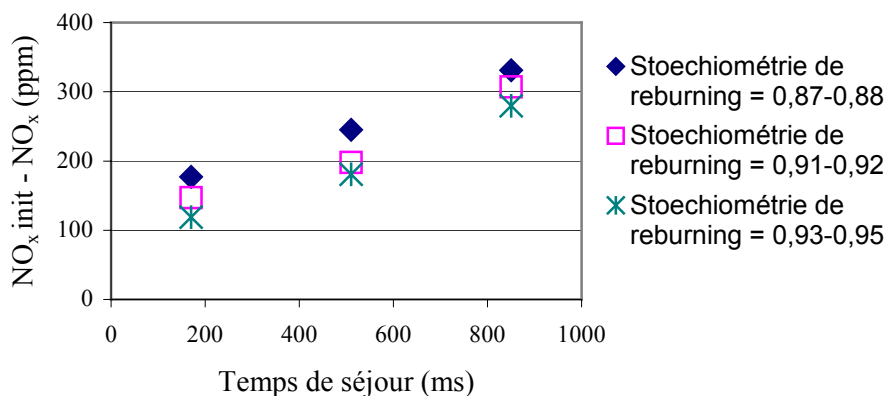


Figure 3.5 : Température de 1200 °C – Réglage 7 (teneur initiale en  $NO_x = 488$  ppm)

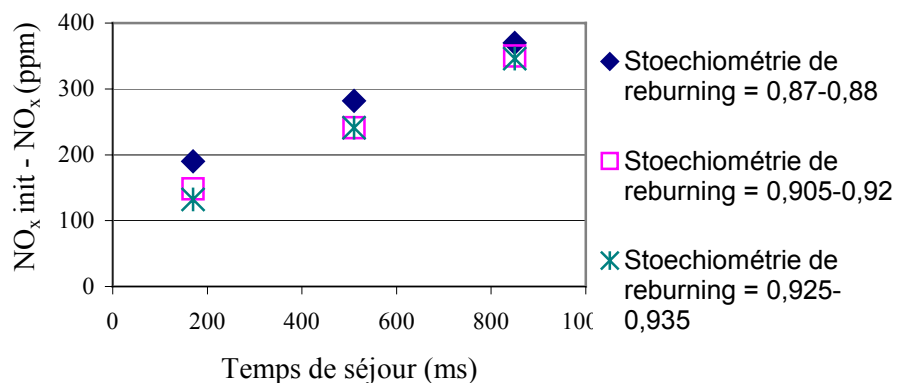


Figure 3.6 : Température de 1200 °C – Réglage 8 (teneur initiale en  $NO_x = 551$  ppm)

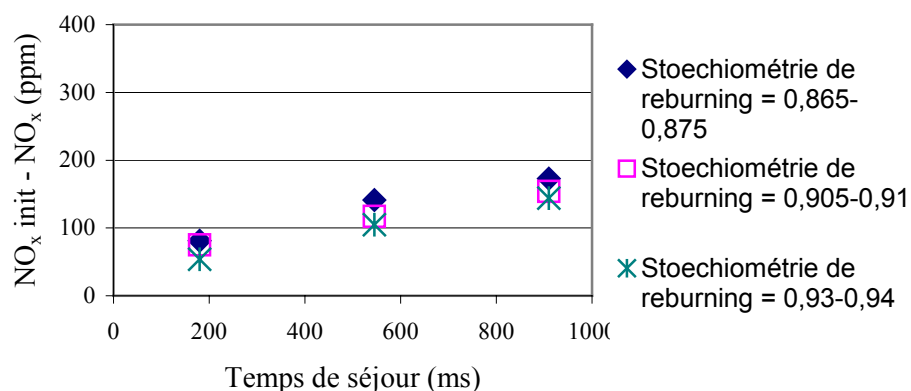


Figure 3.7 : Température de 1100 °C – Réglage 6 (teneur initiale en  $NO_x = 332$  ppm)

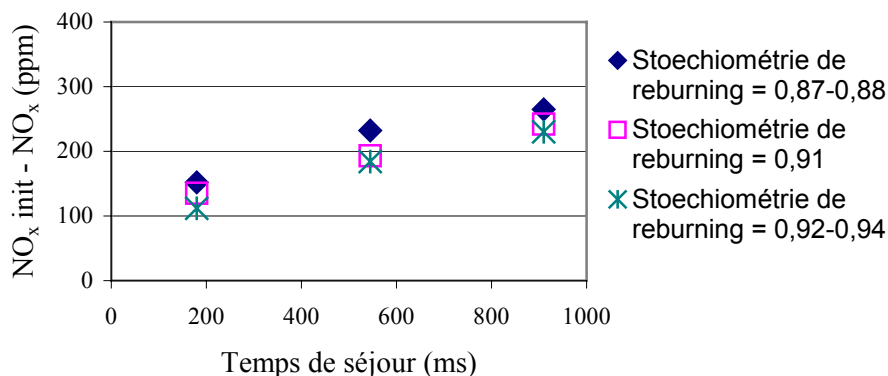


Figure 3.8 : Température de 1100 °C – Réglage 7 (teneur initiale en  $\text{NO}_x = 488$  ppm)

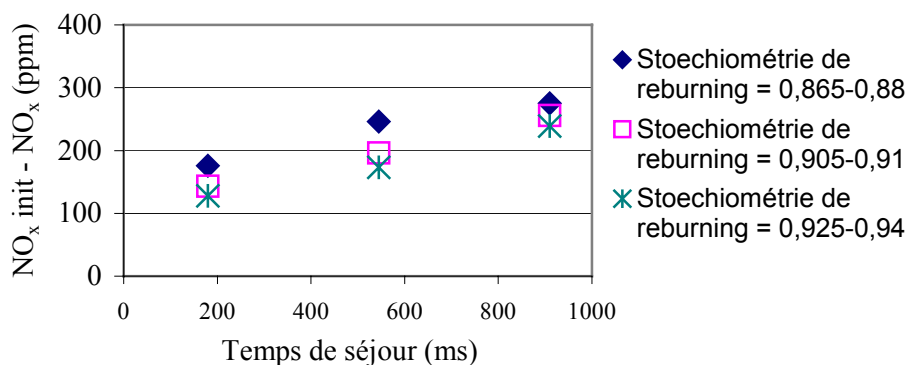


Figure 3.9 : Température de 1100 °C – Réglage 8 (teneur initiale en  $\text{NO}_x = 551$  ppm)

Bien que la réduction des  $\text{NO}_x$  en valeur absolue augmente fortement avec la teneur initiale en  $\text{NO}_x$ , il n'en est pas de même pour les réductions relatives  $(\text{NO}_x\text{init}-\text{NO}_x) / \text{NO}_x\text{init}$  (%). En effet, l'influence de ce paramètre est plus contrastée (figure 3.10). La tendance générale est à une augmentation légère entre 330 et 490 ppm, suivi d'une stabilisation voire d'une diminution de la réduction relative entre 490 et 550 ppm.

Comme pour les valeurs absolues, la température de 1200 °C permet d'obtenir de meilleures réductions relatives que celles obtenues avec les températures de 1100 et 1300 °C (figures 3.11 à 3.12). L'influence de la stoechiométrie de reburning et celle du temps de séjour sont par ailleurs les mêmes que pour les réductions en valeurs absolues (figures 3.10 à 3.12). Néanmoins, l'ensemble de ces comportements est complexe, ce qui peut s'expliquer non seulement par la concurrence entre la réduction des  $\text{NO}_x$  dans la zone secondaire et les réactions de formation des  $\text{NO}_x$  dans la zone de postcombustion mais également en fonction de l'influence des paramètres opératoires (teneur initiale en  $\text{NO}_x$ , température et stoechiométrie de reburning, temps de séjour) sur les écoulements à l'intérieur du four.

Les réductions les plus fortes (67-68 %) sont obtenues dans les conditions opératoires permettant les réductions les plus importantes des valeurs absolues : température de 1200 °C,

stœchiométrie de 0,87, temps de séjour de 850 ms et 490-550 ppm de teneur initiale en  $\text{NO}_x$ .

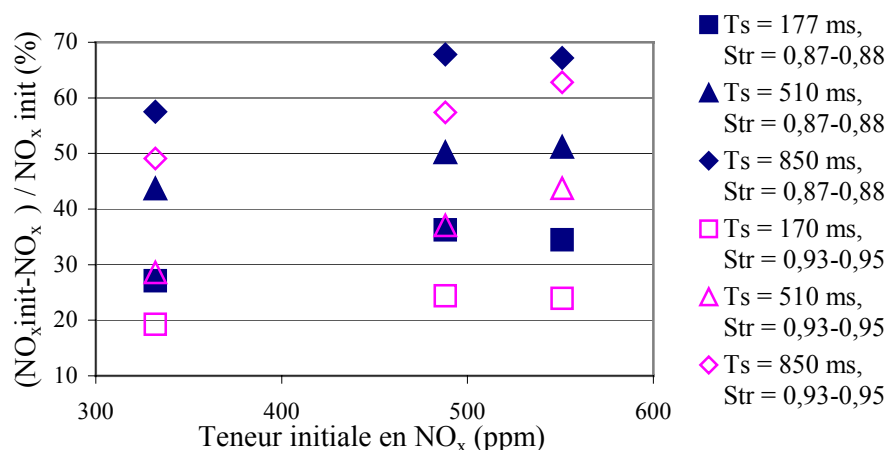


Figure 3.10 : Influence de la teneur initiale en  $\text{NO}_x$ , du temps de séjour ( $T_s$ ) dans la zone de reburning et de la stœchiométrie ( $Str$ ) dans cette même zone (température de reburning de  $1200^\circ\text{C}$ )

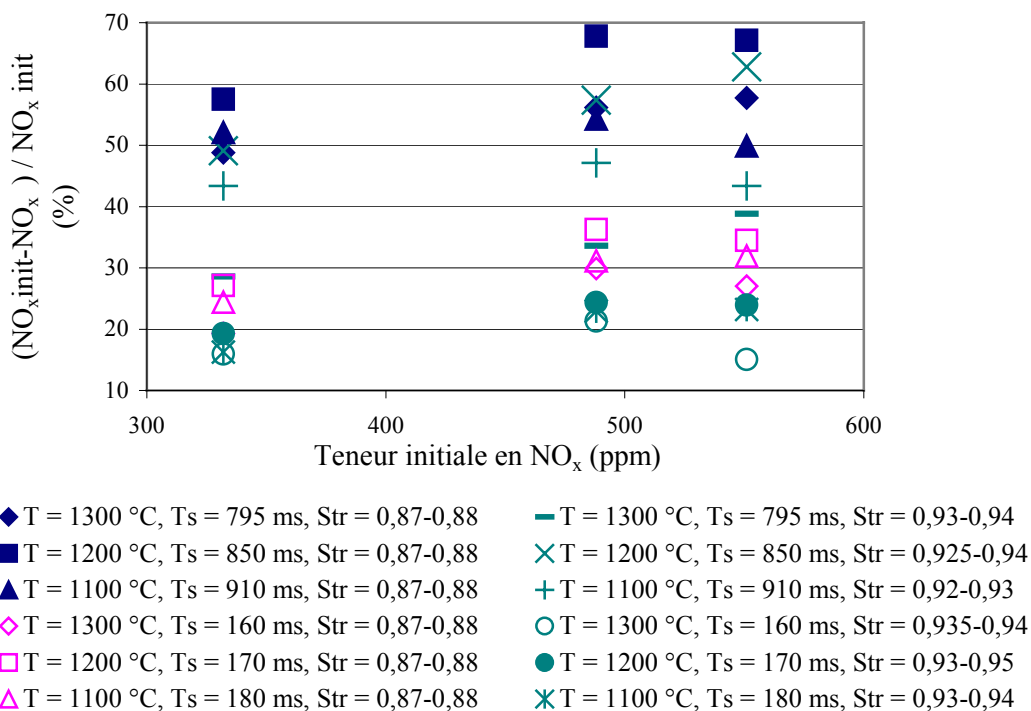


Figure 3.11: Influence de la teneur initiale en  $\text{NO}_x$ , de la température ( $T$ ) à l'entrée de la zone de reburning, du temps de séjour ( $T_s$ ) dans la zone de reburning et de la stœchiométrie ( $Str$ ) dans cette même zone

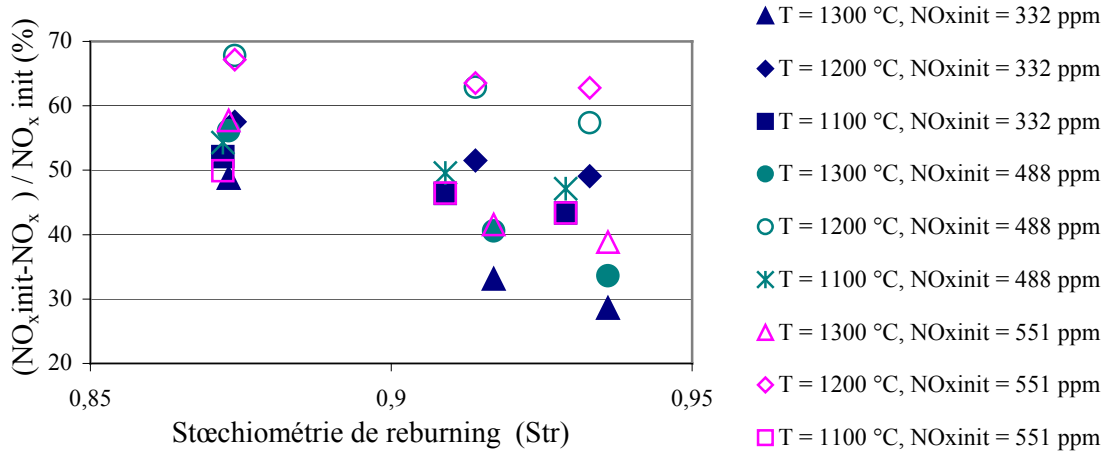


Figure 3.12: Influence de la stœchiométrie dans la zone de reburning ( $Str$ ), de la teneur initiale en  $NO_x$  ( $NO_{x,init}$ ) et de la température ( $T$ ) à l'entrée de cette même zone (temps de séjour de la zone de reburning de 850 ms)

## V-2 Modélisation

Dans les études de reburning sur les réacteurs de laboratoire, on peut s'approcher de la situation idéale (écoulement laminaire, zones de reburning et de postcombustion bien délimitées avec les temps de séjour respectifs et les stœchiométries bien définis). Il n'en est pas de même dans les installations de taille pilote et, a fortiori dans les installations industrielles, où les grandeurs nominales ne sont pas égales ni même proportionnelles aux grandeurs réelles moyennes en raison de la turbulence et de la présence de tourbillons macroscopiques. Malgré la complexité du procédé de reburning réalisé dans notre four pilote, on peut tenter une modélisation de la réduction des émissions de  $NO_x$  en admettant que la vitesse de réduction des  $NO_x$  peut être représentée par l'équation :

$$v = k c_{NO} (1 - Str) \quad (3.1)$$

où  $Str$  est la stœchiométrie nominale de reburning. Cette relation correspond à une réaction d'ordre 1 par rapport aux oxydes d'azote et d'ordre 1 par rapport aux espèces-réducteurs, en supposant que leur concentration moyenne est proportionnelle au défaut d'oxygène, représenté par la différence  $1 - Str$ .

En réalité, on doit modifier l'équation (3.1) en fonction de l'expérience, ce qui nous donne :

$$v = k c_{NO} (a - Str) \quad (3.2)$$

où la valeur de « a » tient compte de ce caractère approximatif de la stœchiométrie nominale de reburning. Si on remplace  $c_{NO}$  par  $X$ , la teneur en  $NO_x$  en ppm, et si on exprime la vitesse comme  $-dX/dt$ , l'équation (3.2) peut être transformée :

$$-dX/dt = k X (a - Str) \quad (3.3)$$

et

$$-\Delta X/\Delta t \approx k X_{moyen} (a - Str) \quad (3.4)$$



Avec  $-\Delta X = X^\circ - X$ , et  $X_{\text{moyen}} = (X^\circ + X)/2$ , on obtient une équation permettant de vérifier la validité de la relation (3.2) :

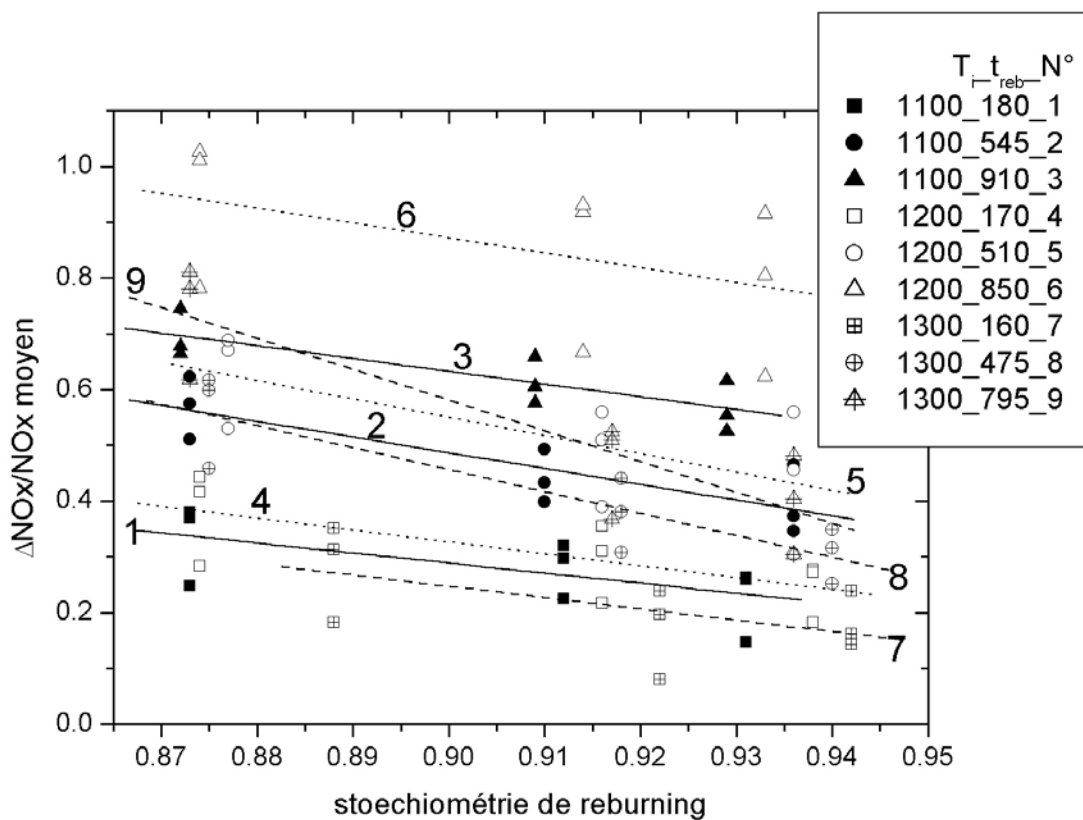
$$Y = 2(X^\circ - X)/(X^\circ + X) = k(a - \text{Str})\Delta t \quad (3.5)$$

Y doit être une fonction linéaire de la stœchiométrie de reburning Str et s'écrit :

$$Y = A + B.\text{Str} \quad (3.6)$$

avec  $A = k.a.\Delta t$  et  $|B| = k.\Delta t$

B serait une fonction de la température, proportionnelle au temps de séjour  $\Delta t$  dans la zone de reburning (tableau 3.4). La figure 3.13 représente la fonction Y pour différents temps de séjour et stœchiométries dans la zone de reburning ainsi que différentes températures à l'entrée de cette même zone.



Température	Temps de séjour (ms)	$\Delta t$	A	B	$a = \frac{A}{ B }$	$\frac{ B }{\Delta t}$	Coefficient de régression
1100°C	180		1,908	1,799	1,061	9,994	-0,631
1100°C	545		3,032	2,829	1,072	5,191	-0,84
1100°C	910		2,689	2,285	1,177	2,511	-0,831
1200°C	170		2,243	2,129	1,054	12,524	-0,698
1200°C	510		3,501	3,279	1,068	6,429	-0,69
1200°C	850		3,27	2,664	1,227	3,134	-0,485
1300°C	160		2,062	2,016	1,023	12,600	-0,567
1300°C	475		3,996	3,933	1,016	8,280	-0,881
1300°C	795		5,552	5,523	1,005	6,947	-0,882

Tableau 3.4 : Coefficients A et B, coefficient de régression et la constante  $a = A/|B|$  (équations 3.3 – 3.6), reburning au gaz naturel

Bien que les points obtenus pour chaque couple température à l'entrée de la zone de reburning et temps de séjour dans la zone de reburning semblent regroupés autour des droites descendantes, les résultats sont plutôt décevants. Les constantes B ne sont que faiblement corrélées avec les températures initiales de reburning et les temps de séjour nominaux. Les simplifications semblent en effet trop grossières.

Les résultats ultérieurs : cartographies des températures et concentrations dans le four (chapitre II de cette partie) ainsi que la modélisation du four (partie 6) montrent que la zone de reburning, comme d'ailleurs d'autres zones du four sont difficiles à définir à cause de la complexité des écoulements, les temps de séjour et les stœchiométries correspondants ne peuvent être bien représentés par les valeurs nominales. Comme nous le verrons plus tard, ce modèle fonctionne beaucoup mieux pour le reburning au charbon

### V-3 Réduction des émissions de NO<sub>x</sub> et efficacité de la combustion

L'application envisagée du reburning sur des installations industrielles fait qu'il est nécessaire de réduire l'excès d'air en sortie du brûleur (d'une valeur classique de 20 % à seulement 5%). Ce changement, nécessaire pour pouvoir créer une zone de reburning nominalement réductrice par injection d'un débit relativement faible de combustible de reburning, est déjà suffisant en soi pour modifier la composition des fumées (tableaux 2.6-2.9). Pour apprécier les conséquences du reburning, il est donc utile d'exprimer les réductions des émissions de NO<sub>x</sub>, les augmentations de celles de CO et les augmentations des teneurs en carbone des cendres, par rapport aux valeurs obtenues sur la même installation mais pour une flamme classique, avec un excès d'air de 20 % en sortie du brûleur. Pour s'approcher de la pratique industrielle, les teneurs en NO<sub>x</sub> et en CO seront exprimées respectivement en mgNO<sub>2</sub>.Nm<sup>-3</sup> et mgCO.Nm<sup>-3</sup> recalculés à 6 % d'O<sub>2</sub>. Les valeurs numériques et les figures qui se trouvent dans l'annexe 4 (tableaux A4.2 à A4.10, figures A4.11 à A4.19) permettent de mieux visualiser les tendances.

Les figures A4.11 à A4.13 montrent l'influence des paramètres retenus pour cette étude sur la réduction des émissions de NO<sub>x</sub>, exprimée de cette façon, confirmant la discussion détaillée des paragraphes précédents (V.1 et V.2). Les réductions des émissions de

NO<sub>x</sub> obtenues sont de l'ordre de 12 à 65 %, selon les réglages utilisés. La réduction maximale peut être obtenue pour les stœchiométries de reburning les plus faibles et les temps de séjour les plus élevés. Les meilleurs taux de dénitrification ont été obtenus pour une température de 1200 °C. Globalement, les teneurs finales en NO<sub>x</sub> ont varié de 250 à 320 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> selon la teneur initiale en NO<sub>x</sub> à l'entrée de la zone de reburning.

En contrepartie des réductions des émissions de NO<sub>x</sub>, la teneur en CO des fumées a malheureusement eu tendance à augmenter, jusqu'à 20 fois par rapport à une combustion classique sans reburning (figures A4.14 à A4.16). Cette réduction des émissions de NO<sub>x</sub> s'accompagne également d'une augmentation des imbrûlés solides dans les cendres volantes, en particulier pour la température initiale de 1300°C : jusqu'à 20 % de carbone de plus par rapport à une combustion classique sans reburning à 20 % d'excès d'air. Pour les températures de 1200 et de 1100 °C, les augmentations des imbrûlés solides sont relativement plus faibles : elles sont inférieures à 13 % abs par rapport à la combustion sans reburning à 20 % d'excès d'air. Ces variations sont représentées en valeurs absolues sur les figures A4.17 à A4.19.

L'augmentation du temps de séjour et la diminution de la stœchiométrie dans la zone de reburning, favorables à la réduction des émissions des NO<sub>x</sub>, entraînent un accroissement considérable de la teneur en CO des fumées, d'autant plus forte que la température à l'entrée de la zone de reburning est élevée.

Globalement, les conséquences du reburning, et en particulier la réduction des émissions de NO<sub>x</sub>, dépendent de façon complexe du temps de séjour nominal dans la zone de reburning, déterminé par la distance entre les couronnes de gaz naturel et d'air de postcombustion, de la stœchiométrie nominale dans la zone de reburning, fonction du débit de combustible de reburning, de la température initiale (selon la position de la couronne de gaz) et de la teneur en NO<sub>x</sub> initiale (réglage de flamme) à l'entrée de la zone de reburning. La complexité de l'hydrodynamique de notre installation oblige de tenir compte des conditions dans la zone de postcombustion et même dans le brûleur.

Pour obtenir une température à l'entrée de la zone de reburning proche de 1300 °C, l'injection du combustible de reburning doit être effectuée près du brûleur. La couronne d'injection du gaz naturel a ainsi été placée à 1 mètre seulement de l'ouverture de ce dernier. De la sorte, la combustion dans la zone primaire n'était pas terminée (le temps de séjour théorique dans cette zone est de 300 ms environ) ce qui a entraîné une augmentation très importante des imbrûlés solides. Vraisemblablement, la combustion du charbon et surtout du semi-coke n'a pas été achevée à cet endroit. Par l'injection du combustible de reburning, la teneur en oxygène se réduit brusquement et ralentit notamment ces réactions. Pour un temps de séjour faible dans la zone de reburning (100 à 200 ms), nous avons 4 à 14 % d'augmentation d'imbrûlés dans les cendres volantes par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air. Les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> se situent entre 12 à 24 %. L'augmentation du temps de séjour dans la zone de reburning entraîne une meilleure réduction des émissions de NO<sub>x</sub> (25 à 56 % de réduction) mais l'augmentation des imbrûlés solides passe de 6 à 20 % (annexe 4, tableaux A4.2 à A4.4). L'air de postcombustion est en effet injecté plus loin dans le four pour obtenir des temps de séjour plus longs et la température dans la zone de postcombustion devient trop faible pour terminer à la fois la combustion de la zone primaire et celle du gaz naturel injecté en complément pour le reburning. La combustion se dégrade lorsque le temps de séjour dans la zone de reburning augmente. Bien que la teneur en CO reste relativement constante dans le cas d'un ST1 de 0,7

et de 0,8, elle augmente cependant en fonction du temps de séjour pour un ST1 de 0,6 : pour un temps de séjour de la zone de reburning de 850 ms, elle varie de 400 à 700 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> selon la stœchiométrie de la zone de reburning (respectivement de 0,94 à 0,88). Cette influence de la stœchiométrie ST1 est probablement d'origine hydrodynamique.

Pour une température à l'entrée de la zone de reburning proche de 1200 °C, l'augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air est moins importante. Le temps de séjour dans la zone primaire est plus grand et la combustion est moins dégradée. Pour un temps de séjour dans la zone de reburning de 795 ms, l'augmentation des imbrûlés solides varie de 3 à 12 % (au lieu de 12 à 24 % pour une température de 1300 °C). En contrepartie, la teneur en CO augmente notamment en fonction du temps de séjour : nous obtenons une teneur en CO qui augmente jusqu'à des valeurs proches de 1400 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>. En effet, la température dans la zone de postcombustion diminue au fur et à mesure que la distance entre les couronnes augmente, de sorte que la combustion s'effectue dans des zones plus "froides". La combustion du gaz est donc incomplète. Les réductions des NO<sub>x</sub> sont néanmoins plus importantes et sont de l'ordre de 17 à 65 %, selon les réglages utilisés (annexe 4, tableaux A4.5 à A4.7).

Lorsque la température à l'entrée de la zone de reburning est proche de 1100 °C, l'augmentation des imbrûlés dans les cendres volantes est globalement équivalente à celle obtenue pour une température de 1200 °C. Néanmoins, la teneur en CO est très importante et s'accroît avec l'augmentation du temps de séjour et la baisse de la stœchiométrie de la zone de reburning : on atteint parfois des valeurs de 2700 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>. Cette température implique une injection tardive du combustible de reburning, la température dans la zone de postcombustion est encore plus faible que dans les cas précédents et la combustion du gaz est de plus en plus incomplète : tout le CO ne peut se transformer en CO<sub>2</sub>. Les réductions des NO<sub>x</sub> sont relativement un peu plus faibles que dans le cas précédent : nous atteignons 14 à 52 % de réduction (annexe 4, tableaux A4.8 à A4.10).

Quelque soit la température à l'entrée de la zone de reburning, l'augmentation du temps de séjour et la diminution de la stœchiométrie dans cette même zone améliore la réduction des émissions des NO<sub>x</sub> mais dégrade la combustion (teneur en CO considérable, augmentation des imbrûlés dans les cendres volantes par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air). Avec le procédé de reburning au gaz naturel, les émissions finales de NO<sub>x</sub> les plus faibles que nous avons pu obtenir sont 259 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> pour une faible teneur initiale en NO<sub>x</sub> et 326 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub> pour une teneur initiale en NO<sub>x</sub> élevée (température à l'entrée de la zone de reburning de l'ordre de 1200 °C, stœchiométrie et temps de séjour de la zone de reburning respectivement de 0,87 et de 820 ms). Néanmoins, parallèlement à cette réduction des oxydes d'azote, nous devons conserver un bon rendement de combustion. Il est en effet nécessaire de faire un compromis entre la réduction des émissions d'oxydes d'azote et la qualité de la combustion (teneur en CO et imbrûlés solides dans les cendres volantes). Pour les meilleures réductions des émissions d'oxydes d'azote, les taux de combustion correspondant varient entre 87 et 90. Le taux de combustion de l'installation pour une combustion classique sans reburning à 20 % d'excès d'air est de 92-93 %.

Si l'on s'intéresse à l'augmentation des imbrûlés dans les cendres volantes par rapport à une combustion à 5 % d'excès d'air, il est important de remarquer que l'application du reburning n'entraîne en réalité qu'une faible augmentation des imbrûlés solides voire même entraîne dans certain cas, une meilleure combustion suite à l'injection de l'air de

postcombustion. Pour des températures nominales à l'entrée de la zone de reburning de 1300, 1200 et 1100 °C, nous obtenons respectivement -7 à 9 %, -13 à 5,6 % et -12 à 3,62 % d'augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion sans reburning avec un excès d'air de 5 %. En effet, le tableau 2.8 dans le chapitre II, partie 2 nous montre bien que la réduction de l'excès d'air de la flamme de 20 à 5 % dégrade la combustion : les taux de combustion passent de 92-93 à 84-88 % et entraîne une formation supplémentaire d'imbrûlés dans les cendres volantes pouvant aller de 7 à 17 %.

#### V-4 Comparaison avec la bibliographie

Les résultats obtenus sur le four pilote ont été comparés à certains résultats de reburning au gaz naturel obtenus sur des installations de différentes tailles [41, 43, 45, 47, 52, 67] (figures 3.14 à 3.17). L'ensemble des figures permet de caractériser l'influence des paramètres retenus au cours de l'étude, notamment la teneur initiale en NO<sub>x</sub> exprimée en ppm à 6 % d'O<sub>2</sub>. Nos résultats ont été exprimés par rapport aux données obtenues sur le pilote pour une flamme classique à 20 % d'excès d'air.

Pour une température à l'entrée de la zone de reburning de 1200 et de 1100°C, les résultats obtenus dans cette étude sont relativement proches de ceux obtenus sur un pilote de 330 kW [67]. Néanmoins, la température de 1300 °C donne des résultats différents probablement en raison des parois froides du four pilote et de la proximité de l'injection du gaz naturel par rapport au brûleur bas-NO<sub>x</sub>. Avec un four de 3 MW, Overmoe *et al.* [43] obtiennent des réductions avoisinant nos résultats pour des températures plus élevées (1400 et 1500 °C). Il est toutefois possible de conclure que, mis à part nos résultats obtenus pour 1300 °C, les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> augmentent avec la température nominale à l'entrée de la zone de reburning, paramètre correspondant au lieu d'injection du combustible de reburning (figure 3.14). Overmoe *et al.* [43] ont conclu également que l'injection de ce combustible doit se faire très près du brûleur principal afin d'avoir une température nominale assez élevée tout en respectant un temps de séjour de la zone primaire suffisant afin de permettre la combustion du combustible principal.

Les résultats obtenus sur les réacteurs de laboratoire sont relativement constants à 80-90 % quelque soit la température alors qu'ils varient de 40 à 60 % en fonction de la température pour des installations de taille plus importante. La différence des résultats peut être due à la différence des écoulements. Bilbao *et al.* [45, 47, 52] ainsi que Mereb *et al.* [41] ont utilisé des réacteurs, respectivement à simulation de gaz de combustion et à pré-mélange, dont les écoulements sont laminaires. La température à l'entrée de la zone de reburning, la stœchiométrie et le temps de séjour dans cette même zone peuvent être considérés comme uniformes. Pour des pilotes de taille plus importante, les écoulements sont turbulents, et les paramètres comme la température d'entrée, la stœchiométrie et le temps de séjour pour la zone de reburning ont un caractère approximatif nominal. Par comparaison, nous obtenons un nombre de Reynolds compris entre 30000 et 40000 pour notre four alors qu'il est égal à 100 pour le réacteur de Bilbao. Autre différence notable est le brûleur utilisé : Mereb *et al.* [41] ont utilisé un brûleur dans lequel le combustible est pré-mélangé à l'air de combustion avant allumage alors qu'Hesselmann *et al.* [67] utilisent un four muni d'un brûleur à swirl permettant un mélange de l'air de combustion avec le combustible durant la combustion.

Overmoe *et al.* [43] ont souligné par ailleurs qu'il est impossible d'avoir les mêmes caractéristiques d'écoulement entre les différents systèmes expérimentaux. Ils ont cité l'exemple du temps de séjour qui équivalent entre deux installations ne permet pas d'obtenir le même nombre de Reynolds. Selon ces auteurs, la caractéristique principale du reburning est

l'injection du combustible. La meilleure comparaison entre deux installations peut être approchée si l'on respecte la similarité de l'injection.

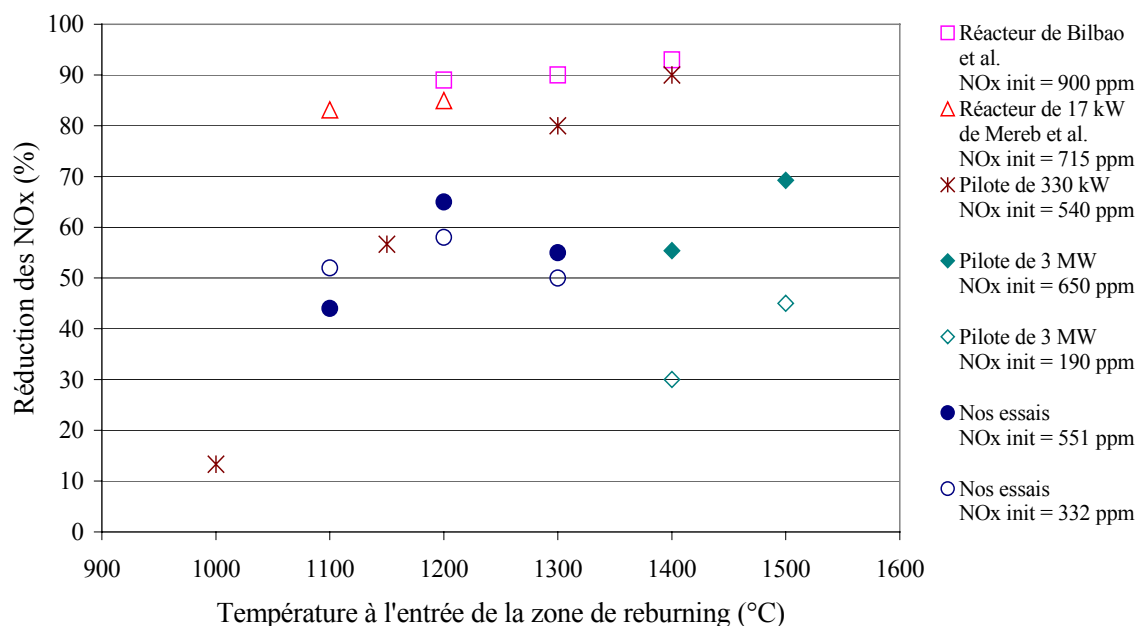


Figure 3.14 : Influence de la température à l'entrée de la zone de reburning ; comparaison de nos résultats obtenus pour une stœchiométrie de reburning ( $Str$ ) de 0,87, un temps de séjour ( $T_s$ ) de la zone de reburning de 900 ms et deux teneurs initiales en  $NO_x$  ( $NO_x$  init) avec ceux obtenus par :

- Bilbao et al. [45, 47, 52] ( $Str = 0,88$ ,  $T_s = 200$  ms) pour le reburning au gaz naturel sur un réacteur à simulation de gaz de combustion,
- Mereb et al. [41] ( $Str = 0,9$  et  $T_s = 900$  ms) pour le reburning au gaz naturel sur un réacteur de 17 kW équipée d'un brûleur à charbon/gaz pré-mélangé avec de l'air,
- Hesselmann et al. [67] ( $Str = 0,9$  et  $T_s = 900-1000$  ms) pour le reburning au gaz naturel sur un pilote de 330 kW équipé d'un brûleur à charbon,
- Overmoe et al. [43] ( $Str = 0,9$  et  $T_s = 400$  ms) pour le reburning au propane sur un pilote de 3 MW équipé d'un brûleur à charbon/gaz.

Hormis les résultats obtenus par Bilbao *et al.* [45, 47, 52], les réductions des émissions de  $NO_x$  augmentent quand la stœchiométrie de reburning diminue. Cependant, durant nos essais, nous avons recherché non seulement l'efficacité de dénitrification mais également l'efficacité énergétique de notre installation. Or, une stœchiométrie optimale de 0,9 permet de réduire efficacement les oxydes d'azote tout en conservant un bon rendement de combustion (figure 3.15).

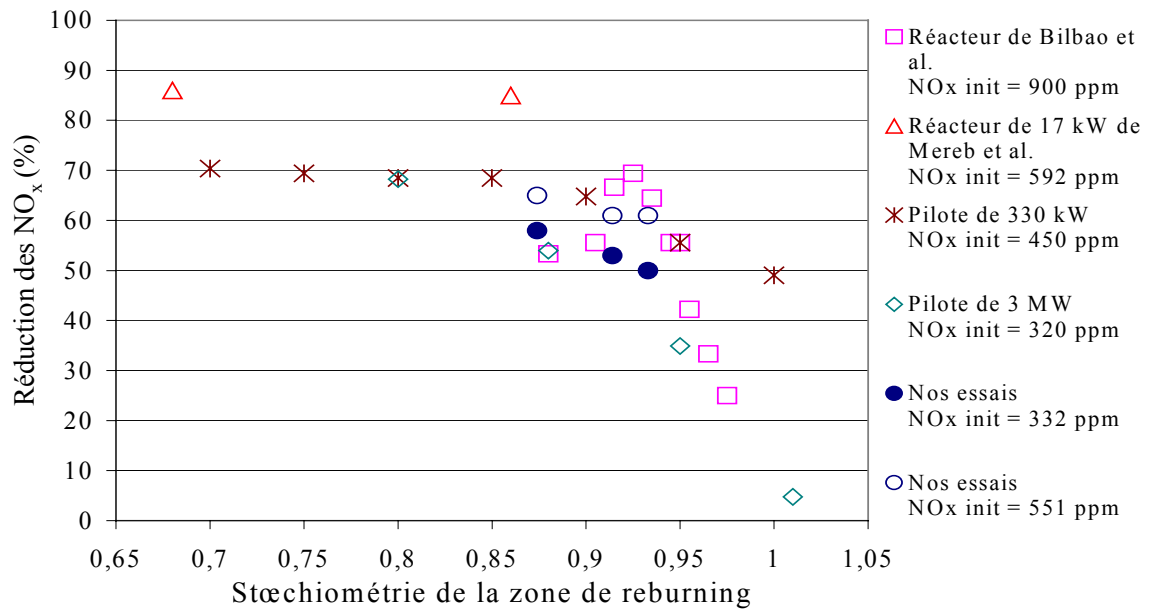


Figure 3.15 : Influence de la stœchiométrie de reburning ; comparaison de nos résultats obtenus pour une température de 1200 °C ( $T$ ), un temps de séjour ( $T_s$ ) de la zone de reburning de 900 ms et pour deux teneurs initiales en NO<sub>x</sub> ( $NO_x$  init) avec ceux obtenus par :

- Bilbao et al. [45, 47, 52] ( $T = 1100$  °C,  $T_s = 220$  ms) pour le reburning au gaz naturel sur un réacteur à simulation de gaz de combustion,
- Mereb et al. [41] ( $T = 1200$  °C et  $T_s = 900$  ms) pour le reburning au gaz naturel sur un réacteur de 17 kW équipée d'un brûleur à charbon/gaz pré-mélangé avec de l'air,
- Hesselmann et al. [67] ( $T = 1300$  °C et  $T_s = 900-1000$  ms) pour le reburning au gaz naturel sur un pilote de 330 kW équipé d'un brûleur à charbon,
- Overmoe et al. [43] ( $T = 1400$  °C et  $T_s = 400$  ms) pour le reburning au propane sur un pilote de 3 MW équipé d'un brûleur à charbon/gaz.

Par ailleurs, la tendance de nos essais confirme celle des autres résultats trouvés dans la bibliographie, à savoir que, plus le temps de séjour de la zone de reburning augmente, plus les réductions des émissions d'oxydes d'azote sont importantes (figure 3.16).

L'augmentation des teneurs initiales en NO<sub>x</sub> (teneurs à l'entrée de la zone de reburning) permet d'accentuer le pourcentage de réduction des NO<sub>x</sub>. Toutefois, sur certaines installations (réacteurs), ces réductions deviennent constantes pour des teneurs initiales en NO<sub>x</sub> très élevées (supérieures à 600 ppm). Ces résultats sont en accord avec nos résultats exprimés en pourcentage relatif (V.1).

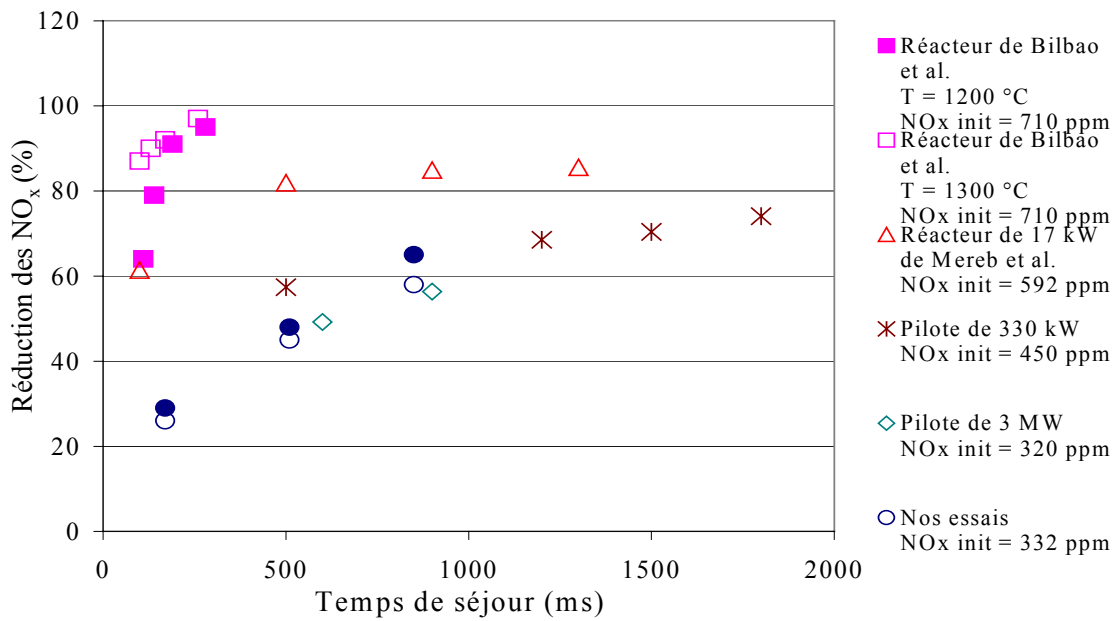


Figure 3.16 : Influence du temps de séjour de la zone de reburning ; comparaison de nos résultats obtenus pour une température de 1200 °C ( $T$ ), une stœchiométrie de reburning ( $Str$ ) de 0,874 et pour deux teneurs initiales en NO<sub>x</sub> (NO<sub>x</sub> init) avec ceux obtenus obtenus par :

- Bilbao et al. [45, 47, 52] ( $T = 1200$  et  $1300$  °C,  $Str = 0,88$ ) pour le reburning au gaz naturel sur un réacteur à simulation de gaz de combustion,
- Mereb et al. [41] ( $T = 1200$  °C et  $Str = 0,86$ ) pour le reburning au gaz naturel sur un réacteur de 17 kW équipée d'un brûleur à charbon/gaz pré-mélangé avec de l'air,
- Hesselmann et al. [67] ( $T = 1300$  °C et  $Str = 0,85$ ) pour le reburning au gaz naturel sur un pilote de 330 kW équipé d'un brûleur à charbon,
- Overmoe et al. [43] ( $T = 1400$  °C et  $Str = 0,9$ ) pour le reburning au propane sur un pilote de 3 MW équipé d'un brûleur à charbon/gaz.



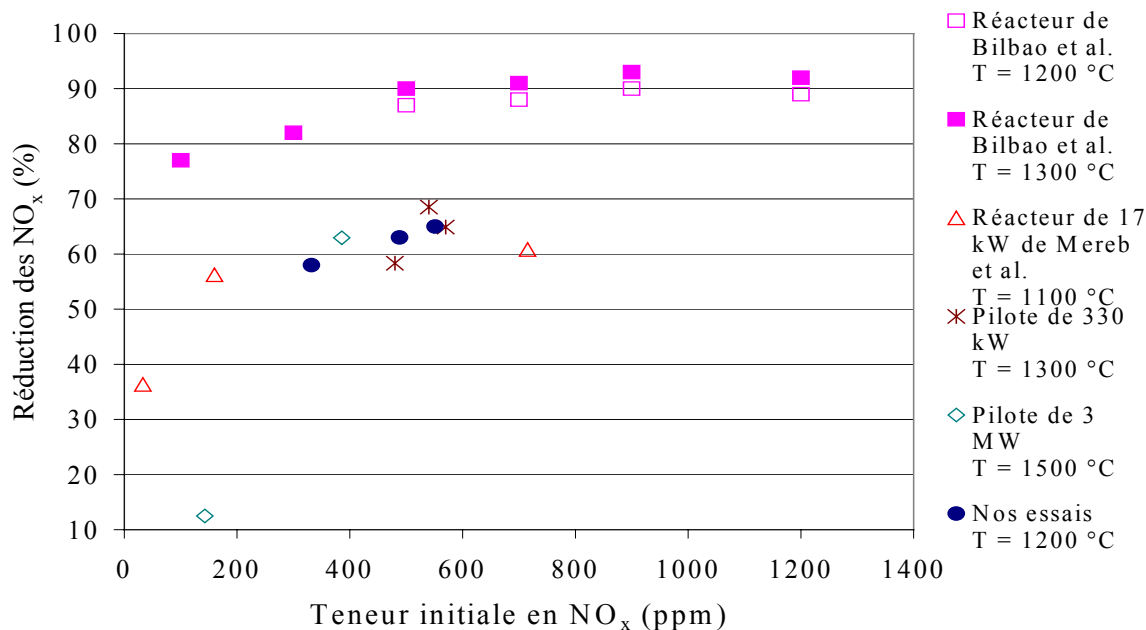


Figure 3.17 : Influence de la teneur initiale en NO<sub>x</sub> (ou NO<sub>x</sub> primaires) ; comparaison de nos résultats obtenus pour une température de 1200 °C (T), une stœchiométrie de reburning (Str) de 0,87 et un temps de séjour (Ts) de la zone de reburning de 900 ms avec ceux obtenus par :

- Bilbao et al. [45, 47, 52] (Ts = 200 ms, Str = 0,88) pour le reburning au gaz naturel sur un réacteur à simulation de gaz de combustion,
- Mereb et al. [41] (Ts = 900 ms et Str = 0,86) pour le reburning au gaz naturel sur un réacteur de 17 kW équipée d'un brûleur à charbon/gaz pré-mélangé avec de l'air,
- Hesselmann et al. [67] (Ts = 900 - 1000 ms et Str = 0,85) pour le reburning au gaz naturel sur un pilote de 330 kW équipé d'un brûleur à charbon,
- Overmoe et al. [43] (Ts = 600 ms et Str = 0,9) pour le reburning au propane sur un pilote de 3 MW équipé d'un brûleur à charbon/gaz.

## VI - Conclusion

Les expérimentations de reburning au gaz naturel sur le four pilote du CERCHAR ont permis de vérifier l'influence des paramètres opératoires du reburning choisi au cours de notre étude. Pour certaines valeurs de ces paramètres, nous avons obtenu des réductions des émissions de NO<sub>x</sub> supérieures à 60 %. Néanmoins, ces réductions entraînent une diminution de l'efficacité de combustion. La complexité à la fois de l'hydrodynamique des gaz de combustion dans notre four et de l'application du procédé de reburning sur cet outil rend difficile la comparaison des résultats avec d'autres installations et une modélisation trop simpliste du procédé. Afin d'entreprendre et de valider une modélisation plus détaillée du reburning, nous devons dans un premier temps obtenir un complément d'informations (températures concentrations de gaz) lors de l'application du reburning à notre installation.

## Chapitre II

# Cartographies de flammes à charbon pulvérisé lors du reburning au gaz naturel

### Introduction

Le réacteur utilisé dans cette étude étant un pilote industriel, donc de taille relative importante, on doit s'attendre à des complications dues à des hétérogénéités de concentrations de gaz et de températures.

L'étude paramétrique présentée auparavant n'est qu'une approximation permettant de connaître l'influence des paramètres opératoires globaux (distance entre les injections de gaz et d'air, débit de gaz naturel, réglages du brûleur et position de l'injection du gaz) sur la réduction des oxydes d'azote. Une vérification plus spécifique concernant l'évolution des espèces et des températures doit être faite à l'intérieur du four afin de mieux comprendre les phénomènes intervenant pendant le reburning. Pour cela, des cartographies de température et de concentration de gaz (NO, CO, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>) ont été réalisées afin de permettre une analyse plus poussée.

Les cartographies ont été réalisées dans les conditions expérimentales permettant d'obtenir les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> les plus élevées, présentées dans le tableau 3.5. Les détails expérimentaux sont donnés dans la Partie II. Dans tous les cas, le gaz naturel était injecté à 2 m de l'ouverture du brûleur, ce qui assurait une température nominale de 1200°C à l'entrée de la zone de reburning. L'injection de l'air de postcombustion intervenait 1,5 m (temps de séjour de 500 ms) ou 2,5 m plus loin en aval (900 ms).

Les mesures ont été faites radialement de 0 à 750 mm par rapport à l'axe. Les distances axiales sont données par rapport à l'ouverture du brûleur dans le plan horizontal. Les résultats sont regroupés en annexe 6 (tableaux A6.1 à A6.8) et présentés sur les figures 3.18 à 3.26.

	Cartographie 1	Cartographie 2	Cartographie 3	Cartographie 4
Température entrée zone de reburning (°C)	1200	1200	1200	1200
Réglage du brûleur	Réglage 8	Réglage 8	Réglage 8	Réglage 8
Stœchiométrie théorique de la zone de reburning	0.88	0.92	0.88	0.92
Temps de séjour dans la zone de reburning (ms)	900	900	500	500

Tableau 3.5 : Conditions des cartographies – reburning au gaz naturel

I - Résultats et discussions

I-1 Cartographie de concentrations

I-1-1 Cartographie 1

La cartographie 1 (figures 3.18 et 3.19) nous indique que, suite à l’injection du gaz naturel, la teneur en CO devient très importante pour ensuite se réduire brutalement dans la zone de reburning. La teneur en O<sub>2</sub> est fortement réduite (inférieure à 1 %) dans la zone de reburning sans toutefois atteindre la valeur zéro. Bien que la stœchiométrie théorique de la zone de reburning soit égale à 0,88, cette zone n’est donc pas en déficit d’oxygène. Cela peut être expliqué par la combustion incomplète dans la première zone attribuée aux parois froides du four. Le taux de combustion est limité à 90 % (tableau A4.7, annexe 4). Malgré cette teneur en oxygène résiduelle dans la zone de reburning, la réduction des émissions de NO<sub>x</sub> a été importante : nous sommes passés d’une concentration initiale en NO<sub>x</sub> de 550-500 ppm à une concentration inférieure à 200 ppm au cœur de la zone de reburning. Cette teneur reste presque constante malgré l’injection de l’air de postcombustion. Par ailleurs, la teneur en CO<sub>2</sub> qui était de l’ordre de 16 % à la sortie du brûleur est réduite à 13-14 % à l’entrée de la troisième zone.

De plus, nous remarquons que 2 m avant l’injection de l’air de postcombustion, la concentration en oxygène augmente jusqu’à l’entrée de la troisième zone. Ce phénomène perturbant les réactions dans la zone de reburning est lié à une re-circulation dans cette même zone, de l’air de postcombustion.

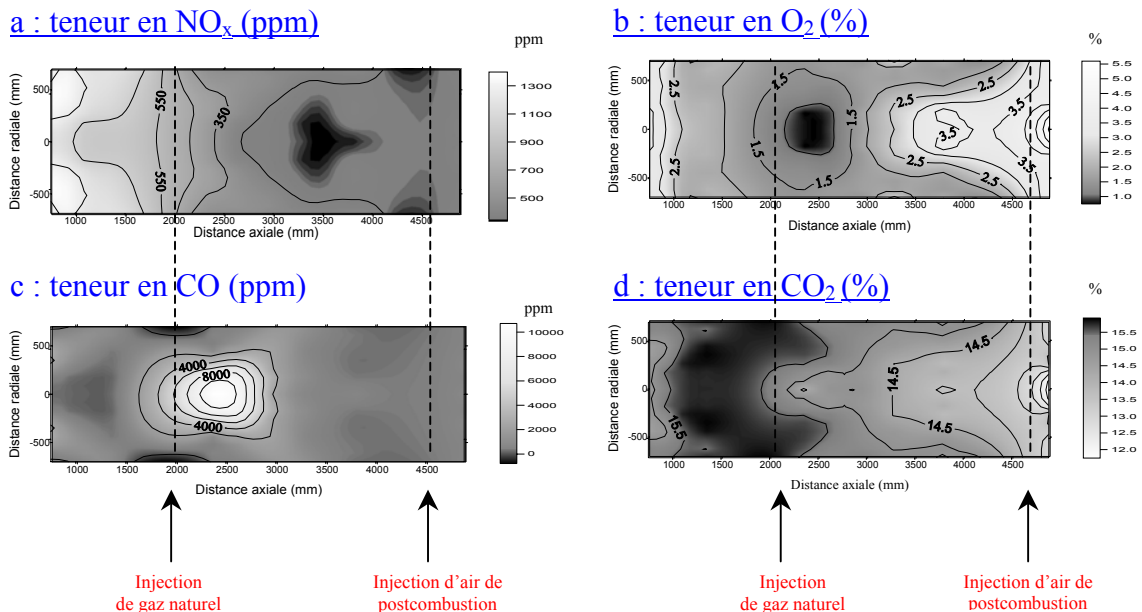


Figure 3.18 : Cartographie 1

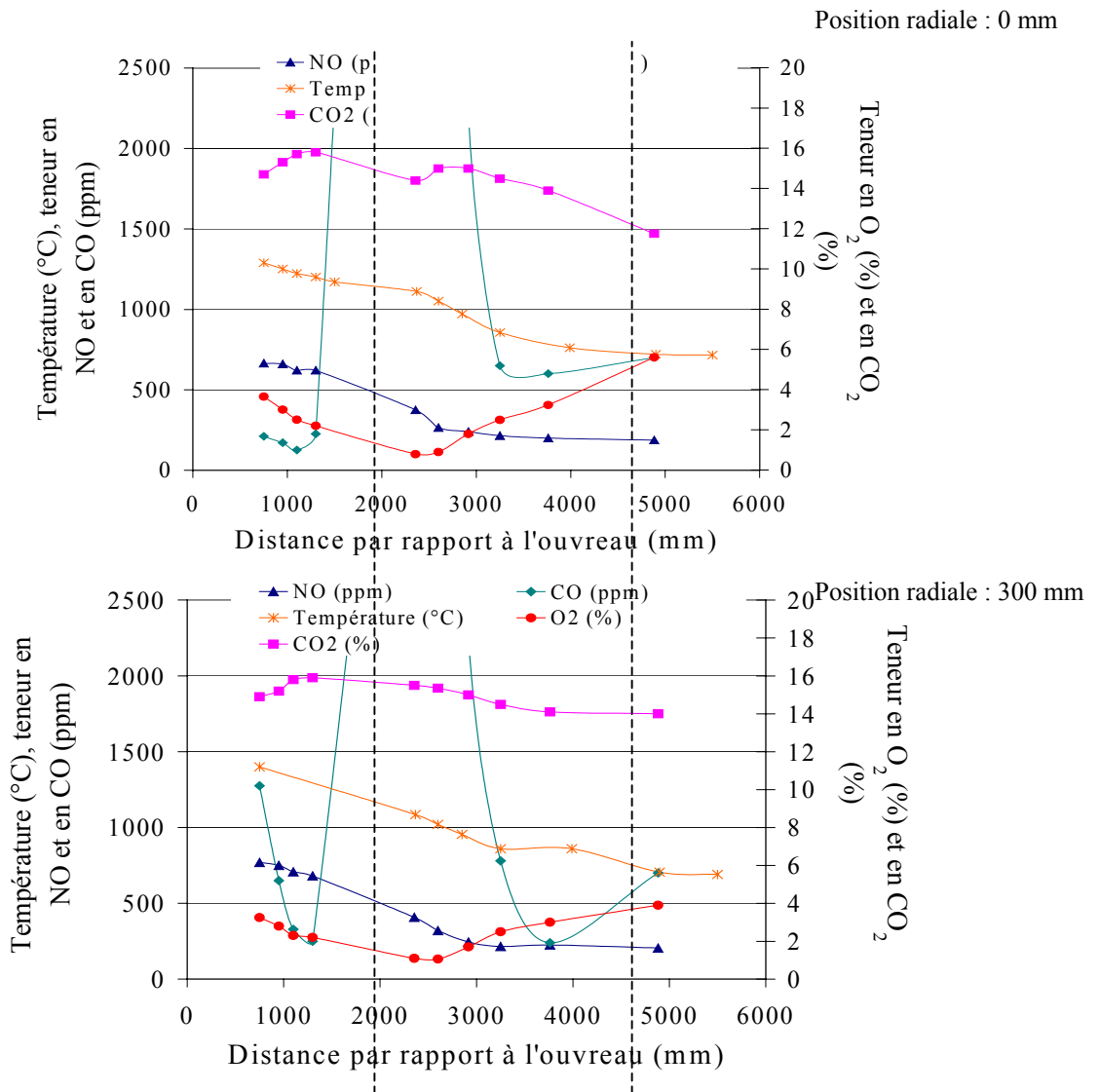


Figure 3.19 : Evolution des teneurs de gaz de combustion et de la température le long de l'axe du four (position radiale 0 et 300 mm) pour la cartographie 1

### I-1-2 Cartographie 2

La cartographie 2 (figures 3.20 et 3.21) a été obtenue pour une stœchiométrie de reburning plus élevée (0,92 au lieu de 0,88) en réduisant le débit du combustible de reburning (de 60 à 44 kg.h<sup>-1</sup>) et, par conséquent, celui de l'air de postcombustion (de 1222 à 1058 kg.h<sup>-1</sup>).

La réduction de la teneur en NO dans la zone de reburning a été un peu moins prononcée dans la zone de reburning, par rapport à la cartographie 1. Cette teneur reste constante dans la zone de postcombustion à une valeur légèrement supérieure à 200 ppm. Les évolutions des teneurs en CO, CO<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> ont été, à peu de choses près, similaires à la cartographie précédente. Le même phénomène de re-circulation de l'air observé pour la cartographie 1 perturbe également la zone de reburning, mais à une échelle moins importante, conséquence vraisemblable des débits moins élevés.

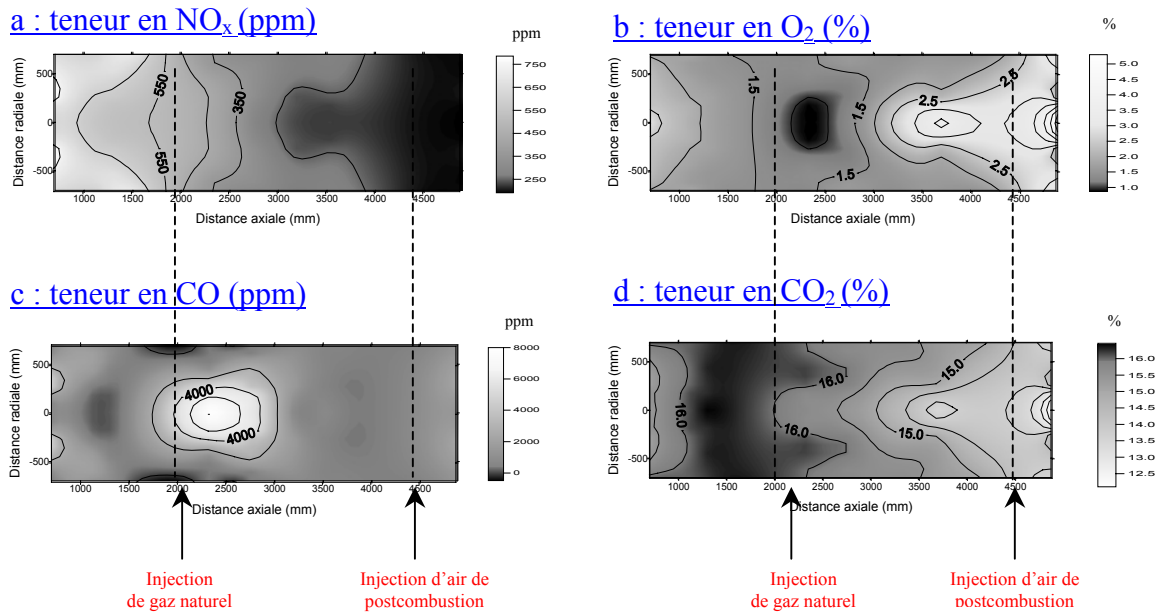


Figure 3.20 : Cartographie 2

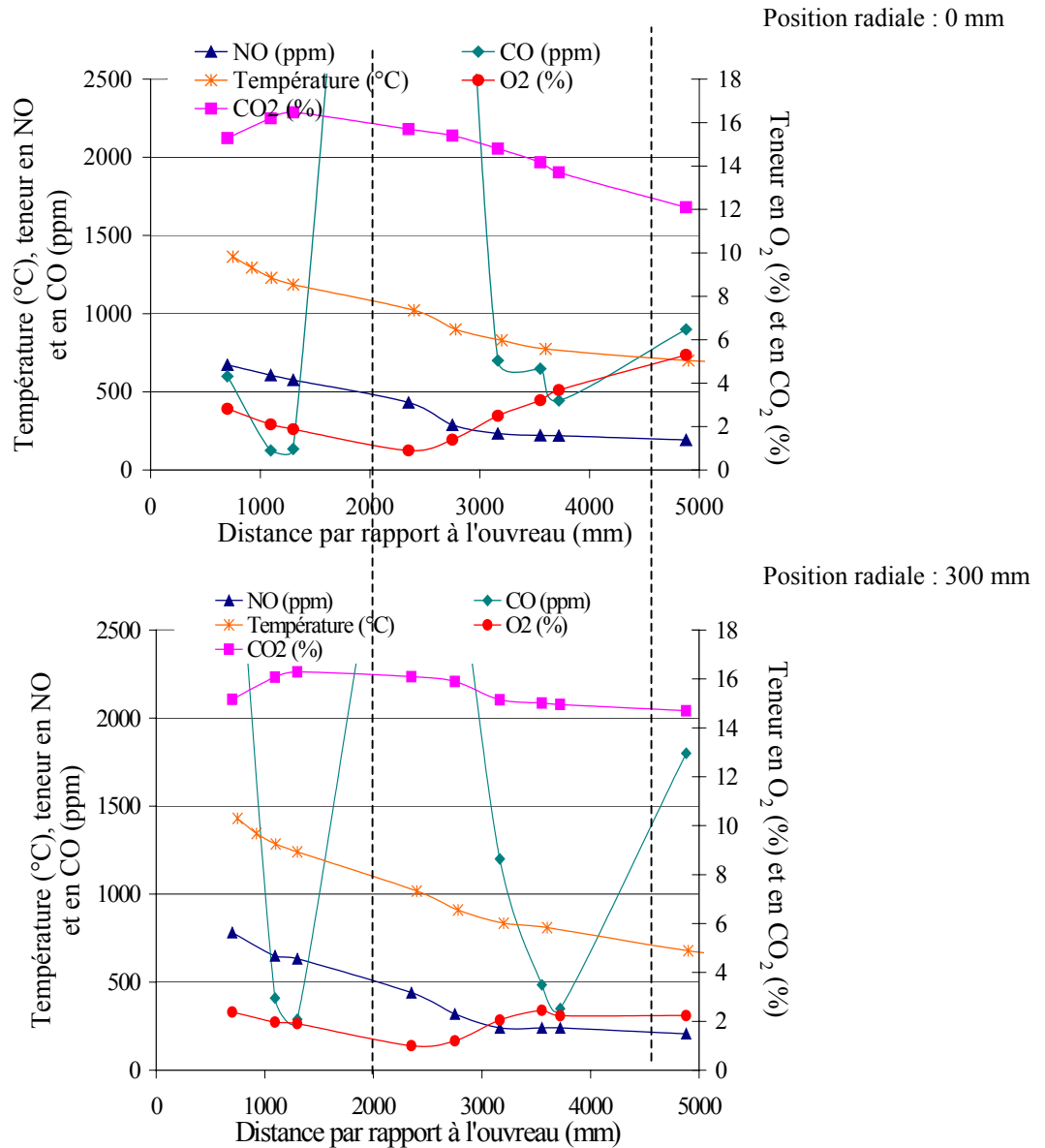


Figure 3.21 : Evolution des teneurs des gaz de combustion et de la température le long de l'axe du four (position radiale 0 et 300 mm) pour la cartographie 2

### I-1-3 Cartographie 3

La diminution du temps de séjour de 900 à 500 ms a été réalisée en déplaçant la couronne d'air plus près de celle du gaz. Avec les débits de gaz naturel et d'air de postcombustion élevés (respectivement  $58,5 \text{ kg.h}^{-1}$  et  $1200 \text{ kg.h}^{-1}$ ), cela a perturbé d'avantage les trois zones de combustion (figures 3.22 et 3.23)

La zone réductrice a été décalée vers la zone primaire : la teneur en  $\text{O}_2$  au centre du four était inférieure à 1 % déjà à 1,5 m du brûleur alors que le gaz naturel n'était injecté qu'à 2 m du brûleur. Elle était également inférieure à 1 % à proximité des parois dans la zone de reburning. Comme dans le cas des cartographies 1 et 2, on observe une augmentation de la teneur en  $\text{O}_2$  1,5 m environ avant le lieu d'injection de l'air de postcombustion.

Au centre du four (position radiale de 0 mm), la teneur en NO se réduit brutalement avant la fin de la zone primaire. Au voisinage des parois (position radiale de 300 mm), la réduction est moins prononcée (figure 3.23).

Bien qu'importante (valeur maximale de 2000 ppm environ), la teneur en CO n'atteint pas les valeurs enregistrées pour les cartographies 1 et 2.

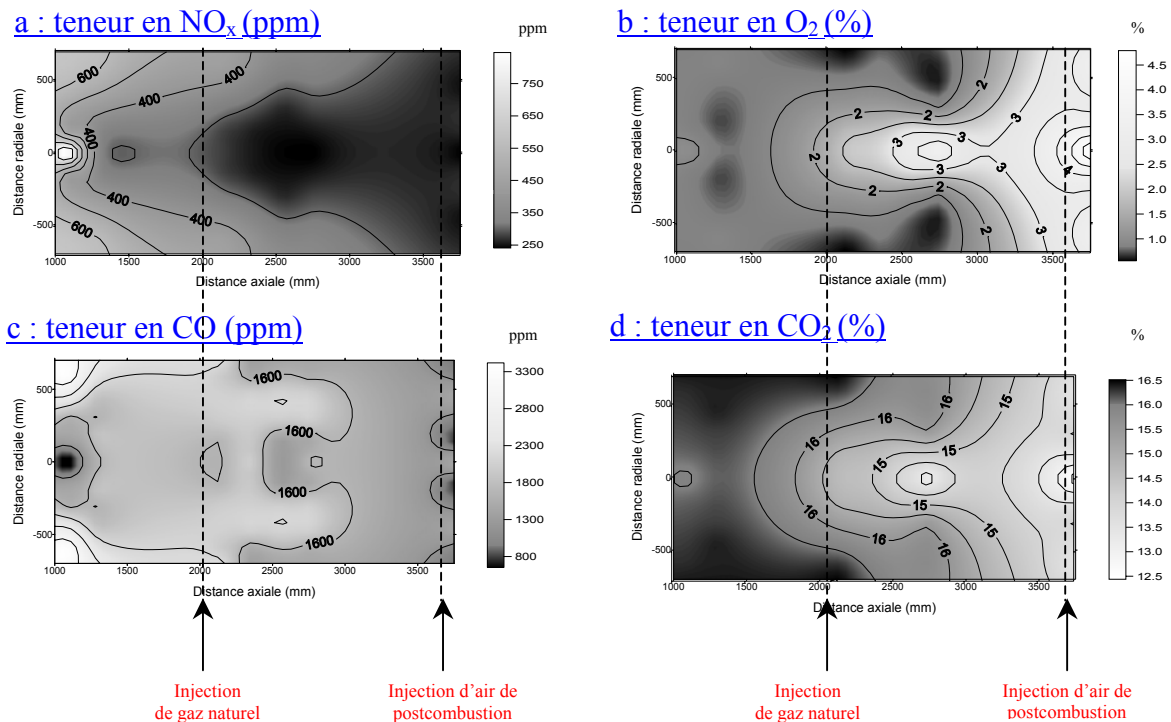


Figure 3.22 : Cartographie 3

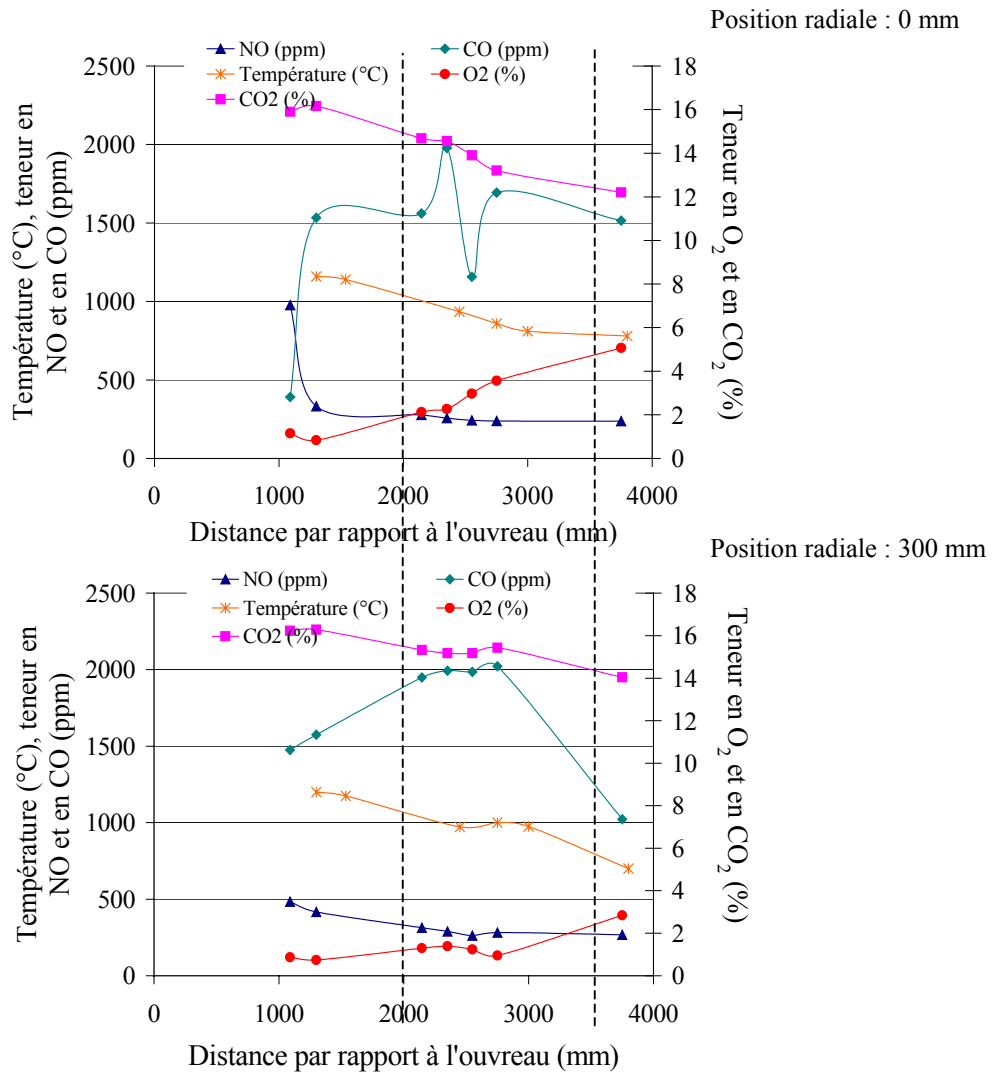


Figure 3.23 : Evolution des teneurs des gaz de combustion et de la température le long de l'axe du four (position radiale 0 et 300 mm) pour la cartographie 3

#### I-1-4 Cartographie 4

Comme dans le cas précédent, cette cartographie a été réalisée pour un temps de séjour de 500 ms. La stœchiométrie de reburning est cependant plus élevée (0,92 au lieu de 0,88), modification obtenue en réduisant le débit du combustible de reburning (figures 3.24 à 3.25).

La teneur en NO est réduite lentement pour atteindre une valeur proche de 300 ppm en sortie de la zone de postcombustion. Les évolutions des teneurs en CO, en O<sub>2</sub> et en CO<sub>2</sub> sont sensiblement identiques à celles enregistrées pour la cartographie précédente.

Pour une stœchiométrie de reburning plus grande (0,92 au lieu de 0,88), la réduction de la teneur en NO a été moins importante dans la zone de reburning.

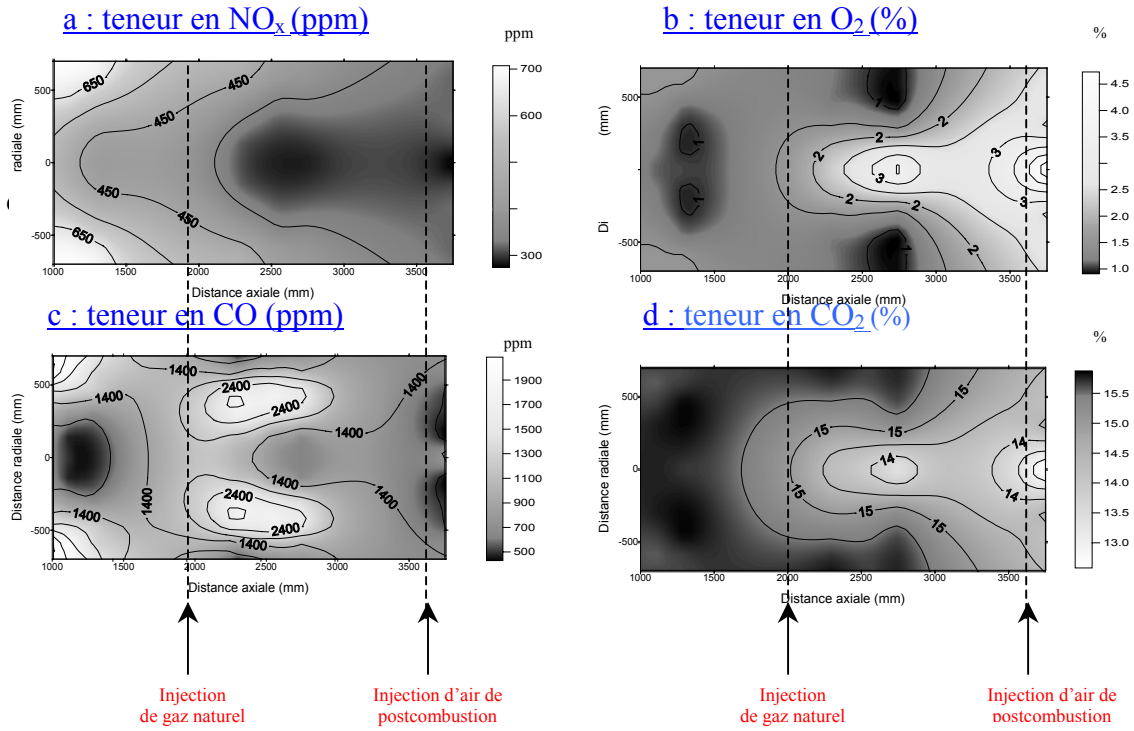


Figure 3.24 : Cartographie 4

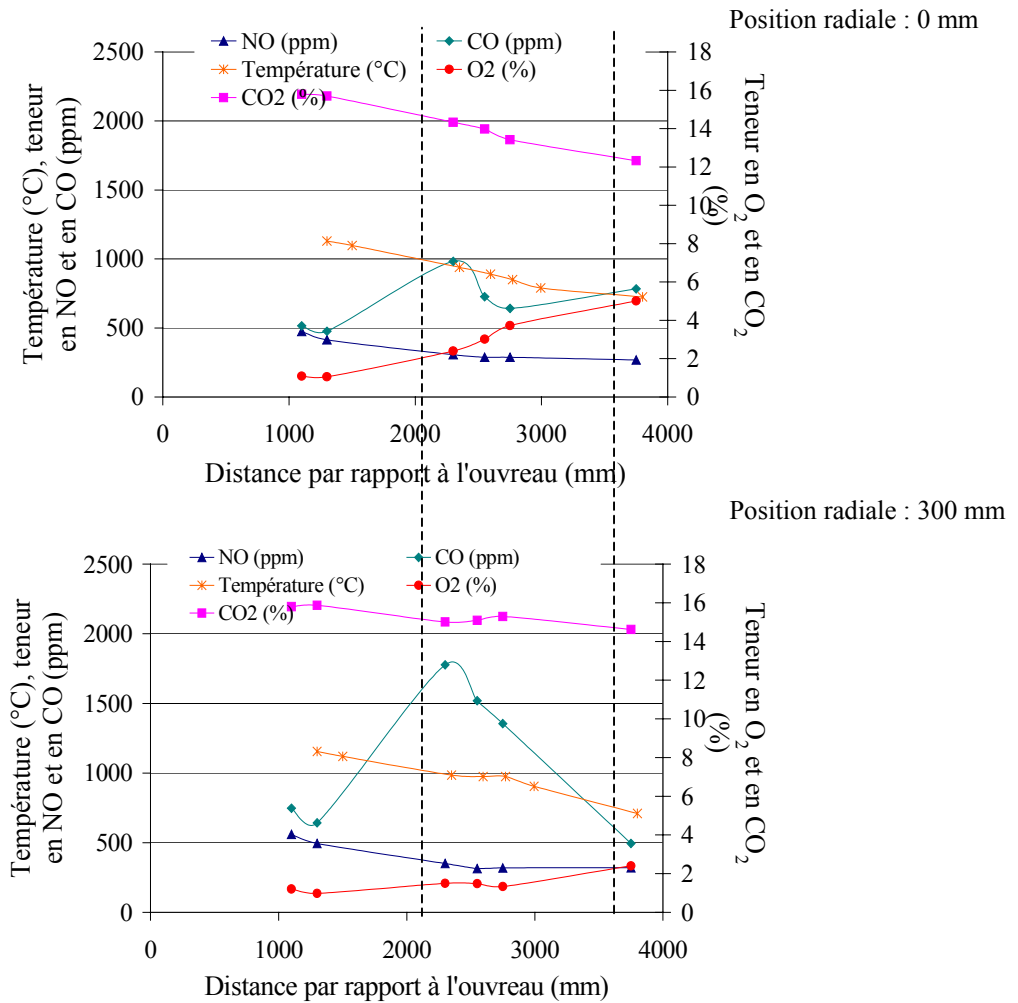


Figure 3.25 : Evolution des teneurs des gaz de combustion et de la température le long de l'axe du four (position radiale 0 et 300 mm) pour la cartographie 4



## I-2 Cartographies de température

Les cartographies 1 et 2 (figure 3.26a et 3.26b) indiquent que la diminution de la stœchiométrie de reburning de 0,92 à 0,88, c'est-à-dire l'augmentation du débit de combustible de reburning, n'a entraîné que peu de changement du champ de température. La température à l'entrée de la zone de reburning était proche de 1200°C (légèrement inférieure) conformément à nos réglages et celle à l'entrée de la zone de postcombustion à environ 700-800 °C. Vis à vis de ces cartographies, les figures 3.26c et 3.26d nous montrent que la diminution du temps de séjour de la zone de reburning de 900 à 500 ms, obtenue en rapprochant la couronne d'air de celle de gaz naturel, a modifié les températures dans les trois zones du four. En particulier, elles sont devenues plus froides par rapport aux essais 3.26a et 3.26b : la température à l'entrée de la zone de reburning était de l'ordre de 1000 - 1100 °C et celle à l'entrée de la zone de postcombustion de l'ordre de 600 - 700 °C. Les réactions des radicaux hydrocarbonés avec les oxydes d'azote se faisaient donc en moyenne à une température de 800 °C (figure 3.26c et 3.26d) au lieu de 900 - 1000 °C pour les cartographies 1 et 2.

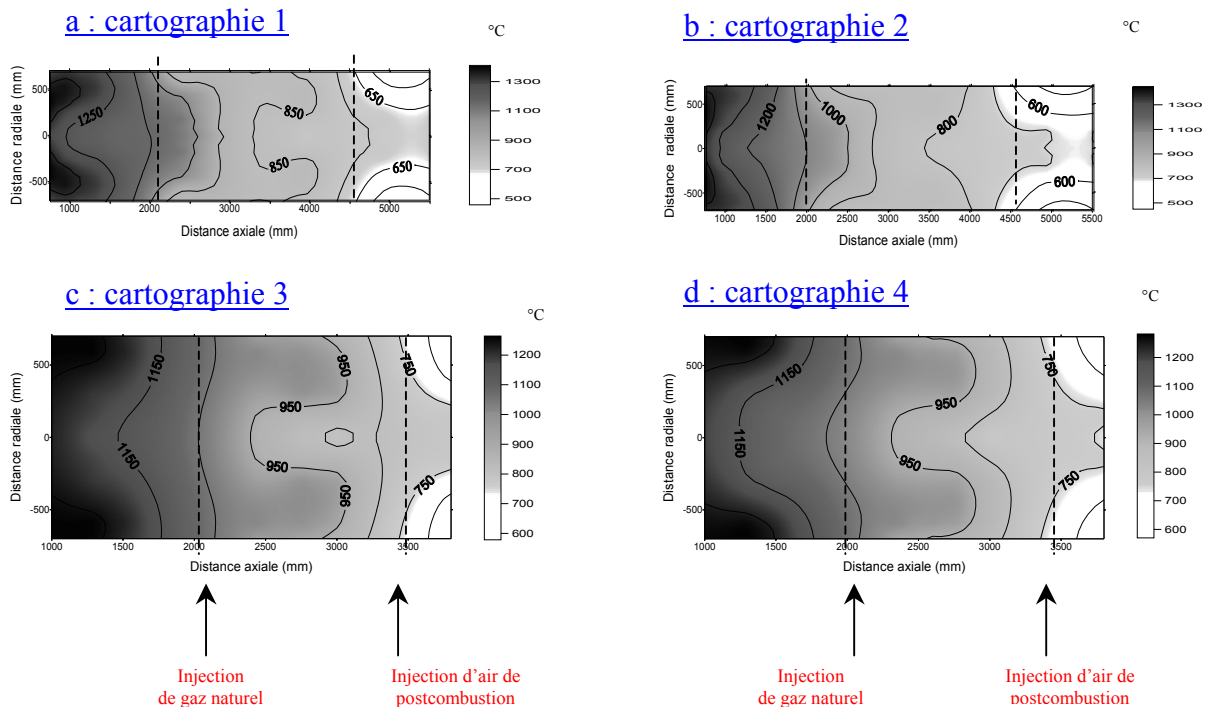


Figure 3.26 : Cartographies de température

## I-3- Conclusion

Globalement, ces quatre cartographies mettent nettement en évidence les caractéristiques des trois zones du procédé reburning, tel qu'il a été réalisé sur notre four pilote. L'injection du gaz naturel (combustible de reburning) diminue la teneur en O<sub>2</sub> aux valeurs inférieures à 1 %. La zone de reburning n'est donc pas vraiment réductrice, mais une réduction progressive des NO a lieu dans cette zone. C'est l'oxydation incomplète dans la première zone, manifeste par la formation d'imbrûlés solides et de CO qui explique une teneur en oxygène résiduelle dans la deuxième zone.

Une partie de l'air de postcombustion, injecté afin de terminer la combustion des imbrûlés, re-circule dans la zone de reburning. Cette re-circulation a été visible 1,5 m en amont de cette injection et a perturbé plus ou moins les réactions dans la zone de reburning selon la longueur de cette dernière.

Lorsque cette longueur a été de 2,5 m (le temps de séjour dans la zone de reburning de 900 ms), une zone appauvrie en oxygène (« zone réductrice ») a été formée au centre, suite à l'injection du combustible de reburning, permettant une importante réduction des oxydes d'azote (figures 3.18 à 3.21). La formation de CO augmente considérablement au point d'injection pour ensuite se réduire brutalement. Pour un temps de séjour plus faible (500 ms, longueur de la zone de reburning 1,5 m), la structure de la zone de reburning est fortement modifiée par la re-circulation : la zone réductrice plus courte débute au centre du foyer, à environ 1 m en amont de l'injection du gaz naturel, pour ensuite se localiser à proximité des parois (figures 3.22 à 3.25). La formation de CO suit l'injection du gaz naturel mais la teneur est trois fois moins importante que dans les cartographies 1 et 2 : nous obtenons un maximum de 2000 ppm au lieu de 10000.

Les cartographies nous indiquent également l'existence d'une re-circulation du gaz naturel dans la zone primaire mais ce phénomène est moins évident que pour l'air de postcombustion car le débit volumique du gaz naturel est pratiquement 10 fois plus faible que celui de l'air (débit molaire 11 – 13 plus faible que celui de l'air). Toutefois, pour des temps de séjour dans la zone de reburning de 500 ms, cette re-circulation du gaz naturel est plus remarquable. Suite à la re-circulation de l'air de postcombustion dans la zone de reburning, il est important de remarquer que le temps de séjour réel de la zone de reburning est inférieur au temps de séjour théorique.

Par ailleurs, il est important de remarquer que notre approximation, faite dans le chapitre II, partie 2, concernant la teneur initiale en  $\text{NO}_x$ , se vérifie dans le cas des cartographies 1 et 2. En effet, cette teneur varie entre 500 et 550 ppm alors que notre hypothèse était une teneur sensiblement égale à celle mesurée au carneau (547 ppm). Néanmoins, dans le cas des cartographies 3 et 4, les re-circulations conséquentes du gaz naturel et de l'air de postcombustion modifient la situation dans les trois zones de réaction.

Ces quatre cartographies de concentrations de gaz et de température ont permis d'expliquer en partie les résultats de l'étude paramétrique (chapitre I de cette partie) et de recueillir des données (teneurs des gaz et champs de température dans les trois zones de combustion) dans des conditions expérimentales permettant de réduire au maximum les émissions d'oxydes d'azote. Dans la suite de ce travail, ces données serviront à valider les modèles, proposés plus loin, du reburning sur notre installation.

## II – Comparaison avec des résultats de la bibliographie

Nazeer *et al.* [82] ont expérimenté le reburning au gaz naturel sur un réacteur délivrant 0,2 MW (240 cm de longueur et 76 cm de diamètre). Le combustible principal était du charbon à 4 % de cendres et à 49 % de matières volatiles. Les injections du gaz naturel comme combustible de reburning et de l'air de postcombustion sont axiales. Le temps de séjour dans le réacteur est de 700 ms. Ce réacteur est par ailleurs équipé d'un brûleur dont l'air de combustion est mis en rotation.

Les auteurs ont obtenu un maximum de 70 % de réduction des émissions de  $\text{NO}_x$ . Leurs résultats confirment nos essais paramétriques, à savoir que la réduction des  $\text{NO}_x$  est importante lorsque le temps de séjour dans la zone de reburning est grand et lorsque la stœchiométrie est faible (optimum pour des stœchiométries de reburning de 0,78 et de la zone de postcombustion de 1,15). Ils indiquent également, comme nous l'avons remarqué au cours de nos essais, que le lieu d'injection du gaz naturel ne doit pas être trop proche du brûleur car la formation des NO et la combustion dans la zone primaire ne sont pas complètes. De plus, le lieu d'injection de l'air de postcombustion doit permettre un temps de séjour dans la zone de reburning suffisant afin d'éviter que l'air de postcombustion ne soit trop proche de l'injection du gaz naturel et de la zone du brûleur. Une injection trop proche entraînerait une teneur en oxygène plus importante dans les deux premières zones, la zone de reburning ne serait plus réductrice. Selon Nazeer *et al.*, la réduction des NO et donc l'efficacité du reburning sont plus importantes lorsque la teneur initiale en  $\text{NO}_x$  est importante.

Nazeer *et al.* [82] ont effectué plusieurs cartographies de température et de concentrations gazeuses lors du reburning au gaz naturel, dans des conditions opératoires permettant d'obtenir le maximum de réduction des émissions de  $\text{NO}_x$ . L'injection du gaz naturel se fait à une température de 1200 °C. L'injection de l'air se fait à une température de 1000°C environ. Selon les auteurs, la re-circulation des grains de charbon dans la flamme principale entraîne une diminution de la quantité d'oxygène dans la zone primaire.

Contrairement à nos essais où nous avons une teneur en oxygène résiduelle dans la zone de reburning, l'injection du gaz naturel comme combustible de reburning dans le réacteur crée une zone de reburning, en grande partie totalement dépourvue d'oxygène (teneur en  $\text{O}_2$  de 0 %). La teneur en  $\text{O}_2$  re-augmente jusque 2 % peu avant le lieu d'injection de l'air de postcombustion. Une forte concentration de CO est alors observée en aval du point d'injection du gaz (du centre du réacteur jusqu'au niveau des parois). Selon les auteurs, cette présence de CO indique que la combustion est incomplète ou est en cours. Les taux de CO peuvent atteindre 4,5 %. Les poches de CO sont situées en aval des régions à fortes teneurs en  $\text{O}_2$  et en amont des régions à fortes teneurs en  $\text{CO}_2$ . Toutefois, la zone de reburning est mal définie en raison de l'injection axiale. Les fortes teneurs en CO au niveau des injecteurs suggèrent que l'injection ne permette pas un mélange adéquat mais le jet de combustible de reburning réagit rapidement. Suite à l'injection de gaz naturel, la teneur en NO passe de 300 ppm à 120 ppm, la teneur en  $\text{NH}_3$  devient par ailleurs très importante dans une région située peu après l'injection du gaz naturel (zone correspondant à une diminution de l'oxygène). La concentration en  $\text{CO}_2$  passe de 14 à 16 % dans la zone de reburning peu avant l'injection de l'air de postcombustion. Sans reburning, l'efficacité de combustion du charbon principal atteint 95 à 99 % dans les premiers centimètres en aval du brûleur. Lors du reburning, la combustion s'effectue à 95 % pour atteindre 99 % lors de l'injection de l'air de postcombustion, c'est à dire dans une zone éloignée du brûleur. Suite à l'injection du combustible de reburning, la température de la première zone augmente de 100°C environ, cela en raison d'une partie du gaz naturel qui est entraîné dans la première zone.

Mise à part la teneur en oxygène dans la zone de reburning, nos résultats sont similaires de ceux obtenus par Nazeer *et al.* [82]. La taille de l'outil expérimental de Nazeer (10 fois plus petite que celle de notre four) et l'injection axiale du combustible de reburning et de l'air de postcombustion (permettant une réaction rapide avec les gaz issus des zones amont) expliquent en partie ces différences.

## Conclusion

Le reburning avec du gaz naturel permet de réduire efficacement les oxydes d'azote. Les réductions obtenues varient selon les valeurs des conditions opératoires du reburning : nous obtenons au maximum 65 % de réduction des émissions de NO<sub>x</sub>. Bien que nous n'ayons pas étudié l'injection comme telle (calculs de débits et de distances), il nous apparaît cependant primordial d'injecter correctement le gaz naturel et l'air afin d'obtenir un mélange de qualité avec les gaz de combustion de ou des zones précédentes et ainsi de réduire efficacement les oxydes d'azote, tout en conservant un bon rendement de combustion (faibles teneurs en CO et en imbrûlés solides dans les cendres volantes).

Pour mieux comprendre cette réduction des émissions d'oxydes d'azote et la dégradation de la combustion qui intervient, des cartographies de concentrations de gaz et de température ont été effectuées. Elles ont permis d'avoir des informations plus précises sur l'évolution des concentrations de gaz et de température dans les différentes zones de combustion. Les différentes cartographies ont été réalisées dans les conditions expérimentales permettant d'obtenir les meilleures réductions de NO<sub>x</sub>.

Une première tentative de modélisation n'a pas permis d'obtenir des résultats satisfaisants ; nous devons dès lors nous intéresser à d'autres modélisations permettant de décrire au mieux les réductions des émissions de NO<sub>x</sub>. Les cartographies seront utilisées pour valider cette modélisation du procédé reburning appliqué au four.

Bien que ce procédé ait déjà fait l'objet de nombreuses recherches à travers le monde, notre étude avec le gaz naturel permet cependant d'obtenir un complément d'informations (rapport d'échelle) en expérimentant le reburning sur un pilote muni d'un brûleur de centrale. Par ailleurs, elle permet de comparer nos résultats avec ceux issus de la littérature (essais paramétriques et cartographies) et de conclure que les quatre paramètres d'étude ont la même influence.

La partie suivante porte sur l'utilisation du charbon comme combustible de reburning. En effet, le reburning avec du charbon, beaucoup moins étudié, peut s'avérer plus intéressant pour certaines installations de combustion (emploi du charbon comme unique ressource énergétique, réserves importantes de charbon, prix plus stables...). Les résultats obtenus avec le charbon seront comparés à ceux obtenus avec le gaz naturel. Le type de combustible de reburning deviendra le 5<sup>ème</sup> paramètre d'étude.



## **PARTIE 4**

# **REBURNING AU CHARBON**



# Chapitre I

## Essais paramétriques du reburning au charbon

### Introduction

Comme dans le cas des expérimentations du reburning au gaz naturel, les paramètres étudiés lors de ces essais de reburning au charbon sont la température et la teneur en  $\text{NO}_x$  à l'entrée de la zone de reburning, ainsi que le temps de séjour et la stœchiométrie dans la zone de reburning (grandeurs nominales). Un nouveau paramètre pris en considération au cours de ces essais sera la nature du charbon utilisé comme combustible de reburning (quatre charbons étudiés) afin de déterminer l'influence éventuelle des caractéristiques de ce combustible (en particulier la teneur en azote et l'indice de matières volatiles du charbon, voir tableau 2.1, partie 2) sur le rendement de la dénitrification par le reburning.

L'inclusion dans notre étude de ce nouveau paramètre nous a obligé à réduire le nombre de valeurs des autres paramètres. Les expérimentations avec du gaz naturel comme combustible de reburning nous ont permis de sélectionner les valeurs les plus intéressantes.

Notre objectif est d'obtenir des réductions importantes des émissions des oxydes d'azote tout en conservant une bonne efficacité de combustion. Or, les teneurs en CO très importantes, obtenues lorsque la température à l'entrée de la zone de reburning était de  $1100^\circ\text{C}$ , nous ont incitées à n'étudier que les températures de  $1300$  et de  $1200^\circ\text{C}$ . Egalement, les temps de séjour les plus courts dans la zone de reburning (inférieurs à  $200$  ms) avaient peu d'effets sur les émissions de  $\text{NO}_x$  lors des expérimentations au gaz naturel et nous avons pensé que cette tendance se renforcerait avec les charbons. Deux valeurs du temps de séjour seront étudiées :  $600$  et  $900$  ms (variation obtenue en modifiant la distance entre les points d'injection du combustible de reburning et de l'air de postcombustion). La stœchiométrie de la zone de reburning variera en fonction du débit de charbon injecté comme combustible de reburning : le combustible de reburning fournira  $10$  à  $20\%$  de la charge thermique totale du four ce qui correspond à l'intervalle de la stœchiométrie nominale de  $0,8$  à  $0,95$ . Enfin, nous étudierons deux réglages différents du brûleur permettant d'obtenir deux taux initiaux de  $\text{NO}_x$  à l'entrée de la zone de reburning.



Lors de la mise en route du reburning, les paramètres constants sont l'excès d'air en sortie du brûleur fixé à 5 % et l'excès dans la zone de postcombustion fixé à 15 %. Nous avons de plus choisi de fixer le nombre de swirl à 1 mais les réglages « grossiers » du brûleur entraînent une légère variation de la valeur de ce nombre autour de 1. Par ailleurs, la température de l'air de combustion, réglée par un réchauffeur d'air, doit être ajustée régulièrement au cours des expérimentations. Sa valeur, préalablement choisie constante à 150 °C (chapitre II, partie 2), varie sensiblement de 0 à + 30 °C.

## I - Réglages des flammes de référence

Avant de procéder à chaque série d'essais de reburning au charbon, nous avons réglé la flamme du brûleur comme explicité dans les tableaux 2.7 et 2.9 avec comme combustible principal, le charbon français 2 (tableau 2.1, partie 2) : réglages 4 et 5 dans un premier temps (flammes de référence avec un excès d'air de 20 %) puis réglages 9 et 10 (flammes à excès d'air réduit à 5 %). Les différents débits, le nombre de swirl, la température de l'air de combustion et la composition des fumées avant la mise en route du reburning sont regroupés dans les tableaux 4.1 à 4.4.

Les stœchiométries ST1 et primaire indiquées comme « théoriques » dans les tableaux 4.1 à 4.4 ont été calculées en fonction de l'excès d'air et du débit de charbon principal. Or, ces stœchiométries ne correspondent pas à la réalité ; le four pilote du CERCHAR est en effet un four « à parois froides » générant une partie importante d'imbrûlés solides. Comme le taux de combustion est inférieur à 100%, les teneurs en oxygène mesurées dans le carneau sont supérieures à celles calculées pour les excès d'air prévus. Cette situation mettait en doute la possibilité de créer une zone de reburning réductrice, car l'excès d'oxygène constaté dans le carneau serait également présent à la sortie de la zone primaire – entrée dans la zone de reburning. Nous avons donc ajusté les airs de combustion (air II et III) pour avoir une teneur en oxygène au carneau correspondant à un excès d'air réel en sortie du brûleur de 20 % (cas des réglages 4 et 5) et de 5 % (cas des réglages 9 et 10). Les stœchiométries recalculées après cet ajustement sont indiquées dans les tableaux comme stœchiométries ST1 et primaire réelles.

Quelque soit l'excès d'air en sortie du brûleur, pour une stœchiométrie ST1 constante, les teneurs en NO<sub>x</sub> (en ppm) restent très proches. En effet, la modification du ST1 entraîne un changement de la combustion au sein du brûleur et modifie la formation de NO<sub>x</sub>. Néanmoins, la diminution de l'excès d'air en sortie du brûleur qui se traduit par la réduction du débit d'air III entraîne un refroidissement de la flamme et agit peu sur la formation de NO<sub>x</sub>. Par contre, la réduction de l'excès d'air (pour un ST1 constant) entraîne une augmentation des teneurs en CO. Cela se vérifie notamment pour un ST1 théorique de 0,6. Par ailleurs, les teneurs en imbrûlés solides dans les cendres volantes augmentent de 15 à 20 % en variant l'excès d'air de 20 à 5 %. Dans ces mêmes conditions, les taux de combustion (définis en annexe 3) diminuent de 6 voire 10 %. Avec l'ajustement des airs de combustion en fonction de la teneur en oxygène au carneau, il est néanmoins intéressant de calculer un taux de combustion indiqué comme « réel » (Tx<sub>réel</sub>) en fonction de cette teneur grâce à la relation :

$$\begin{aligned} T_{x_{\text{réel}}} &= [ Q_{\text{air total}} / ( P_{\text{comb}} \cdot (1 + e\%) ) ] / Q_{\text{charbon}} \\ &\approx [ Q_{\text{air total}} / ( P_{\text{comb}} \cdot \frac{21}{21 - O_2\%} ) ] / Q_{\text{charbon}} \end{aligned} \quad (4.1)$$

où Q<sub>air total</sub> est le débit massique d'air total destiné au brûleur, Q<sub>charbon</sub> est le débit de charbon principal, P<sub>comb</sub> son pouvoir comburivore (kg/kg de charbon), e% l'excès d'air (%) et O<sub>2</sub>%, la

teneur en oxygène (%) mesurée au carneau. Par rapport au taux de combustion défini en fonction de la teneur en imbrûlés (annexe 3), le taux de combustion réel tient non seulement compte des imbrûlés solides mais également de la teneur en CO. Les valeurs calculées sont plus faibles de 3 à 6 % (cas d'un excès d'air de 5%) par rapport à celles du précédent taux de combustion. La teneur en CO<sub>2</sub> (en %) plus importante dans le cas d'un excès d'air réduit à 5 % s'explique par une diminution du débit d'air de combustion. La combustion dans la zone primaire est en effet de moins bonne qualité pour un excès d'air de 5 % par rapport à celle pour un excès d'air de 20 %.

Réglage	4	5	9	10
Excès d'air théorique (%)	20	20	5	5
Stœchiométrie primaire théorique	1,2	1,2	1,05	1,05
ST1 théorique	0,6	0,8	0,6	0,8
Débit de charbon primaire (kg.h <sup>-1</sup> )	420	420 +/- 1	420	420
Débit d'air primaire (kg.h <sup>-1</sup> )	600	600	627 +/- 40	627 +/- 40
Débit d'air secondaire (kg.h <sup>-1</sup> )	1963 +/- 4	2729 +/- 30	1931 +/- 30	2710 +/- 82
Débit d'air tertiaire (kg.h <sup>-1</sup> )	2562 +/- 4	1775 +/- 195	1192 +/- 22	657 +/- 20
Air total (kg.h <sup>-1</sup> )	5125 +/- 8	5104 +/- 165	3750 +/- 34	3994 +/- 49
Stœchiométrie ST1 réelle	0,56	0,725 +/- 0,01	0,557 +/- 0,01	0,727 +/- 0,01
Stœchiométrie primaire réelle	1,12	1,115 +/- 0,035	0,819 +/- 0,01	0,872 +/- 0,01
Température de l'air de combustion (°C)	178 +/- 15	173	175 +/- 7	177 +/- 4
Nombre de swirl	1,16 +/- 0,24	1,00	0,97 +/- 0,03	1,08 +/- 0,02
Teneur en NO (ppm)	382 +/- 6	547 +/- 6	391 +/- 14	555 +/- 8
Teneur en NO (mgNO <sub>2</sub> .Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	680 +/- 17	946 +/- 9	597 +/- 21	862 +/- 16
Teneur en CO (ppm)	125 +/- 20	97 +/- 10	742 +/- 120	182 +/- 23
Teneur en CO (mgCO.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	135 +/- 21	102 +/- 10	685 +/- 109	172 +/- 20
Teneur en O <sub>2</sub> des fumées (%)	3,78 +/- 0,28	3,18 +/- 0,2	0,8 +/- 0,11	1,18 +/- 0,15
Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	15,25 +/- 0,25	15,85 +/- 0,18	17,63 +/- 0,15	17,38 +/- 0,5
Imbrûlés solides dans les cendres volantes (%)	56,8	52	73	66,8
Taux de combustion * (%)	91,1	92,7	81,7	86,4
Taux de combustion réel (%)	91,6	94,4	78,7	82,2

Tableau 4.1 : Réglages du brûleur  
(combustible primaire et de reburning : charbon français 2)

\* Taux de combustion défini en annexe 3

Réglage	4	5	9	10
Excès d'air théorique (%)	20	20	5	5
Stœchiométrie primaire théorique	1,2	1,2	1,05	1,05
ST1 théorique	0,6	0,8	0,6	0,8
Débit de charbon primaire (kg.h <sup>-1</sup> )	421 +/- 2	420	421 +/- 2	420
Débit d'air primaire (kg.h <sup>-1</sup> )	674 +/- 18	663	663	663
Débit d'air secondaire (kg.h <sup>-1</sup> )	1881 +/- 57	2647	1882 +/- 16	2737 +/- 13
Débit d'air tertiaire (kg.h <sup>-1</sup> )	2555 +/- 59	1947	1247 +/- 25	663 +/- 19
Air total (kg.h <sup>-1</sup> )	5110 +/- 97	5257	3792 +/- 15	4063 +/- 18
Stœchiométrie ST1 réelle	0,557 +/- 0,01	0,720	0,550	0,741
Stœchiométrie primaire réelle	1,12 +/- 0,01	1,15	0,830 +/- 0,01	0,885 +/- 0,01
Température de l'air de combustion (°C)	159 +/- 6	170	161 +/- 4	173 +/- 4
Nombre de swirl	0,93 +/- 0,02	1,05	0,93	1,07
Teneur en NO (ppm)	362 +/- 3	522 +/- 6	358 +/- 6	560 +/- 4,4
Teneur en NO (mgNO <sub>2</sub> .Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	661 +/- 4,7	947 +/- 6,7	550 +/- 13	877 +/- 10
Teneur en CO (ppm)	134 +/- 10	82 +/- 9	627 +/- 392	144 +/- 7,6
Teneur en CO (mgCO.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	150 +/- 11	91 +/- 10	586 +/- 363	138 +/- 7,3
Teneur en O <sub>2</sub> des fumées (%)	4,14 +/- 0,06	4,01 +/- 0,18	0,96 +/- 0,4	1,35 +/- 0,12
Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	15,1 +/- 0,05	15,22 +/- 0,16	17,7 +/- 0,14	17,49 +/- 0,15
Imbrûlés solides dans les cendres volantes (%)	56,78	52	73	67
Taux de combustion (%)	91,1	92,7	81,7	86,4
Taux de combustion réel (%)	89,4	92,7	78,9	82,9

*Tableau 4.2 : Réglages du brûleur  
(combustible primaire : charbon français 2  
et charbon de reburning : charbon colombien)*

Réglage	4	5	9	10
Excès d'air théorique (%)	20	20	5	5
Stœchiométrie primaire théorique	1,2	1,2	1,05	1,05
ST1 théorique	0,6	0,8	0,6	0,8
Débit de charbon primaire (kg.h <sup>-1</sup> )	421 +/- 1	420	420 +/- 2	420 +/- 0
Débit d'air primaire (kg.h <sup>-1</sup> )	686 +/- 16	668	684 +/- 8	683 +/- 9
Débit d'air secondaire (kg.h <sup>-1</sup> )	1835 +/- 32	2632	1830 +/- 20	2641 +/- 26
Débit d'air tertiaire (kg.h <sup>-1</sup> )	2488 +/- 36	1728	1220 +/- 10	665 +/- 13
Air total (kg.h <sup>-1</sup> )	5009 +/- 50	5028	3734 +/- 14	3989 +/- 27
Stœchiométrie ST1 réelle	0,548 +/- 0,01	0,720	0,548 +/- 0,01	0,725 +/- 0,01
Stœchiométrie primaire réelle	1,090	1,096	0,814 +/- 0,01	0,870 +/- 0,01
Température de l'air de combustion (°C)	160 +/- 6	170	165 +/- 4	180 +/- 5
Nombre de swirl	0,91 +/- 0,02	1,05	0,91 +/- 0,01	1,051 +/- 0,01
Teneur en NO (ppm)	347 +/- 2,5	520 +/- 6	342 +/- 3,5	553 +/- 6
Teneur en NO (mgNO <sub>2</sub> .Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	643 +/- 5	948 +/- 10	535 +/- 10	877 +/- 11,5
Teneur en CO (ppm)	159 +/- 2	97,6 +/- 8	995 +/- 177	154 +/- 54
Teneur en CO (mgCO.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	180 +/- 2	108 +/- 7,5	940 +/- 164	149 +/- 52
Teneur en O <sub>2</sub> des fumées (%)	4,39 +/- 0,1	4,08 +/- 0,32	1,31 +/- 0,05	1,61 +/- 0,09
Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,69 +/- 0,15	15,31 +/- 0,26	17,21 +/- 0,05	17,41 +/- 0,1
Imbrûlés solides dans les cendres volantes (%)	56,78	52	73	67
Taux de combustion (%)	91,1	92,7	81,7	86,4
Taux de combustion réel (%)	86,38	88,33	76,34	80,31

*Tableau 4.3 : Réglages du brûleur  
(combustible primaire : charbon français 2  
et charbon de reburning : charbon sud-africain)*

Réglage	4	5	9	10
Excès d'air théorique (%)	20	20	5	5
Stœchiométrie primaire théorique	1,2	1,2	1,05	1,05
ST1 théorique	0,6	0,8	0,6	0,8
Débit de charbon primaire (kg.h <sup>-1</sup> )	421	421 +/- 1	421 +/- 1	421 +/- 0
Débit d'air primaire (kg.h <sup>-1</sup> )	668	674 +/- 1	673 +/- 3	670 +/- 8
Débit d'air secondaire (kg.h <sup>-1</sup> )	1872	2649 +/- 27	1845 +/- 13	2644 +/- 34
Débit d'air tertiaire (kg.h <sup>-1</sup> )	2524	1722 +/- 31	1227 +/- 17	714 +/- 4
Air total (kg.h <sup>-1</sup> )	5064	5045 +/- 3	3745 +/- 20	4028 +/- 32
Stœchiométrie ST1 réelle	0,552	0,723	0,548 +/- 0,01	0,721 +/- 0,01
Stœchiométrie primaire réelle	1,102	1,097	0,815 +/- 0,01	0,876 +/- 0,01
Température de l'air de combustion (°C)	165	179 +/- 2	169 +/- 2	184 +/- 3
Nombre de swirl	0,93	1,06 +/- 0,014	0,92 +/- 0,01	1,065 +/- 0,01
Teneur en NO (ppm)	343 +/- 17	556 +/- 11	331 +/- 8	528 +/- 8
Teneur en NO (mgNO <sub>2</sub> .Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	631 +/- 14	956 +/- 24	508 +/- 10	815 +/- 13
Teneur en CO (ppm)	165 +/- 12,5	96 +/- 8	1642 +/- 460	215 +/- 114
Teneur en CO (mgCO.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	185 +/- 12	101 +/- 8	1534 +/- 422	202 +/- 109
Teneur en O <sub>2</sub> des fumées (%)	4,29 +/- 0,53	3,08 +/- 0,06	0,94 +/- 0,16	1,06 +/- 0,01
Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,66 +/- 0,6	15,97 +/- 0,04	17,45 +/- 0,15	17,47 +/- 0,03
Imbrûlés solides dans les cendres volantes (%)	56,78	52	73	67
Taux de combustion (%)	91,1	92,7	81,7	86,4
Taux de combustion réel (%)	87,65	93,42	78,00	83,39

*Tableau 4.4 : Réglages du brûleur  
(combustible primaire : charbon français 2  
et charbon de reburning : polonais)*

Pour la suite de l'étude de reburning au charbon, les stœchiométries de reburning et de burnout (ou de postcombustion) indiquées comme « théoriques » (tableaux A5.9 à A5.23, annexe 5) ont été calculées en fonction du débit d'air total, du débit de charbon principal et de celui de reburning indiqué dans les tableaux 4.1 à 4.4. Les stœchiométries de reburning et de burnout dites « réelles » ont été recalculées en prenant en compte le taux de combustion réel du charbon principal.

## **II - Essais de reburning avec du charbon français**

### **II-1 Résultats pour une température de 1300°C à l'entrée de la zone de reburning**

Les injecteurs de charbon de reburning sont situés à environ 1 m de l'ouvreau. Le temps de séjour dans la zone primaire (zone du brûleur) est de 350 ms. La vitesse d'injection du charbon est de l'ordre de 30 m.s<sup>-1</sup>.

L'injection de l'air de postcombustion a été faite à 3,5 m de l'ouvreau correspondant à un temps de séjour dans la zone de reburning de 900 ms (voir annexe 5, tableau A5.9).

### **II-2 Résultats pour une température de 1200°C à l'entrée de la zone de reburning**

Les injecteurs de charbon de reburning sont situés à environ 1,9 m de l'ouvreau. Le temps de séjour dans la zone primaire (zone du brûleur) est de 680 ms.

L'injection de l'air de postcombustion a été faite à 3,4 et 4,4 m de l'ouvreau correspondant à des temps de séjour dans la zone de reburning respectifs de 570 et 950 ms (annexe 5, tableaux A5.10 et A5.11).

## **III - Essais de reburning avec du charbon colombien**

### **III-1 Résultats pour une température de 1300°C à l'entrée de la zone de reburning**

Les injecteurs de charbon de reburning sont situés à environ 1 m de l'ouvreau. Le temps de séjour dans la zone primaire (zone du brûleur) est de 341 ms.

L'injection de l'air de postcombustion a été faite à 2,5 et 3,5 m de l'ouvreau correspondant à des temps de séjour dans la zone de reburning respectifs de 525 et 875 ms (annexe 5, tableaux A5.12 et A5.13).

### **III-2 Résultats pour une température de 1200°C à l'entrée de la zone de reburning**

Les injecteurs de charbon de reburning sont situés à environ 1,9 m de l'ouvreau. Le temps de séjour dans la zone primaire (zone du brûleur) est de 669 ms.

L'injection de l'air de postcombustion a été faite à 3,4 et 4,4 m de l'ouvreau correspondant à des temps de séjour dans la zone de reburning respectifs de 561 et 935 ms (annexe 5, tableaux A5.14 et A5.15).

## **IV - Essais de reburning avec du charbon sud-africain**

### **IV-1 Résultats pour une température de 1300°C à l'entrée de la zone de reburning**

Les injecteurs de charbon de reburning sont situés à environ 1 m de l'ouvreau. Le temps de séjour dans la zone primaire (zone du brûleur) est de 362 ms.

L'injection de l'air de postcombustion a été faite à 2,5 et 3,5 m de l'ouvrage correspondant à des temps de séjour dans la zone de reburning respectifs de 560 et 930 ms (annexe 5, tableaux A5.16 et A5.17).

#### **IV-2 Résultats pour une température de 1200°C à l'entrée de la zone de reburning**

Les injecteurs de charbon de reburning sont situés à environ 1,9 m de l'ouvrage. Le temps de séjour dans la zone primaire (zone du brûleur) est de 710 ms.

L'injection de l'air de postcombustion a été faite à 3,4 et 4,4 m de l'ouvrage correspondant à des temps de séjour dans la zone de reburning respectifs de 595 et 990 ms (annexe 5, tableaux A5.18 et A5.19).

### **V - Essais de reburning avec du charbon polonais**

#### **V-1 Résultats pour une température de 1300°C à l'entrée de la zone de reburning**

Les injecteurs de charbon de reburning sont situés à environ 1 m de l'ouvrage. Le temps de séjour dans la zone primaire (zone du brûleur) est de 348 ms.

L'injection de l'air de postcombustion a été faite à 2,5 et 3,5 m de l'ouvrage correspondant à des temps de séjour dans la zone de reburning respectifs de 535 et 890 ms (annexe 5, tableaux A5.20 et A5.21).

#### **V-2 Résultats pour une température de 1200°C à l'entrée de la zone de reburning**

Les injecteurs de charbon de reburning sont situés à environ 1,9 m de l'ouvrage. Le temps de séjour dans la zone primaire (zone du brûleur) est de 682 ms.

L'injection de l'air de postcombustion a été faite à 3,4 et 4,4 m de l'ouvrage correspondant à des temps de séjour dans la zone de reburning respectifs de 570 et 950 ms (annexe 5, tableaux A5.12 et A5.23).

### **VI - Discussion des résultats**

#### **VI-1 Influence des paramètres sur la teneur en NO<sub>x</sub> pour une flamme à excès d'air réduit**

Les figures 4.1 à 4.8 montrent l'influence des paramètres retenus pour cette étude sur la différence ( $\Delta NO$ ) entre les teneurs en NO<sub>x</sub> obtenues sans reburning (NO<sub>x,init</sub>) avec un excès d'air de 5 % en sortie du brûleur (zone primaire) et celles obtenues avec reburning au charbon (NO<sub>x</sub>). Globalement, le reburning au charbon réduit la teneur en NO<sub>x</sub> dans les fumées, cette réduction pouvant atteindre au maximum 360 ppm avec du charbon sud-africain (figure 4.8).

Comme lors des expérimentations de reburning au gaz naturel, l'ensemble des figures indique que l'augmentation du temps de séjour dans la zone de reburning et la diminution de la stœchiométrie de la zone de reburning diminuent les émissions de NO<sub>x</sub> quelque soient la température à l'entrée de la zone de reburning et le réglage du brûleur (teneur en NO<sub>x</sub> initial) utilisé.

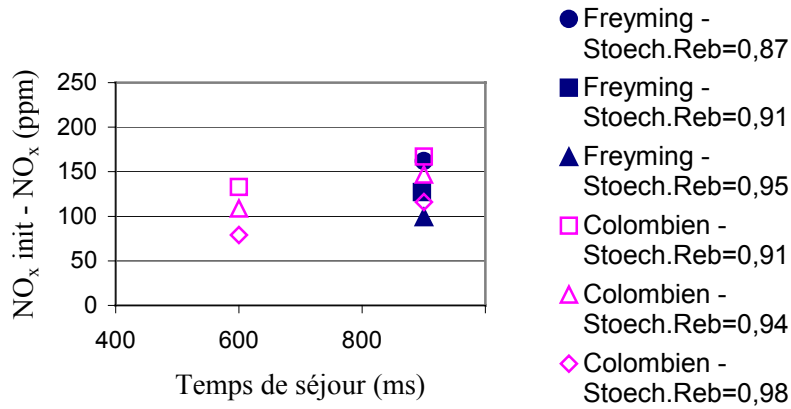


Figure 4.1 :  $T= 1300^{\circ}\text{C}$  – Réglage 9 (teneur en  $\text{NO}_x$  initial de 365 ppm) – Freyming-Colombien

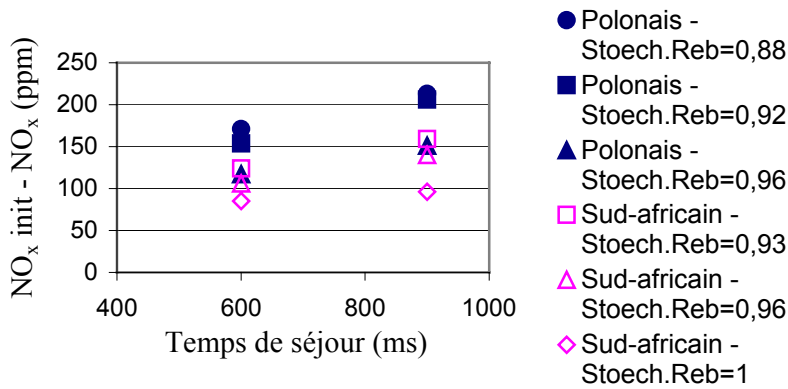


Figure 4.2 :  $T= 1300^{\circ}\text{C}$  – Réglage 9 (teneur en  $\text{NO}_x$  initial de 365 ppm) – Polonais-Sud-Africain

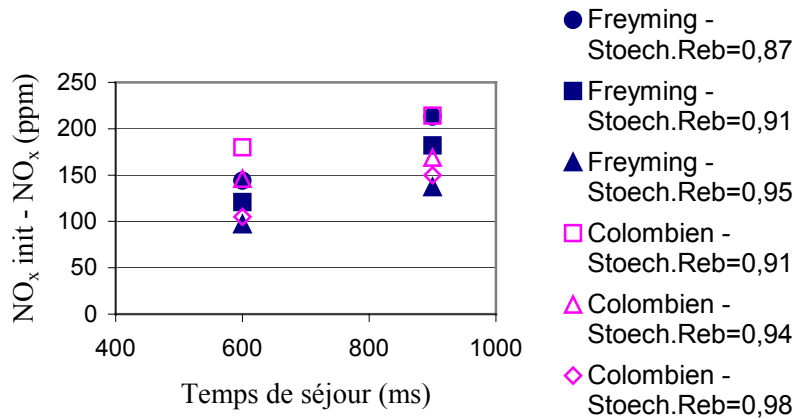


Figure 4.3 :  $T= 1200^{\circ}\text{C}$  – Réglage 9 (teneur en  $\text{NO}_x$  initial de 365 ppm) – Freyming-Colombien

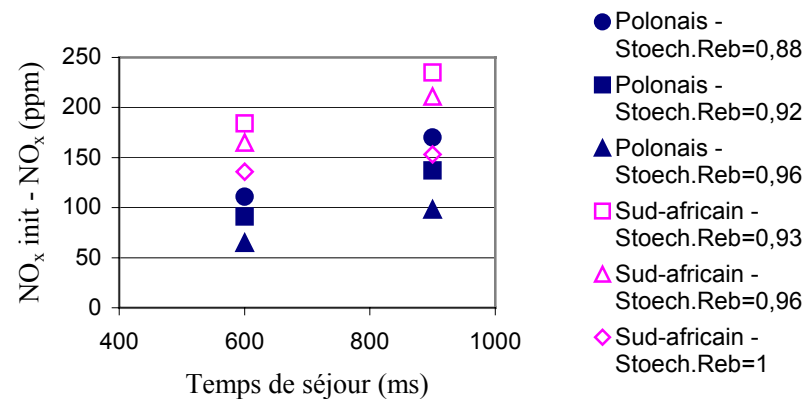


Figure 4.4 :  $T= 1200^{\circ}\text{C}$  – Réglage 9 (teneur en  $\text{NO}_x$  initial de 365 ppm) – Polonais-Sud-Africain



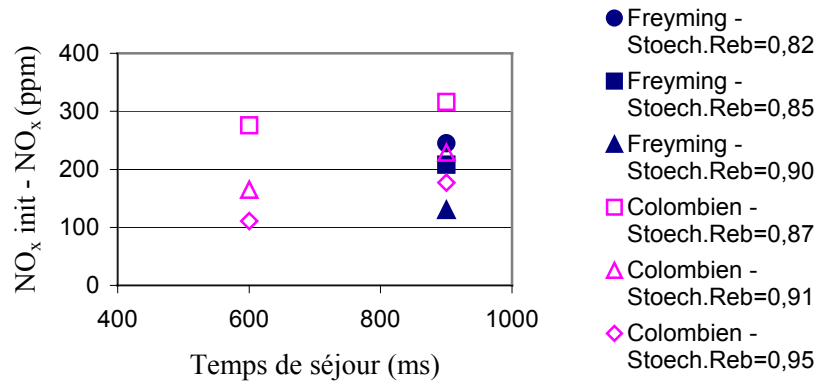


Figure 4.5 :  $T= 1300^{\circ}\text{C}$  – Réglage 10 (teneur en  $\text{NO}_x$  initial de 547 ppm) – Freyming-Colombien

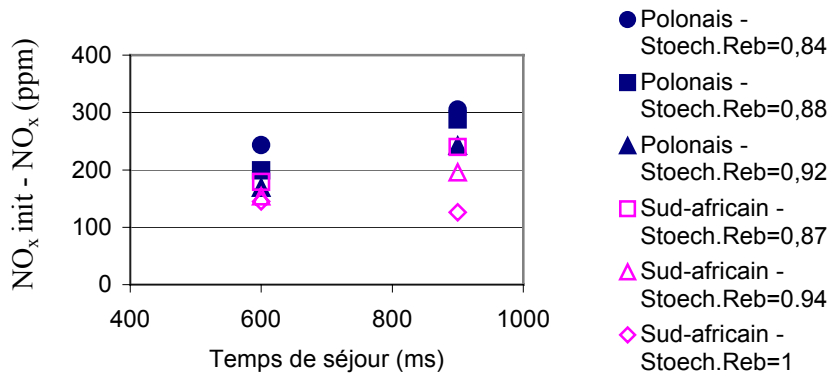


Figure 4.6 :  $T= 1300^{\circ}\text{C}$  – Réglage 10 (teneur en  $\text{NO}_x$  initial de 547 ppm) – Polonais-Sud-Africain

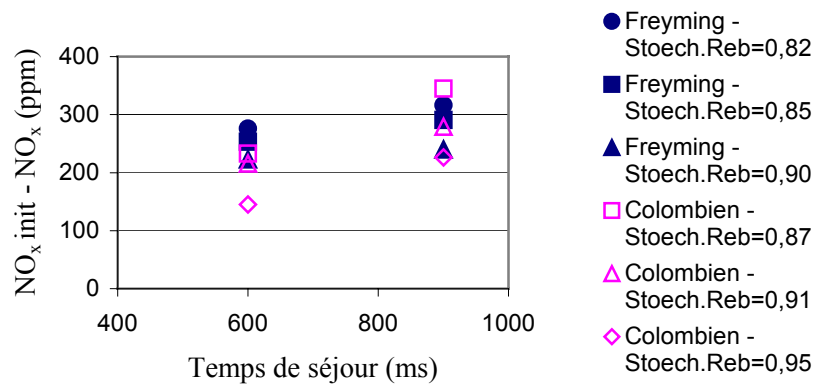


Figure 4.7 :  $T= 1200^{\circ}\text{C}$  – Réglage 10 (teneur en  $\text{NO}_x$  initial de 547 ppm) – Freyming-Colombien

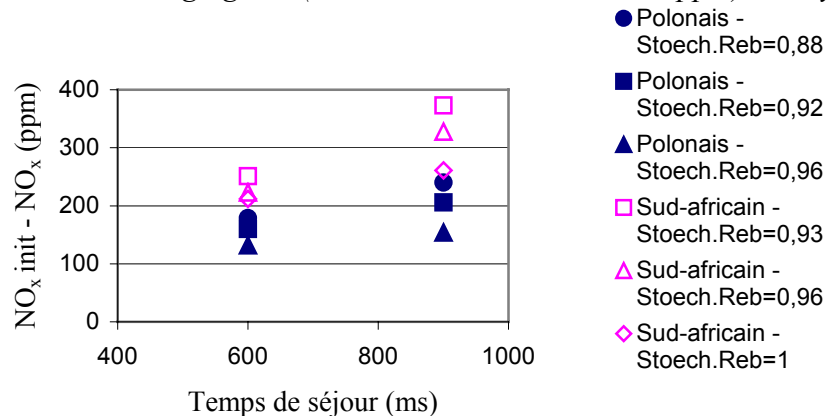


Figure 4.8 :  $T= 1200^{\circ}\text{C}$  – Réglage 10 (teneur en  $\text{NO}_x$  initial de 547 ppm) – Polonais-Sud-Africain

Comme lors du reburning au gaz naturel, une température de 1200 °C permet d'obtenir les meilleures réductions des émissions des oxydes d'azote par rapport à 1300 °C : nous obtenons au maximum une réduction de 360 ppm pour 1200 °C au lieu de 250 ppm pour une température de 1300 °C (cas du charbon sud-africain avec le réglage 10, une stœchiométrie théorique de 0,93 et un temps de séjour de 850 ms)

L'influence de la teneur initiale en NO<sub>x</sub> devient évidente quand on compare les résultats obtenus avec les différents réglages du brûleur (stœchiométrie primaire et ST1). Le réglage 10 qui donne des teneurs initiales en NO<sub>x</sub> en moyenne à 547 ppm (tableau 2.9, partie 2), permet d'obtenir de meilleures réductions par rapport au réglage 9 (teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 365 ppm, tableau 2.9, partie 2) : elles sont au maximum de 360 ppm au lieu de 225 ppm (charbon sud-africain, température de 1200 °C à l'entrée de la zone de reburning, temps de séjour de 850 ms et stœchiométrie nominale de 0,93).

En fonction des valeurs des paramètres d'études, nous obtenons plusieurs inégalités où  $\Delta NO_{\text{sud-af}}$ ,  $\Delta NO_{\text{colomb}}$ ,  $\Delta NO_{\text{français}}$  et  $\Delta NO_{\text{pol}}$  sont les différences des teneurs en NO<sub>x</sub> obtenues avant et après l'application du reburning pour respectivement les charbons sud-africain, colombien, français et polonais comme combustible de reburning. Nous obtenons :

- pour une température de 1200 °C, un temps de séjour de 850-900 ms, une stœchiométrie de 0,87-0,93 et une teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 365 ppm (figures 4.3 et 4.4 ; conditions similaires à celles qui ont permis d'obtenir les meilleures réductions des NO<sub>x</sub> avec le gaz naturel comme combustible de reburning) :

$$\Delta NO_{\text{sud-af}} > \Delta NO_{\text{colomb}} > \Delta NO_{\text{français}} > \Delta NO_{\text{pol}}$$

- pour une température de 1200 °C, un temps de séjour de 850-900 ms, une stœchiométrie de 0,87-0,93 et une teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 547 ppm (figures 4.7 et 4.8) :

$$\Delta NO_{\text{sud-af}} > \Delta NO_{\text{colomb}} > \Delta NO_{\text{français}} > \Delta NO_{\text{pol}}$$

- pour une température de 1300 °C, un temps de séjour de 900 ms, une stœchiométrie de 0,87-0,93 et une teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 365 ppm (figures 4.1 et 4.2) :

$$\Delta NO_{\text{pol}} > \Delta NO_{\text{colomb}} = \Delta NO_{\text{sud-af}} = \Delta NO_{\text{français}}$$

- pour une température de 1300 °C, un temps de séjour de 900 ms, une stœchiométrie de 0,87-0,93 et une teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 547 ppm (figures 4.5 et 4.6) :

$$\Delta NO_{\text{colomb}} \geq \Delta NO_{\text{pol}} > \Delta NO_{\text{sud-af}} > \Delta NO_{\text{français}}$$

- pour une température de 1200 °C, un temps de séjour de 850 à 900 ms, une stœchiométrie proche de 0,94-1 et une teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 365 ppm (figures 4.3 et 4.4) :

$$\Delta NO_{\text{sud-af}} > \Delta NO_{\text{colomb}} = \Delta NO_{\text{français}} = \Delta NO_{\text{pol}}$$

- pour une température de 1200 °C, un temps de séjour de 850 à 900 ms, une stœchiométrie proche de 0,94-1 et une teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 547 ppm (figures 4.7 et 4.8) :

$$\Delta NO_{\text{sud-af}} > \Delta NO_{\text{colomb}} > \Delta NO_{\text{français}} = \Delta NO_{\text{pol}}$$

- pour une température de 1200 °C, un temps de séjour de 600 ms, une stœchiométrie de 0,88-0,93 et une teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 365 ppm :

$$\Delta NO_{\text{sud-af}} = \Delta NO_{\text{colombien}} > \Delta NO_{\text{français}} = \Delta NO_{\text{pol}}$$

- pour une température de 1200 °C, un temps de séjour de 600 ms, une stœchiométrie de 0,88-0,93 et une teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 547 ppm (figures 4.7 et 4.8) :

$$\Delta NO_{\text{sud-af}} = \Delta NO_{\text{français}} > \Delta NO_{\text{colombien}} = \Delta NO_{\text{pol}}$$

En général, les charbons de l’hémisphère sud sont supérieurs aux charbons européens. Pour une température de 1200 °C et quelles que soient les autres conditions opératoires, le charbon sud-africain donne les meilleurs résultats alors que le charbon polonais est le moins performant. A 1300°C, ce sont les charbons polonais et colombien qui deviennent supérieurs aux autres.

Si les réductions des NO<sub>x</sub> en valeurs absolues sont toujours plus importantes pour des teneurs initiales en NO<sub>x</sub> plus élevées, il n’en est pas de même pour les réductions relatives (%) :  $(NO_{x\text{init}} - NO_x) / NO_x$  (figures 4.9 et 4.10). Pour les deux températures à l’entrée de la zone de reburning étudiées (1200 et 1300 °C), les réductions obtenues avec le charbon colombien et sud-africain augmentent avec la teneur initiale en NO<sub>x</sub> alors qu’elles restent presque constantes ou diminuent avec les charbons européens.

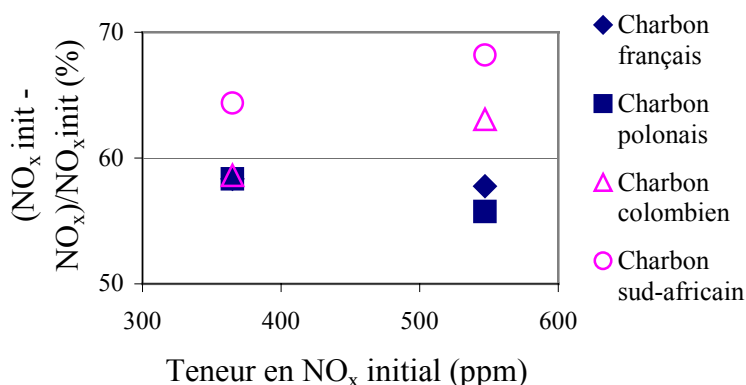


Figure 4.9 : Influence de la teneur en NO<sub>x</sub> initial et du charbon utilisé comme combustible de reburning sur la réduction relative des NO<sub>x</sub> (%) (température de 1200 °C, temps de séjour de 900 ms, stœchiométrie de 0,82-0,88)

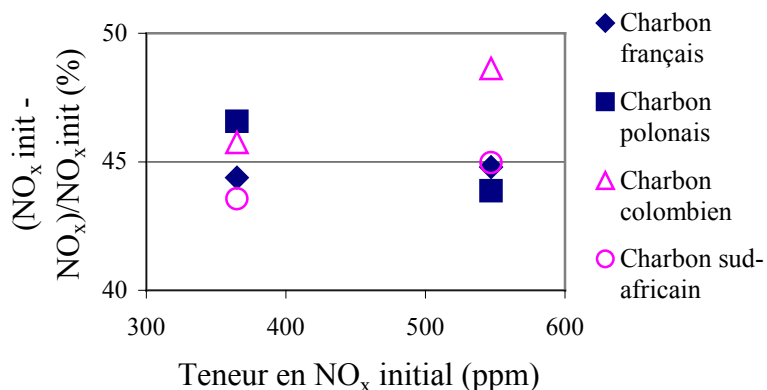


Figure 4.10 : Influence de la teneur en NO<sub>x</sub> initial et du charbon utilisé comme combustible de reburning sur la réduction relative des NO<sub>x</sub> (%) (température de 1300 °C, temps de séjour de 900 ms, stœchiométrie de 0,82-0,88)

D'après la littérature, les différences entre les performances des différents charbons utilisés comme combustible de reburning pourraient être attribuées à leur différentes teneurs en azote et aux différences dans les indices de matières volatiles (figures 4.11 à 4.14).

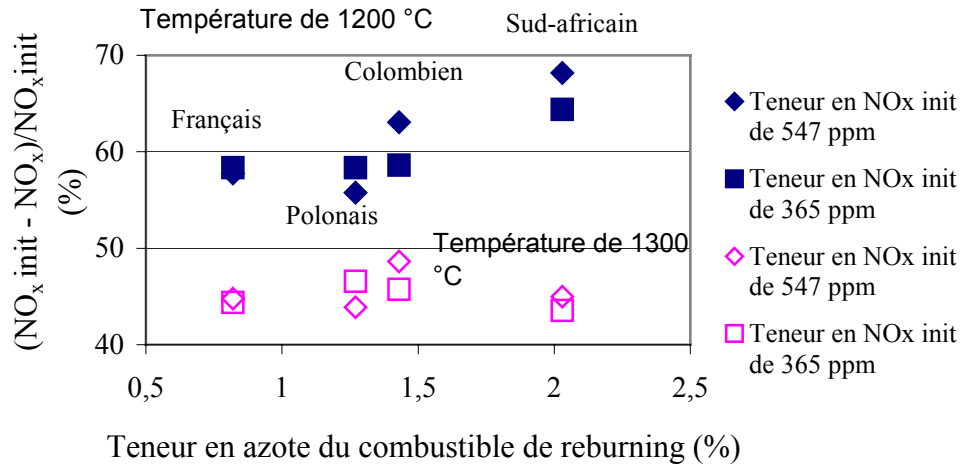


Figure 4.11 : Influence de la teneur en azote du combustible de reburning, de la teneur en NO<sub>x</sub> initial (NO<sub>x</sub> init) et de la température à l'entrée de la zone de reburning sur la réduction relative des NO<sub>x</sub> (%) (temps de séjour de 900 ms, stœchiométrie de 0,82-0,88)

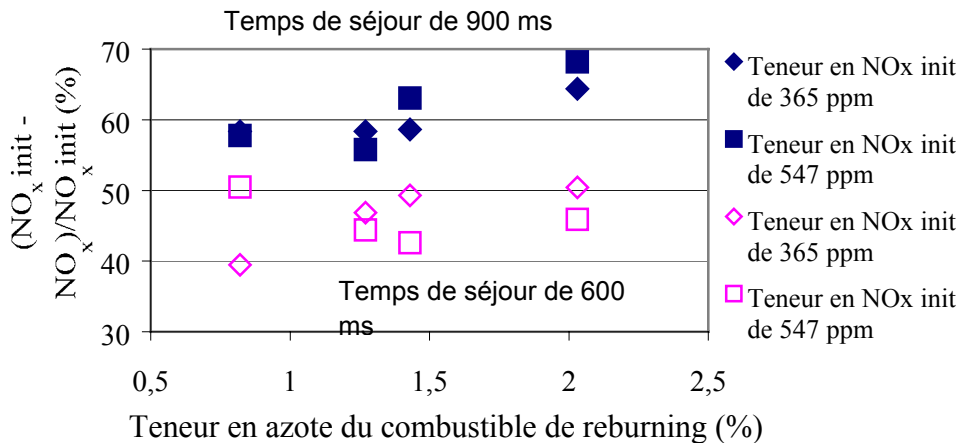


Figure 4.12 : Influence de la teneur en azote du combustible de reburning, de la teneur en NO<sub>x</sub> initial (NO<sub>x</sub> init) et du temps de séjour de la zone de reburning sur la réduction relative des NO<sub>x</sub> (%) (température de 1200 °C, stœchiométrie de 0,82-0,88)

Dans les conditions permettant d'obtenir le maximum de réduction des émissions de NO<sub>x</sub> (température de 1200 °C, temps de séjour de 850-900 ms, stœchiométrie de 0,82-0,88), la réduction semble augmenter lorsque la teneur en azote du combustible de reburning augmente, cela quelque soit la teneur initiale en NO<sub>x</sub> : nous passons de 60 % pour une teneur en azote de 0,82 % (charbon français) à 65-68 % de réduction pour une teneur de 2 % (charbon sud-africain, figure 4.11).

Lorsque la température est de 1300 °C à l'entrée de la zone de reburning (temps de séjour de 850-900 ms et stœchiométrie de 0,82-0,88), cette tendance est moins nette, les réductions obtenues sont proches de 45 %, quelque soit la teneur en azote du combustible

(figure 4.11). Lorsque le temps de séjour dans la zone de reburning est de 600 ms (température de 1200 °C, stœchiométrie de 0,82-0,88), la réduction des émissions de NO<sub>x</sub> augmente avec la teneur en azote du combustible uniquement pour une teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 365 ppm (figure 4.12).

Les figures 4.13 et 4.14 montrent que l'influence de l'autre caractéristique potentiellement importante (indice de matières volatiles) sur les réductions relatives de NO<sub>x</sub> est beaucoup moins nette.

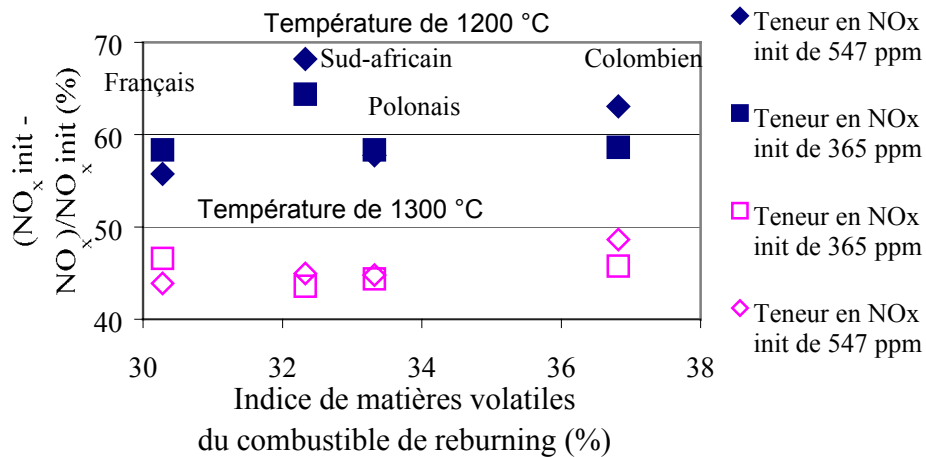


Figure 4.13 : Influence de l'indice de matières volatiles du combustible de reburning, de la teneur en NO<sub>x</sub> initial (NO<sub>x</sub> init) et de la température à l'entrée de la zone de reburning sur la réduction relative des NO<sub>x</sub> (%) (temps de séjour de 900 ms, stœchiométrie de 0,82-0,88)

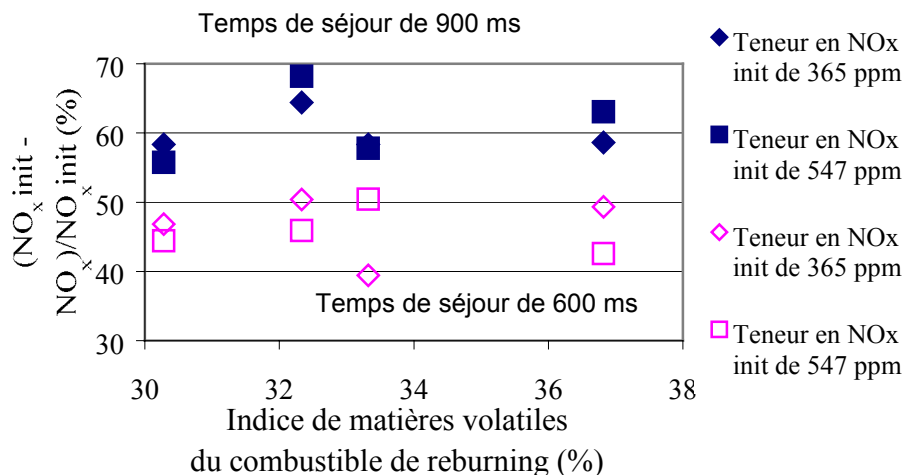


Figure 4.14 : Influence de l'indice de matières volatiles du combustible de reburning, de la teneur en NO<sub>x</sub> initial (NO<sub>x</sub> init) et du temps de séjour dans la zone de reburning sur la réduction relative des NO<sub>x</sub> (%) (température à l'entrée de la zone de reburning de 1200 °C, stœchiométrie de 0,82-0,88)

Dans les conditions permettant d'obtenir le maximum de réduction relative des émissions de  $\text{NO}_x$  (température de 1200 °C, temps de séjour de 850-900 ms, stœchiométrie de 0,82-0,88) et pour les deux teneurs initiales en  $\text{NO}_x$ , la réduction des  $\text{NO}_x$  ne dépend pratiquement pas de l'indice de matières volatiles du combustible de reburning (figure 4.13). Pour d'autres conditions (température de 1300 °C ou temps de séjour de 600 ms, quelque soient les teneurs initiales en  $\text{NO}_x$ ), la réduction relative ne peut être corrélée avec l'indice de matières volatiles (figure 4.14).

Les charbons étudiés dans cette étude n'ont pas été sélectionnés en fonction de leur teneur en azote et de leur indice de matières volatiles. Nous avons tenté de vérifier l'influence de ces caractéristiques sur la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  mais nous n'avons pas obtenu des résultats significatifs. Les figures 4.11 à 4.14 ont permis cependant de mettre en évidence une certaine influence de la teneur en azote du combustible de reburning sur la réduction relative des émissions de  $\text{NO}_x$ . Toutefois, lors de la dévolatilisation du charbon de reburning, une partie de l'azote contenu dans le combustible de reburning se retrouve dans les composés azotés volatils. Cet azote « volatil » émis dans la zone de reburning réagit avec les oxydes d'azote au lieu de s'oxyder en NO en présence de l'air de postcombustion.

Afin de connaître l'influence de la part d'azote volatile du combustible de reburning sur cette réduction, des prélèvements et des analyses de cendres volantes ont été effectués au carneau de mesure, lors de l'application du reburning avec les quatre charbons étudiés (figure 4.15), dans des conditions de reburning permettant d'obtenir le maximum de réduction relative des émissions de  $\text{NO}_x$  (température de 1200 °C, temps de séjour de 850 à 900 ms, stœchiométrie de 0,82-0,88 et teneur en  $\text{NO}_x$  initial de 547 ppm). Cela a permis de faire une estimation de la part d'azote volatil / azote fixé dans le coke après son passage par les trois zones successives du four.

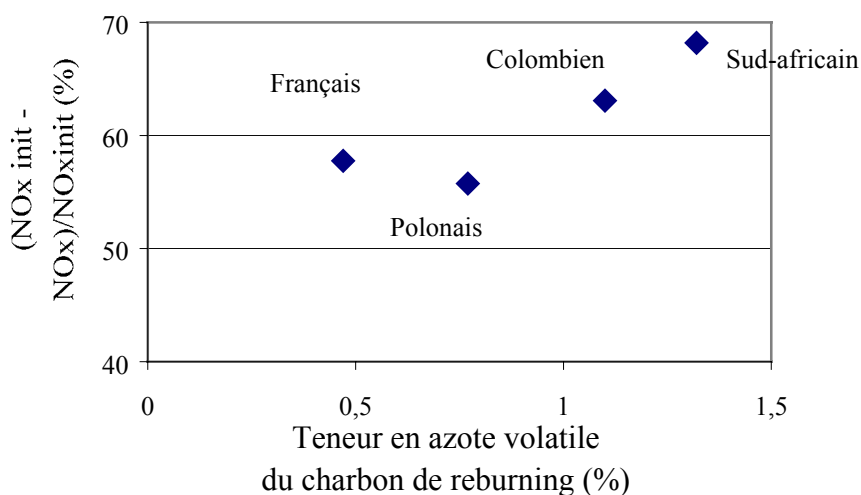


Figure 4.15 : Influence de la teneur en azote volatile du combustible de reburning sur la réduction relative des  $\text{NO}_x$  (%) (température à l'entrée de la zone de reburning de 1200 °C, stœchiométrie de 0,82-0,88, temps de séjour de 850 à 900 ms, teneur en  $\text{NO}_x$  initial de 547 ppm)

Les charbons de l'hémisphère sud étudiés ici ont une teneur en azote volatile (et en azote total) plus grande que les charbons européens (1,1 à 1,3 % au lieu de 0,4 à 0,77) et entraînent une réduction relative des  $\text{NO}_x$  plus importante. La figure 4.15 tendrait à supposer que les charbons ayant une teneur en azote volatile plus importante (supérieure à 1,5 %) permettent d'atteindre une réduction relative des  $\text{NO}_x$  de plus de 70 %.

## VI-2 Modélisation

Nous avons tenté de modéliser les résultats du reburning au gaz naturel dans le four pilote en introduisant une grandeur  $Y = \Delta\text{NO}_x/\text{NO}_{x\text{moyen}}$ , le rapport de la différence de teneur en  $\text{NO}_x$  avant et après l'application du reburning et la concentration moyenne dans la zone de reburning. Cette grandeur doit varier de façon linéaire avec la stœchiométrie de la zone de reburning Str (équation 3.6, chapitre I, partie 3) :

$$Y = k.(a-\text{Str}).\Delta t$$

où « k » est une constante de vitesse de réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  dépendant de la température et « a » une constante proche de l'unité.

Une analyse plus poussée des résultats obtenus lors du reburning au charbon peut être effectuée en utilisant ce modèle simplifié. La validité de ce modèle pour le reburning au charbon se vérifie par la variation linéaire décroissante de Y en fonction de la stœchiométrie de reburning :

$$Y = A + B.\text{Str} \quad (4.2)$$

où  $A = k.a.\Delta t$  et  $B = -k.\Delta t$ , par son indépendance de la teneur en  $\text{NO}_x$  initiale et par la proportionnalité des pentes  $|B|$  au temps de séjour dans la zone de reburning.

Les figures 4.16 à 4.19 représentent la valeur  $Y = \Delta\text{NO}_x/\text{NO}_{x\text{moyen}}$  en fonction de la stœchiométrie et du temps de séjour de la zone de reburning pour les charbons colombien, français (Freyming), polonais et sud-africain. Les coefficients A et B des droites dans les figures 4.16 à 4.19, la constante  $a = A/|B|$ , le coefficient de régression et le rapport  $|B|/\Delta t$  sont rassemblés dans le tableau 4.5 pour l'ensemble des charbons étudiés comme combustible de reburning.

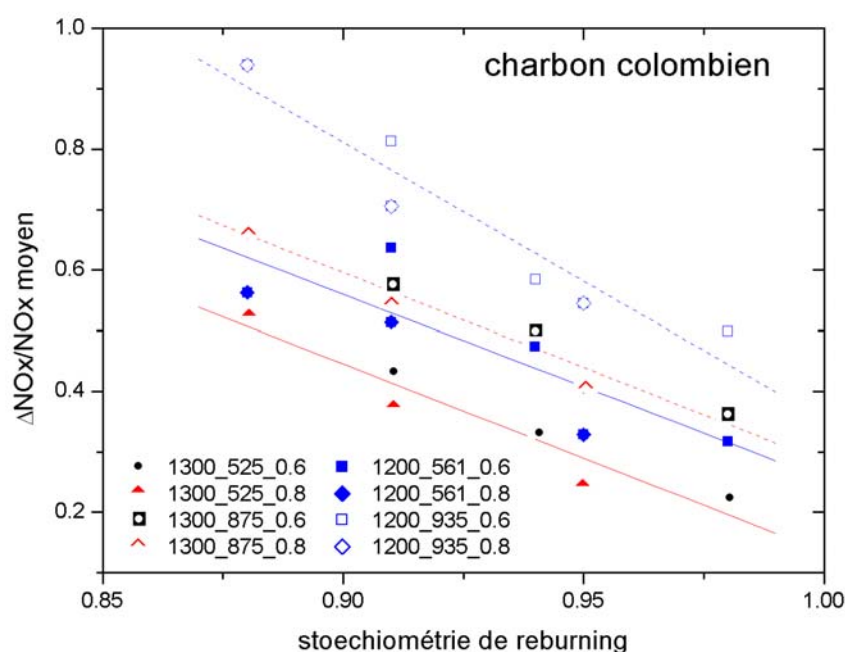


Figure 4.16 : Influence de la stœchiométrie de reburning sur le rapport  $\Delta\text{NO}/\text{NO}_{x \text{ moyen}}$  pour l'ensemble des expérimentations de reburning au charbon colombien (température de 1300 et de 1200 °C ; temps de séjour de 525-560 et 875-935 ms ; STI = 0,6 par le réglage 9 et STI = 0,8 par le réglage 10)

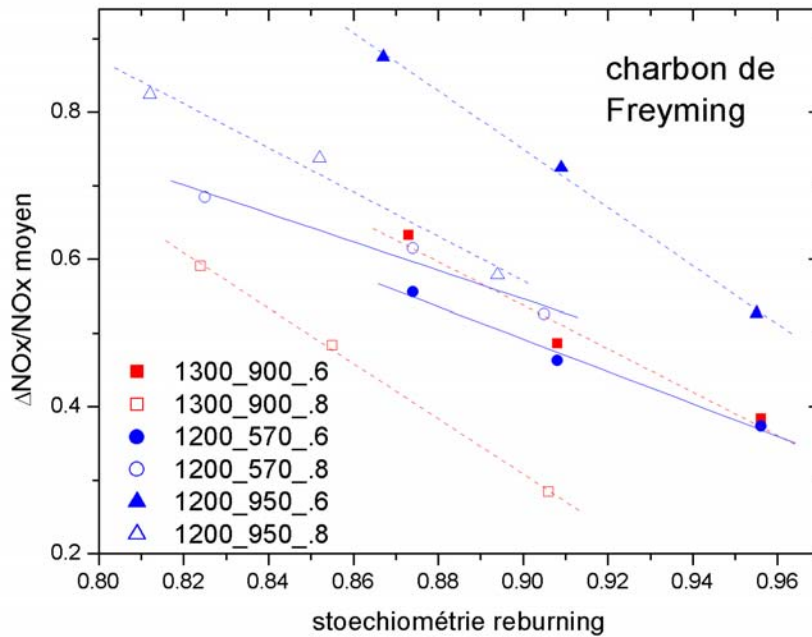


Figure 4.17 : Influence de la stœchiométrie de reburning sur le rapport  $\Delta NO/NO_{x \text{ moyen}}$  pour l'ensemble des expérimentations de reburning au charbon français (Freyming) (température de 1300 et de 1200 °C ; temps de séjour de 570 et 900-950 ms ; réglage 9 et 10)

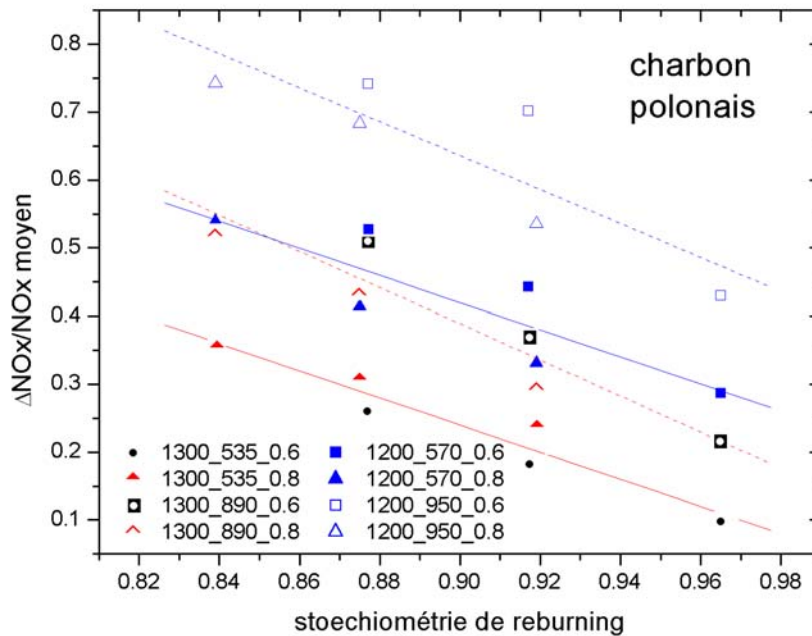


Figure 4.18 : Influence de la stœchiométrie de reburning sur le rapport  $\Delta NO/NO_{x \text{ moyen}}$  pour l'ensemble des expérimentations de reburning au charbon polonais (température de 1300 et de 1200 °C ; temps de séjour de 525-560 et 875-935 ms ; réglage 9 et 10)



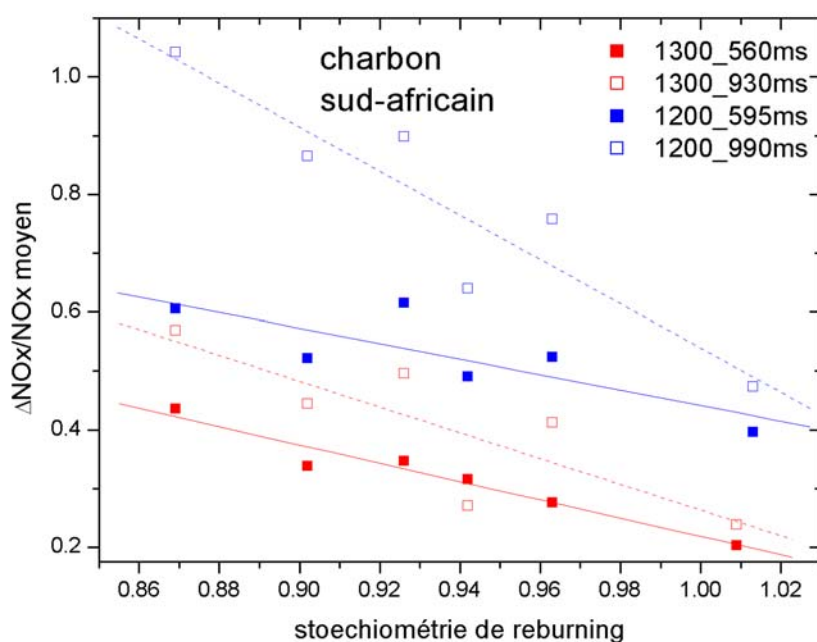


Figure 4.19 : Influence de la stœchiométrie de reburning sur le rapport  $\Delta NO_x / NO_x$  moyen pour l'ensemble des expérimentations de reburning au charbon sud-africain (température de 1300 et de 1200 °C ; temps de séjour de 525-560 et 875-935 ms)

Charbon	Température	Temps de séjour (ms)	$\Delta t$	A	B	$a = \frac{A}{ B }$	$\frac{ B }{\Delta t}$	Coefficient de régression
Français	1300°C	900		2,077	1,805	1,151	2,006	-0,648
	1200°C	570		2,699	2,43	1,111	4,263	-0,969
	1200°C	950		2,957	2,523	1,172	2,656	-0,815
Colombien	1300°C	525		3,244	3,109	1,043	5,922	-0,964
	1300°C	875		3,41	3,126	1,091	3,573	-0,986
	1200°C	561		3,308	3,054	1,083	5,444	-0,845
	1200°C	935		4,94	4,588	1,077	4,907	-0,952
Sud-africain	1300°C	560		1,775	1,556	1,141	2,779	-0,975
	1300°C	930		2,456	2,193	1,120	2,358	-0,831
	1200°C	595		1,758	1,316	1,336	2,212	-0,814
	1200°C	990		4,292	3,75	1,145	3,788	-0,926
Polonais	1300°C	535		2,038	1,998	1,020	3,735	-0,966
	1300°C	890		2,775	2,651	1,047	2,979	-0,945
	1200°C	570		2,208	1,987	1,111	3,486	-0,872
	1200°C	950		2,883	2,497	1,155	2,628	-0,861

Tableau 4.5 : Coefficients A et B, coefficient de régression, constante  $a = \frac{A}{|B|}$  et rapport

$\frac{|B|}{\Delta t}$  avec  $\Delta t$  le temps de séjour dans la zone de reburning pour l'ensemble des charbons étudiés

La constante « a » est presque toujours contenue dans l'intervalle (1-1,2), ce qui confirme l'interprétation proposée du terme  $(a-st) \approx (1-st)$  comme expression de la concentration des espèces réductrices. La différence par rapport à la valeur attendue de 1 pourrait venir du caractère approximatif de la stœchiométrie de reburning théorique.

Le coefficient  $|B|$  augmente avec le temps de séjour mais la faible précision de cette valeur rend impossible une analyse plus poussée. Notons cependant que les cartographies effectuées lors du reburning au gaz naturel ont montré une situation très complexe notamment avec le temps de séjour dans la zone de reburning. En effet, ce temps de séjour théorique est calculé à partir de la vitesse moyenne des gaz de combustion dans le four et de la distance entre les points d'injection du combustible de reburning et de l'air de postcombustion. Pourtant, ce temps de séjour calculé n'est pas représentatif de la situation réelle : l'air de postcombustion re-circule dans la zone de reburning et perturbe les réactions de réduction des  $NO_x$ . Le temps de séjour réel dans la zone de reburning réductrice est donc plus court, on devrait l'appeler le « temps de réaction » plutôt que le temps de séjour.

Par ailleurs, le temps de réaction dépend également de la stœchiométrie de reburning théorique : pour obtenir une valeur faible de la stœchiométrie de reburning on augmente le débit de combustible de reburning ce qui oblige à augmenter aussi le débit d'air de postcombustion, pour avoir un excès d'air constant dans la troisième zone. Cette augmentation du débit d'air accentue la re-circulation de l'air dans la zone secondaire et perturbe encore davantage les réactions à l'intérieur de la zone de reburning.

Knill [32] propose par ailleurs une analyse plus large des données expérimentales obtenues par application du reburning au charbon sur un four à chute, en utilisant une relation similaire à l'équation (4.1). Son objectif est de corréliser la réduction relative des  $NO_x$  avec l'ensemble des paramètres d'études du reburning. Cette relation définit  $Z = \frac{\Delta NO_x}{NO_{xinit}}$  (%) sous forme tensorielle :

$$Z = C_0 + C_i \cdot x_i + C_{ij} \cdot x_i \cdot x_j \quad (4.2)$$

où  $i \geq j$  et  $x_i$  est une valeur normalisée du paramètre d'étude  $i$  : sa valeur est comprise entre -1 et 1.  $C_0$  est la réduction moyenne ;  $C_i$ ,  $C_{ij}$  sont des coefficients à estimer grâce aux résultats expérimentaux. Les indices  $i$  et  $j$  représentent les paramètres d'études retenues par Knill : le type de charbon de reburning, la taille des particules, la fraction de combustible de reburning, la stœchiométrie de la zone primaire, la température et la teneur initiale en  $NO_x$  à l'entrée de la zone de reburning et le temps de séjour de cette même zone. Pour chaque paramètre, trois valeurs ont été choisies. L'auteur a utilisé ce modèle afin de caractériser l'influence des paramètres du procédé sur les concentrations en  $NO_x$  et a indiqué que ces concentrations sont relativement bien prédites. Ce modèle présente toutefois quelques limites pour caractériser l'influence du type de charbon utilisé comme combustible de reburning. Les coefficients  $C_1$  et  $C_{1,j}$  sont très faibles par rapport à ceux liés à la température, à la teneur initiale en  $NO_x$  et au temps de séjour. D'autres auteurs proposent également des corrélations similaires de leurs données expérimentales en exprimant les coefficients notamment à partir des caractéristiques du charbon utilisé comme combustible de reburning [34]. Alors que Knill conclut que la réduction des émissions de  $NO_x$  dépend peu de l'indice de matières volatiles, certains [34] indiquent que cette caractéristique-ci est la plus importante au cours du reburning.

Bien que notre modélisation tentée ici soit très simpliste, elle s'apparente à certaines modélisations trouvées dans la bibliographie. Son intérêt résiderait dans sa capacité à reproduire les résultats obtenus sur d'autres installations pilotes ou industrielles. L'insuffisance du nombre de charbons étudiés ne permet néanmoins pas de l'élargir pour des combustibles de reburning aux caractéristiques différentes.

C'est aussi un outil d'interprétation des résultats futurs obtenus sur notre pilote dont une amélioration est possible grâce à une bonne exploitation des résultats de l'analyse par la mécanique numérique des fluides (C.F.D.). En particulier, une simplification des champs de températures et des concentrations doit être possible par des modifications adéquates des systèmes d'introduction de l'air de postcombustion.

### VI-3 Réduction des émissions de $\text{NO}_x$ et efficacité de la combustion

L'application potentielle du reburning sur des installations industrielles fait qu'il est nécessaire d'exprimer et d'analyser nos réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  et les augmentations de celles du CO qui en découlent, par rapport aux valeurs obtenues pour une flamme classique, avec un excès d'air de 20 % en sortie du brûleur. Pour s'approcher de la pratique industrielle, les teneurs en  $\text{NO}_x$  et en CO seront exprimées respectivement en  $\text{mgNO}_2.\text{Nm}^{-3}$  et  $\text{mgCO}.\text{Nm}^{-3}$  recalculés à 6 % d' $\text{O}_2$  comme le veulent les normes standards. Les valeurs numériques et les figures regroupées dans l'annexe 5 (tableaux A5.9 à A5.23, figures A5.5 à A5.16) visualisent l'influence des paramètres retenus pour cette étude.

Globalement, les réductions des émissions d'oxydes d'azote obtenues (Figures A5.5 à A5.8) ont donc été comprises entre 20 et 68 % par rapport à une combustion classique (flamme à 20 % d'excès d'air). Le maximum de réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  a été obtenu avec du charbon sud-africain (68 %). Les teneurs minimales en  $\text{NO}_x$  obtenues ont varié de 280 à 380  $\text{mg}.\text{Nm}^{-3}$  à 6 % d' $\text{O}_2$  selon la teneur initiale en  $\text{NO}_x$  à l'entrée de la zone de reburning. Pour l'ensemble des charbons, l'augmentation du temps de séjour et la diminution de la stœchiométrie de la zone de reburning ont accentué les réductions des émissions d'oxydes d'azote. Les meilleurs taux de dénitrification ont été obtenus pour une température de 1200 °C et un temps de séjour de 900 ms. Ces résultats ne diffèrent pas de ceux exprimés en fonction des données obtenues pour une flamme classique à excès d'air réduit (paragraphe VI-1) et de ceux obtenus avec le gaz naturel comme combustible de reburning. Ils montrent une influence similaire des paramètres considérés dans notre étude.

Comme lors du reburning au gaz naturel, en contrepartie des réductions des émissions de  $\text{NO}_x$ , les émissions de CO ont globalement augmenté (figures A5.9 à A5.12) : l'augmentation du temps de séjour et la diminution de la stœchiométrie théorique dans la zone de reburning, favorables à la réduction des émissions des  $\text{NO}_x$ , ont entraîné un accroissement considérable de la teneur en CO des fumées (figures A5.10 et A5.11). Cette augmentation est très influencée par la température à l'entrée de la zone de reburning : en particulier, à 1200 °C, elle peut atteindre 5000 % pour certains charbons. Lorsque le charbon français est utilisé comme combustible de reburning, les augmentations des émissions de CO atteignent 1000 % dès un temps de séjour de 600 ms. En fait, une température de 1200 °C a entraîné une injection tardive du combustible de reburning : la température à l'entrée de la zone de postcombustion était alors trop faible pour permettre la combustion des imbrûlés gazeux. A cette température, l'augmentation du CO est par ailleurs peu influencée par la teneur initiale en  $\text{NO}_x$  (réglages du brûleur). Pour les autres charbons, les augmentations des émissions de CO sont moins fortes, sauf pour des temps de séjour considérables (700-900 ms), plus proches des valeurs obtenues avec le gaz naturel. Pour une température initiale de 1300 °C,

l'augmentation du CO, moins importante, reste presque constante et pratiquement ne dépend pas du charbon.

La teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes a également eu tendance à augmenter. Cette augmentation est en général de l'ordre de 20 à 30 % et est faiblement influencée par la nature du charbon et par les autres paramètres considérés dans cette étude (figures A5.13 à A5.16). En effet, pour l'ensemble des charbons, à des températures de 1300 et de 1200 °C à l'entrée de la zone de reburning et aux deux teneurs initiales en NO<sub>x</sub> (réglages du brûleur : ST1 de 0,6 et 0,8), les augmentations des imbrûlés solides atteignent 21-30 % pour le charbon français, 17-24 % pour le colombien, 17-28% pour le sud-africain et 19-32 % pour le polonais. Toutefois, si l'on compare ces valeurs avec les résultats obtenus pour les deux réglages du brûleur (tableaux 4.1 et 4.3), on constate que cette augmentation d'imbrûlés solides peut être attribuée au faible excès d'air (5 % au lieu de 20 %) appliqué dans les expériences du reburning (28 à 29 % d'augmentation des imbrûlés solides entre les réglages 4-5 et 9-10, chapitre II, partie 2).

#### VI-4 Comparaison avec la bibliographie

Les études paramétriques de reburning au charbon sur les installations de taille importante étant rares, nous avons comparé nos résultats avec ceux obtenus sur deux installations de plus petite taille de l'Université de Leeds, un four à chute [83, 84] et un pilote vertical de 200 kW [34, 85]). Les deux installations utilisent comme combustible primaire du gaz naturel [83, 84] ou du propane [34, 85] additionnés d'ammoniac pour obtenir des concentrations initiales en NO<sub>x</sub> désirées. Les résultats concernant l'influence des paramètres d'études retenus dans notre étude sur la réduction des émissions de NO<sub>x</sub> sont représentés sur les figures 4.20 à 4.23. Nos résultats ont été par ailleurs exprimés par rapport aux données obtenues sur le pilote pour une flamme classique à 20 % d'excès d'air.

Pour une température initiale de 1200 °C, malgré les différences de stœchiométrie de reburning, nos résultats sont peu différents de ceux obtenus avec un pilote de 200 kW [34, 85], surtout si l'on compare les charbons avec des compositions similaires (figure 4.20). En effet, pour le charbon colombien que nous avons étudié et dont la teneur en azote et l'indice de matières volatiles sont similaires à celles d'un charbon anglais étudié par l'Université de Leeds (38 % de matières volatiles et 1,4 % d'azote), 1200 °C est une température à l'entrée de la zone de reburning permettant d'obtenir les meilleures réductions de NO<sub>x</sub> : elles sont de l'ordre de 40 à 60 % pour un temps de séjour maximal de 900 ms et une teneur initiale en NO<sub>x</sub> proche de 600 ppm (figure 4.20). Pour un charbon dont l'indice de matières volatiles est moins important (27 %) et la teneur en azote plus forte (1,7%), les réductions des NO<sub>x</sub> sont plus faibles de 10 à 20 %.

Dans la source citée [85], les données pour une température initiale 1300°C manquent mais on peut supposer que les réductions des NO<sub>x</sub> sont similaires à celles obtenues pour 1200°C alors que nous avons expérimentalement constaté une baisse des performances (figure 4.20). Cette différence peut être attribuée à la spécificité de notre four dont le combustible principal est du charbon pulvérisé, alimentant un brûleur bas-NO<sub>x</sub>. Une température initiale de 1300°C exige l'injection du combustible de reburning trop près de brûleur, ce qui entraîne un temps de séjour dans la zone primaire trop faible. Le combustible principal ne brûle pas complètement, la totalité de l'azote de ce combustible n'est pas oxydé ; la zone réductrice commence donc trop tôt. L'azote retenu dans le coke est oxydé par l'air de postcombustion entraînant la formation de NO<sub>x</sub> dans cette zone. Le pourcentage de réduction des oxydes

d'azote ayant lieu dans la zone de reburning est réduit avec la formation de  $\text{NO}_x$  dans la troisième zone.

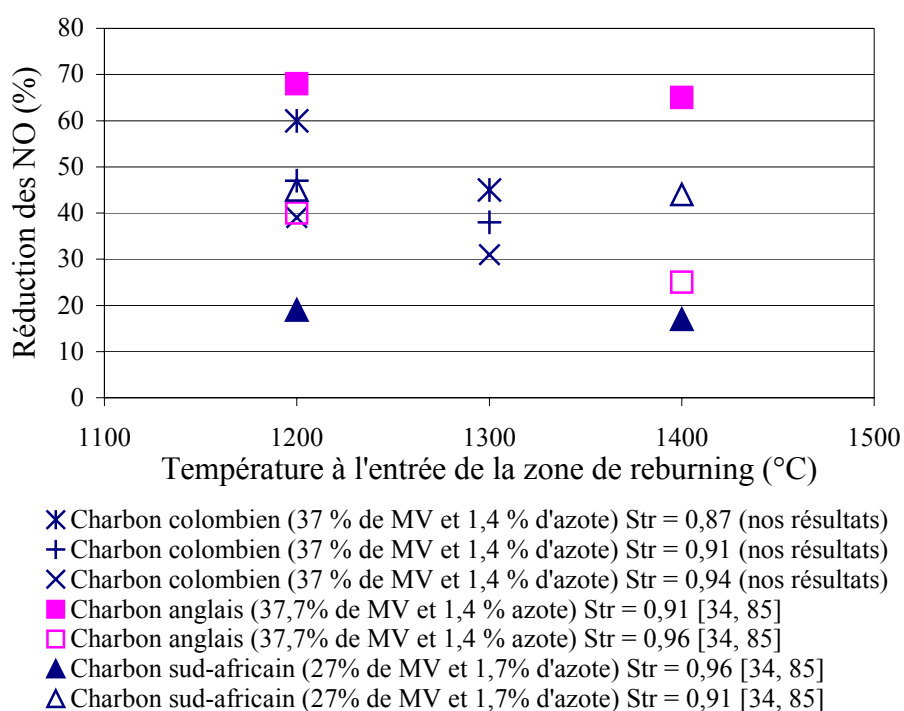


Figure 4.20 : Influence de la température à l'entrée de la zone de reburning sur les réductions des émissions de  $\text{NO}_x$ ; comparaison de nos résultats (charbon colombien, teneur initiale en  $\text{NO}_x$  de 547 ppm, temps de séjour de 900 ms) avec ceux obtenus avec un pilote de 200 kW (stœchiométrie primaire = 1,03, teneur initiale en NO = 600 ppm) [34, 85]

Les résultats obtenus sur les trois installations de taille différente (four à chute, four de 200 kW, notre pilote de 4 MW) confirment l'influence de la stœchiométrie de la zone de reburning : plus elle diminue (augmentation du débit de combustible de reburning à stœchiométrie de la zone primaire constante), plus importantes sont les réductions des émissions d'oxydes d'azote (figure 4.21) [34, 83, 84, 85].

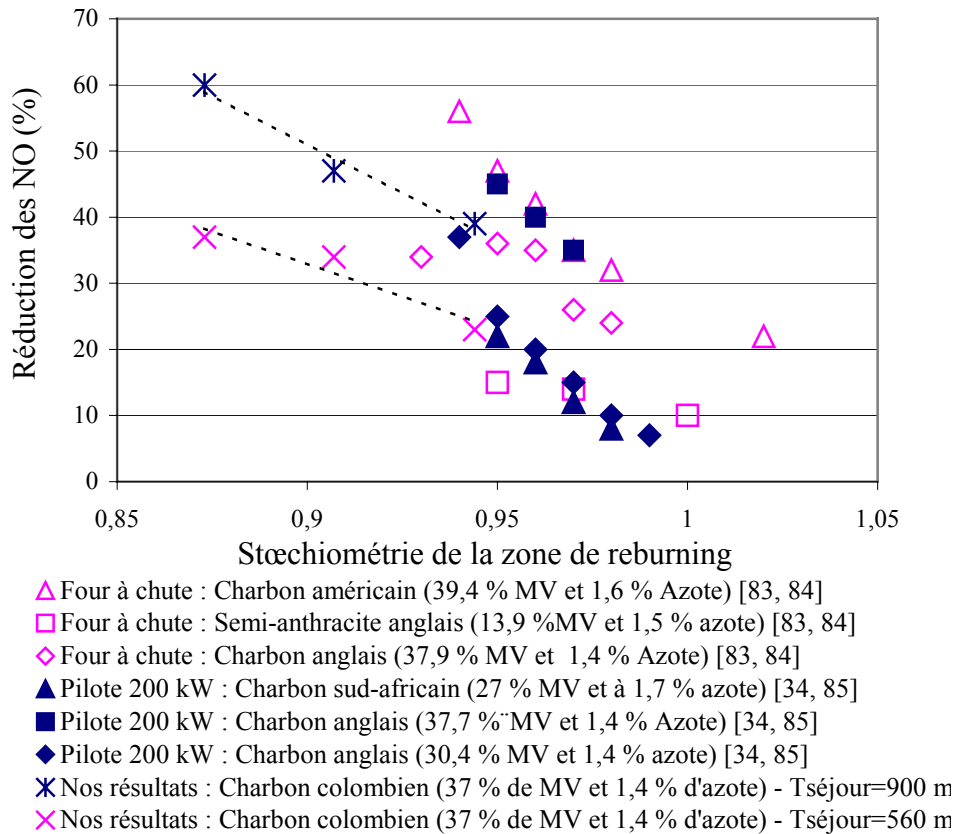


Figure 4.21 : Influence de la stœchiométrie de la zone de reburning sur les réductions des émissions des  $NO_x$  ; comparaison de nos résultats (charbon colombien, température initiale de 1200 °C, teneur en  $NO_x$  initial de 547 ppm) avec ceux obtenus avec un four à chute [83,84] et avec un pilote de 200 kW [34, 85] (stœchiométrie de la zone primaire de 1,08 et de 1,03, teneur initiale en  $NO_x$  de 650 et 600 ppm et température à l'entrée de la zone de reburning de 1100 °C et de 1200 °C).

Globalement, plus le temps de séjour dans la zone de reburning augmente, plus les réductions des émissions d'oxydes d'azote sont importantes (figure 4.22), pour les trois installations et dans l'intervalle de 200 à 1000 ms. La tendance de nos résultats obtenus avec le charbon polonais est comparable à celle des résultats obtenus avec les charbons anglais et américain dont les caractéristiques sont légèrement différentes du charbon que nous avons étudié.

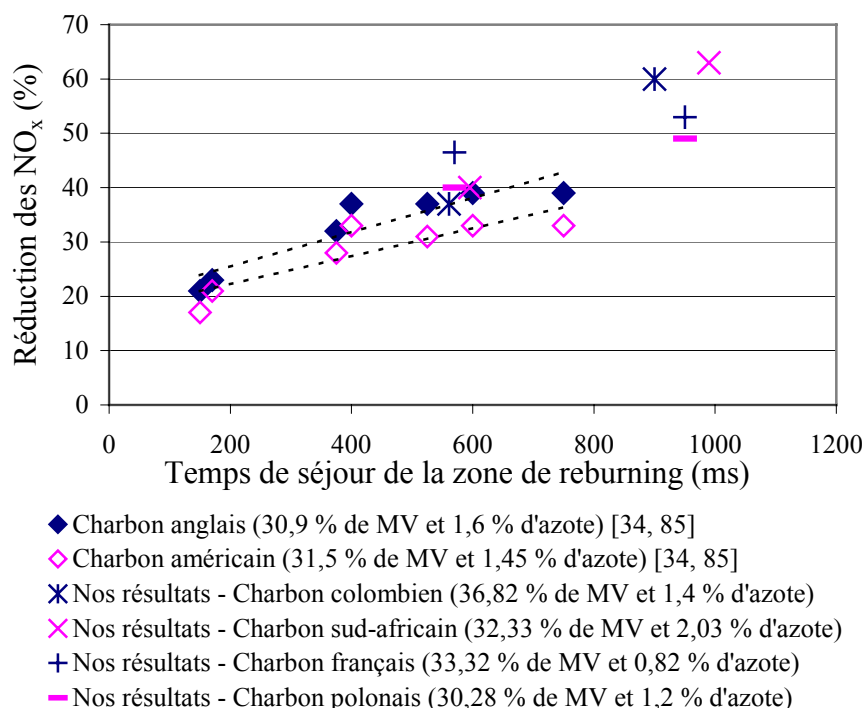


Figure 4.22 : Influence de la stœchiométrie de la zone de reburning sur les réductions des émissions des NO<sub>x</sub> ; comparaison de nos résultats (charbon colombien, température initiale de 1200 °C, teneur en NO<sub>x</sub> initial de 547 ppm) avec ceux obtenus avec un four à chute [83,84] et avec un pilote de 200 kW [34, 85] (stœchiométrie de la zone primaire de 1,08 et de 1,03, teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 650 et 600 ppm et température à l'entrée de la zone de reburning de 1100°C et de 1200°C).

Nos résultats indiquent que l'augmentation de la teneur initiale en NO<sub>x</sub> (de 400 à plus de 600 ppm) permet d'obtenir des réductions des émissions d'oxydes d'azote constantes voire plus faibles pour les charbons européens et légèrement plus importantes pour les charbons de l'hémisphère sud dont les teneurs en azote volatile sont les plus élevées.

D'après la bibliographie ([34, 83-85], chapitre III, partie 1), pour une teneur initiale en NO<sub>x</sub> faible, les espèces azotées (HCN, NH<sub>i</sub>) formées dans la zone de reburning par les réactions des radicaux hydrocarbonés avec les oxydes d'azote ou de l'azote contenu dans le combustible de reburning se transforment partiellement en oxydes d'azote avec l'air de postcombustion. La formation de NO<sub>x</sub> dans la troisième zone compense partiellement la réduction des NO<sub>x</sub> par le reburning et peut même aboutir à une augmentation de la teneur en NO<sub>x</sub>, comme on le voit sur la figure 4.23. Au-delà d'une teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 600 ppm, les réductions obtenues avec un pilote de 220 kW sont sensiblement constantes pour les deux charbons utilisés comme combustible de reburning (figure 4.23). D'après [85], l'indice de matières volatiles est la caractéristique du charbon de reburning qui influe beaucoup sur l'efficacité du reburning au charbon. Les auteurs obtiennent, avec un pilote de 200 kW, 35 % de réduction des émissions de NO<sub>x</sub> pour un charbon à 30,9 % de matières volatiles et près de 50 % de réduction pour un charbon à 37,7 % de matières volatiles (teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 550 ppm). Liu *et al.* [83, 84] ont observé l'influence de l'azote volatil sur l'efficacité du reburning notamment pour une teneur initiale en NO<sub>x</sub> élevée.

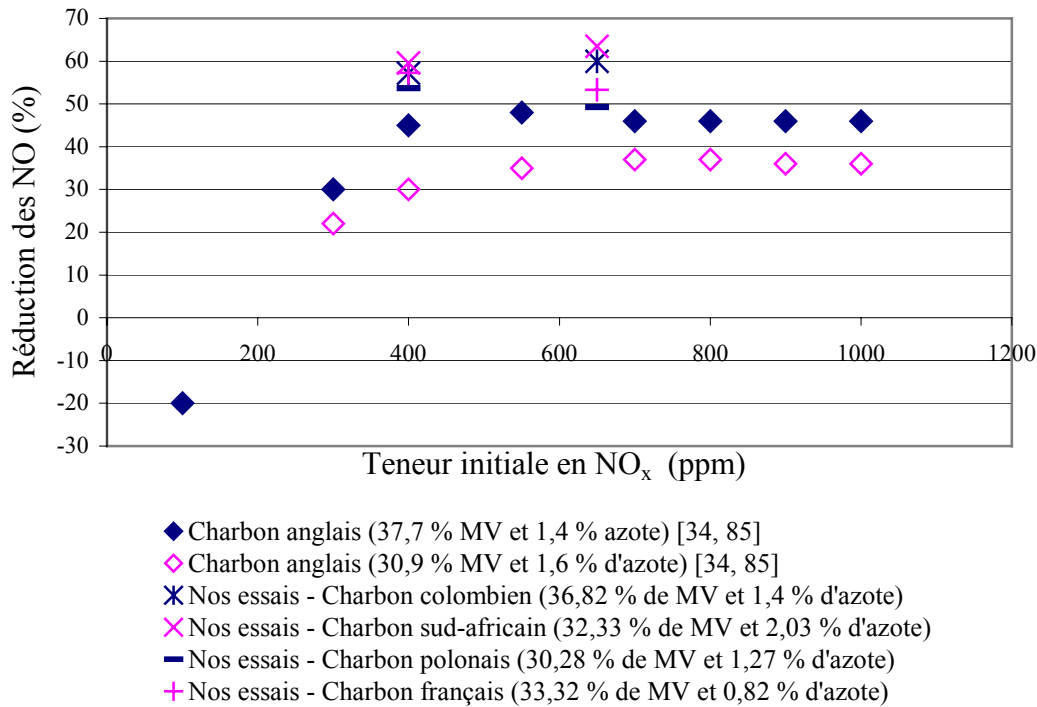


Figure 4.23: Influence de la teneur initiale en NO sur la réduction des NO<sub>x</sub> ; comparaison de nos résultats (température de 1200 °C, temps de séjour de 900 ms, débit de 80 kg.k<sup>-1</sup>) avec ceux obtenus sur un pilote de 200 kW (stœchiométrie primaire de 1,01-1,03, stœchiométrie de reburning de 0,94, stœchiométrie de postcombustion de 1,06-1,08, température de 1300°C) [34, 85]

La différence de ces résultats avec ceux obtenus au cours de notre étude peut s'expliquer non seulement par la complexité de l'hydrodynamique des gaz de combustion dans notre four pilote mais également par les différences de nature de charbons étudiés. La décomposition du charbon utilisé comme combustible de reburning en radicaux hydrocarbonés et la réaction de ces derniers avec les oxydes d'azote doivent dépendre à la fois de la teneur en azote et de l'indice de matières volatiles. Comme nous l'avons remarqué auparavant, l'utilisation de charbons dont les teneurs en azote volatil (et total) sont plus importantes permet d'obtenir des réductions des émissions des oxydes d'azote relativement meilleures.

## VII - Conclusion et comparaison avec le reburning au gaz naturel

Nos résultats obtenus sur un pilote de 4 MW, avec les charbons comme combustible de reburning, et en particulier avec les charbons de l'hémisphère sud étudiés ici, sont comparables à ceux obtenus avec le gaz naturel. Dans l'ensemble, nos résultats sont également proches de ceux, cités dans la littérature, obtenus sur des installations de laboratoire, malgré la complexité de notre four. Dans les deux cas, les réductions les plus élevées des concentrations en NO<sub>x</sub> ont été proches de 60%, avec une température optimale à l'entrée de la zone de reburning de 1200°C.

La diminution de la stœchiométrie nominale de la zone de reburning et l'augmentation du temps de séjour nominal dans cette même zone (pour une stœchiométrie de la zone primaire constante) permettent lors du reburning au gaz naturel et au charbon d'accentuer les



réductions des émissions de  $\text{NO}_x$ . L'augmentation de la température à l'entrée de la zone de reburning devrait entraîner une décomposition plus avancée du gaz naturel de reburning en radicaux  $\text{CH}_i$ , et provoquer une meilleure dévolatilisation du charbon de reburning produisant non seulement des radicaux  $\text{CH}_i$  mais également des composés azotés volatils efficaces dans la réduction des oxydes d'azote.

Globalement, l'augmentation de la teneur initiale en  $\text{NO}_x$  entraîne de meilleures réductions des émissions de  $\text{NO}_x$ . Ces réductions (relatives) deviennent toutefois constantes voire légèrement plus faibles pour des teneurs initiales élevées (supérieures à 550 ppm) lors du reburning au gaz naturel ou au charbon à teneur en azote fixé (ou volatil) faible (charbons européens). La bibliographie [43, 45, 85] nous montre que cette valeur limite de la teneur initiale en  $\text{NO}_x$ , au-delà de laquelle les pourcentages de réduction restent constants, dépend non seulement de l'installation (voir partie 3) mais également des caractéristiques du charbon utilisé comme combustible de reburning (teneur en azote et indice de matières volatiles).

L'interaction de l'ensemble de ces paramètres opératoires (température, temps de séjour, stœchiométrie, teneur initiale en  $\text{NO}_x$ ) conditionnent le pourcentage de réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  mais dans le cas du reburning au charbon, les propriétés ou la nature du charbon (teneur en azote total et en azote volatil, indice de matières volatiles) utilisé comme combustible de reburning devraient être également prises en compte. Bien que dans la bibliographie, les influences de ces caractéristiques soient remarquées [34, 83-85], un nombre limité de charbons de reburning utilisés dans nos expériences et des intervalles relativement limités de variations de ces propriétés ne nous ont toutefois pas permis de vérifier la validité de ces affirmations. Par ailleurs, comme nous l'indique la bibliographie [31, 43], les valeurs optimales de ces paramètres, permettant d'obtenir le maximum de réduction, dépendent aussi de l'installation (échelle, hydrodynamique des gaz de combustion, injection du combustible de reburning et de l'air de postcombustion...).

La réduction de la teneur en  $\text{NO}_x$  s'accompagnent toutefois d'une diminution de l'efficacité de combustion, plus forte pour le reburning au charbon que lors du reburning au gaz naturel (teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes importantes). Les difficultés rencontrées au cours de la mise en œuvre du reburning au charbon sont aussi plus importantes notamment en raison du transport et de l'injection du charbon. Une injection « optimale » du charbon, accompagnée d'un paramétrage précis du reburning, doit être appliquée afin de réduire les oxydes d'azote tout en maintenant une bonne efficacité de combustion.

Le prix d'achat du gaz naturel très élevé (deux à trois fois supérieur à celui du charbon) entraîne un coût de revient du reburning assez élevé. Néanmoins, la perte de rendement énergétique due à la production d'imbrûlés solides et gazeux justifie le choix d'un charbon de reburning finement broyé permettant une combustion optimale, ce qui accentue le coût global du reburning au charbon. En réalité, ces deux combustibles peuvent entraîner des coûts relativement similaires mais qui peuvent varier en fonction de l'installation sur lequel le reburning doit être appliqué et également en fonction de la disponibilité du combustible sur le site industriel.

## Chapitre II

# Cartographies de flammes à charbon pulvérisé lors du reburning au charbon

### Introduction

Les expérimentations avec le gaz naturel comme combustible de reburning ont permis de mettre en évidence la re-circulation de l'air de postcombustion dans la zone de reburning. Cette re-circulation réduit le temps de séjour dans la zone de reburning et nuit à la réduction des oxydes d'azote. Nous avons donc entrepris lors de notre étude du reburning au charbon de vérifier l'influence de l'inclinaison des jets d'air de postcombustion sur cette re-circulation. Notre objectif a été de limiter cette re-circulation afin d'obtenir un temps de séjour réel plus important dans une zone de reburning réductrice, cela afin de réduire efficacement les  $\text{NO}_x$ .

La couronne d'air de postcombustion a donc été équipée de déflecteurs permettant d'orienter l'injection de l'air en aval de l'écoulement. Les jets d'air sont en effet orientés de  $25^\circ$  par rapport à la verticale dans le sens de l'écoulement. Deux cartographies ont été effectuées afin de voir l'influence de cette orientation dans les conditions expérimentales présentées dans le tableau 4.6, avec du charbon français issu de la mine de Freyming.

	Cartographie 1	Cartographie 2
Température entrée zone de reburning ( $^\circ\text{C}$ )	1200	1200
Type de charbon	Français	Français
Réglage du brûleur	10	10
Stœchiométrie théorique de reburning	0,82	0,82
Temps de séjour dans la zone de reburning (ms)	900	600

*Tableau 4.6 : cartographies réalisées*

Les mesures ont été effectuées radialement de 0 à 750 mm. Les distances axiales sont données par rapport à l'ouverture du brûleur. Les cartographies réalisées lors des

expérimentations du reburning au charbon sont présentées dans les figures 4.24 à 4.28 et dans l'annexe 6.

## I - Résultats et discussions

### I-1 Cartographie 1

La cartographie 1 (figures 4.24 et 4.25) nous indique que, suite à l'injection du charbon, la teneur en CO est devenue très importante non seulement au centre du four mais également à proximité des parois, contrairement à ce qu'il a été obtenu pour le reburning au gaz naturel (partie 3, chapitre II, cartographie 1) où, dans les mêmes conditions, la teneur en CO était localisée uniquement au centre du four. La teneur se réduit ensuite progressivement dans la zone de reburning.

De même, la teneur en oxygène a été fortement réduite suite à l'injection du charbon : elle a été inférieure à 1 % à la fois au centre du four mais également à proximité des parois. Par la suite, elle a progressivement augmenté quelques mètres avant l'injection de l'air.

La réduction des NO<sub>x</sub> a été très forte au centre du four dans la zone de reburning et a continué jusqu'à l'entrée de la troisième zone.

La teneur en CO<sub>2</sub> a été très importante dans la zone de reburning notamment à proximité des parois suite à la re-circulation de l'air dans cette zone.

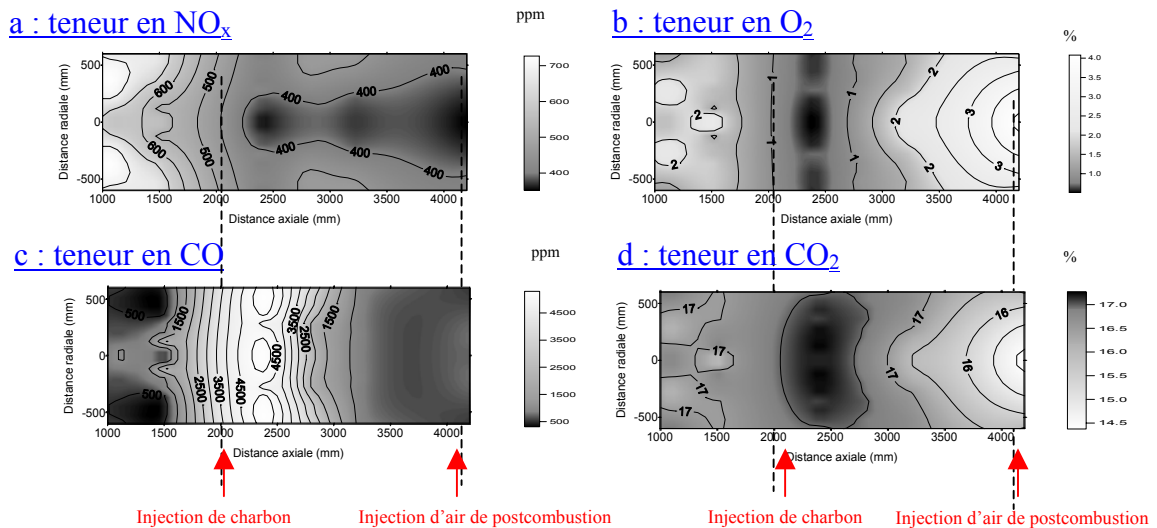


Figure 4.24 : Cartographie 1

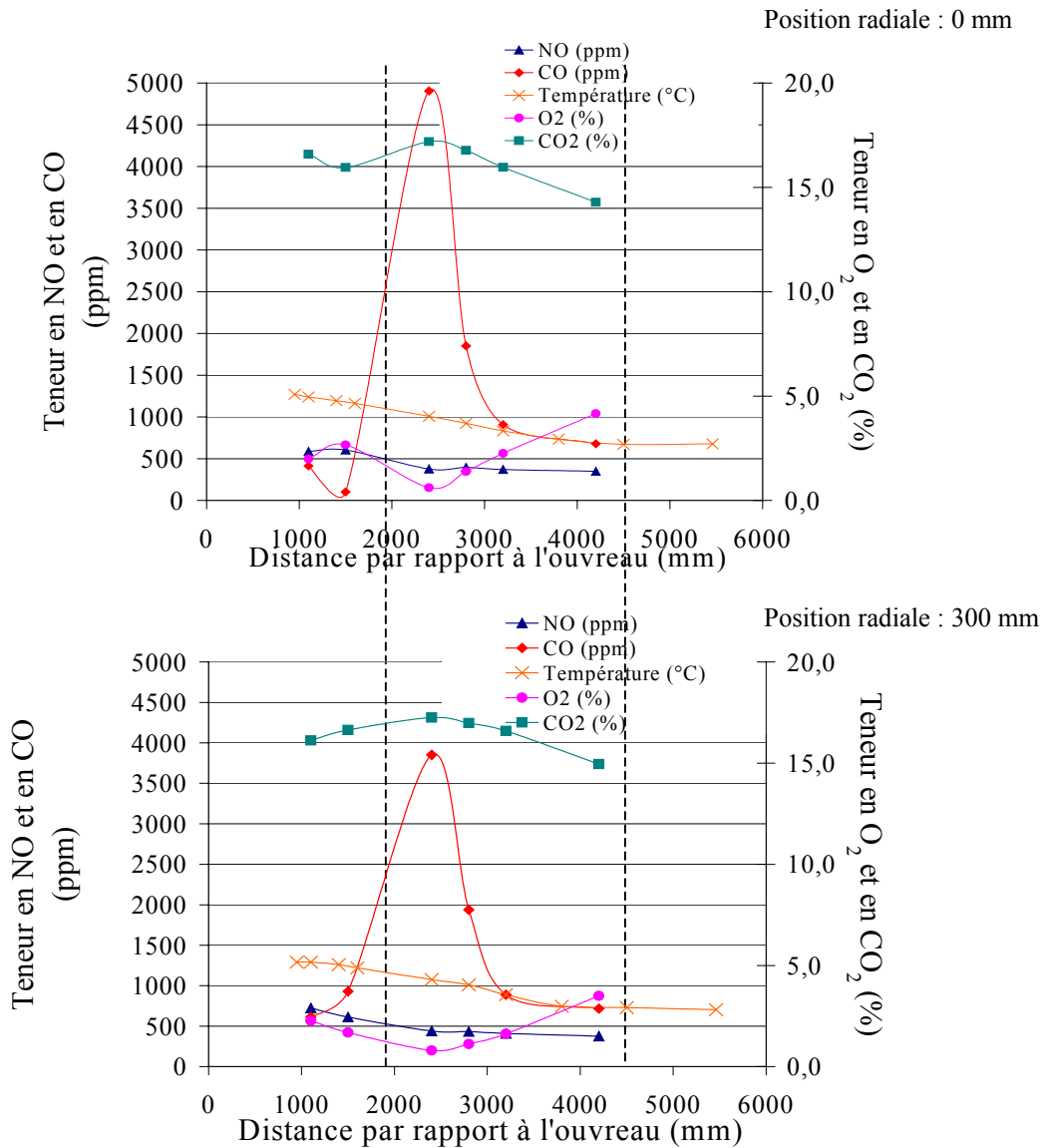


Figure 4.25 : Evolution axiale des teneurs en gaz et de la température dans le four pilote lors de l'application du reburning au charbon français (cartographie 1 ; position radiale : 0 et 300 mm)

## I-2 Cartographie 2

La diminution du temps de séjour de 900 à 600 ms a perturbé les trois zones de combustion. Comme pour la cartographie 1, la teneur en CO a augmenté suite à l'injection du charbon pour se réduire brutalement au centre du four suite à l'injection et à la re-circulation de l'air de postcombustion dans la zone de reburning. Cette teneur est toutefois moins importante que celle obtenue avec un temps de séjour plus grand dans la zone de reburning.

La zone réductrice a été décalée vers les parois du four. La teneur en oxygène est en effet inférieure à 1 % uniquement au niveau du lieu d'injection du charbon c'est-à-dire à proximité des parois. Elle augmente progressivement par la suite le long de la zone de reburning. La teneur en CO<sub>2</sub> est également localisée au niveau des parois à proximité des zones en déficit d'oxygène. La réduction des NO<sub>x</sub> est importante dans la zone de reburning suite à l'injection du charbon. Une zone de réduction des NO<sub>x</sub> est par ailleurs localisée dans la zone de postcombustion peu après le lieu d'injection de l'air (figures 4.26 et 4.27).

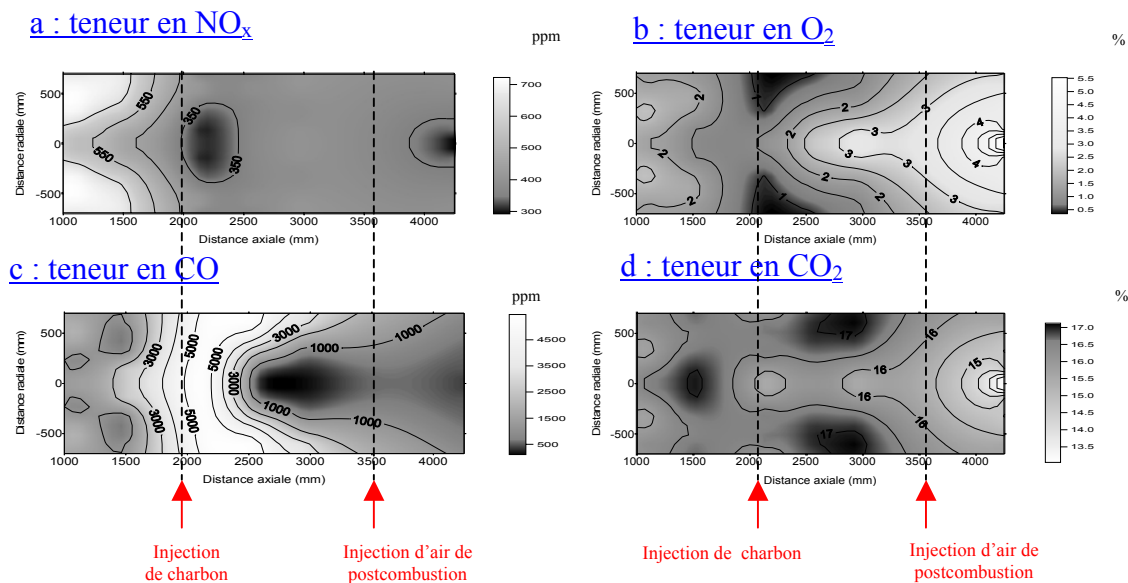
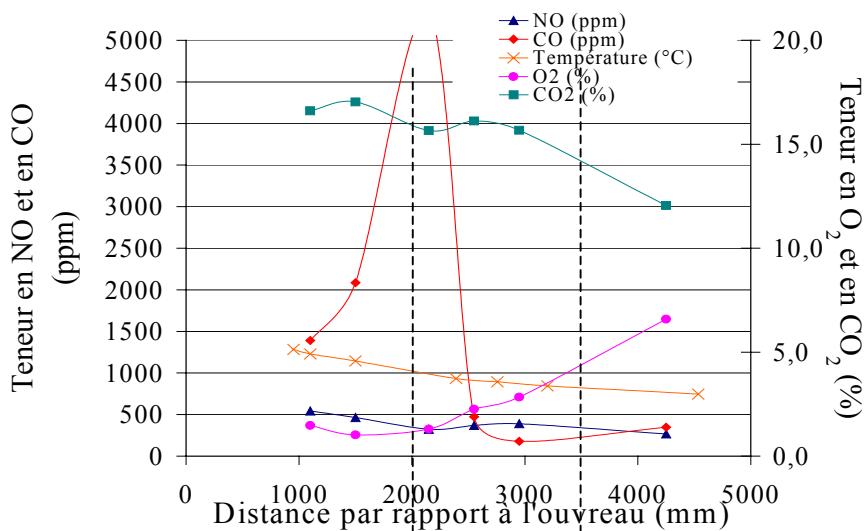


Figure 4.26 : Cartographie 2

Position radiale : 0 mm



Position radiale : 300 mm

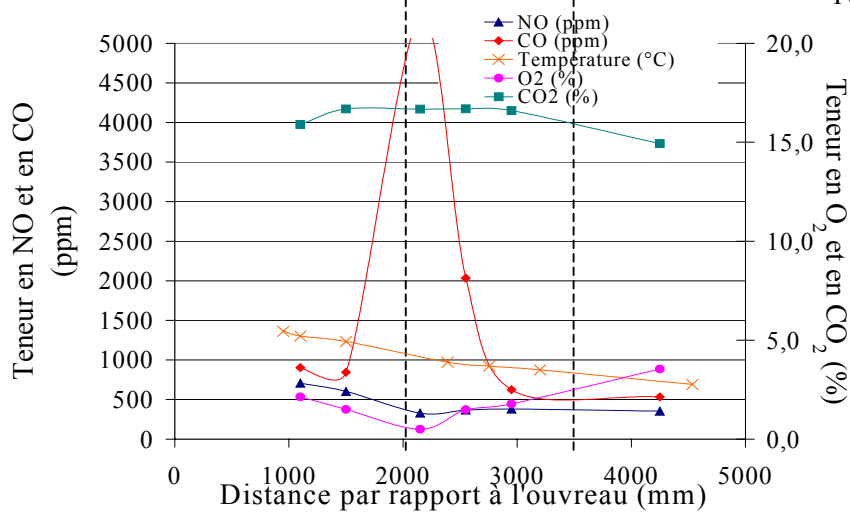


Figure 4.27 : Evolution axiale des teneurs en gaz et de la température dans le four pilote lors de l'application du reburning au charbon français (cartographie 2 ; position radiale : 0 et 300 mm)

### I-3 Cartographies de température

Les cartographies 1 et 2 (figure 4.28) nous indiquent que la température à l'entrée de la zone de reburning était respectivement de 1250 °C pour la cartographie 1 conformément à nos réglages et de 1150 °C pour la cartographie 2. La température à l'entrée de la zone de postcombustion était d'environ de 700 °C pour la cartographie 1 et de 850 °C pour la cartographie 2.

La diminution du temps de séjour de la zone de reburning de 900 à 600 ms a légèrement modifié les gradients de températures dans le four (différence de 100 à 150 °C). La zone de reburning était devenue plus froide avec un temps de séjour plus court. La re-circulation de l'air dans la zone de reburning diminue en effet la température. Néanmoins, la température de la zone de postcombustion était plus élevée pour un temps de séjour court, la combustion du coke étant améliorée par l'injection de l'air dans une zone de température optimale.

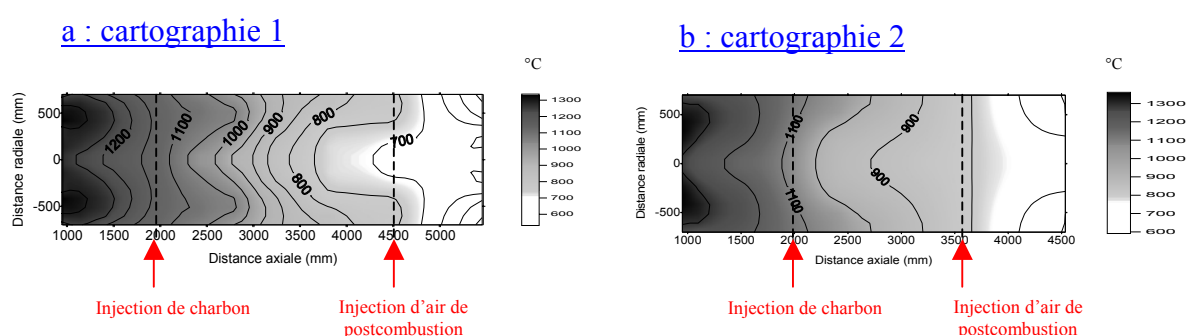


Figure 4.28 : Cartographies de température

## II - Conclusion

Comme lors du reburning au gaz naturel, les deux cartographies de reburning au charbon mettent nettement en évidence les trois zones caractéristiques du procédé reburning. L'injection du charbon (combustible de reburning) et la formation de la zone de reburning réductrice, qui en a découlé, sont facilement remarquables notamment par la teneur en  $O_2$  inférieure à 1 %, par la brusque augmentation de la teneur en CO et par la réduction progressive des NO. Néanmoins, cette zone ne se localise uniquement pas au centre du four mais est présente également à proximité des parois générant une zone de déficit d'air assez homogène sur le plan transversal passant par les points d'injection du combustible de reburning (figures 4.24 et 4.26).

Les graphes nous montrent que malgré l'orientation des jets d'air de postcombustion dans le sens de l'écoulement, une partie de cet air a re-circulé dans la zone de reburning. Cette re-circulation a plus ou moins perturbé les réactions dans la zone de reburning selon la longueur de cette dernière. Les teneurs en NO finales mesurées au carneau sont égales à 302 ppm ( $565 \text{ mg.Nm}^{-3}$  à 6 % d' $O_2$ ) pour la cartographie 1 et à 325 ppm ( $583 \text{ mg.Nm}^{-3}$  à 6 % d' $O_2$ ) pour la cartographie 2. Par rapport aux essais paramétriques de reburning au charbon français où l'injection de l'air de postcombustion était radiale, nous enregistrons une augmentation de la teneur en NO finale de 50 à 70 ppm. De plus, en entraînant une augmentation de 0,80 % de la teneur en  $CO_2$  finale et une réduction importante de la teneur en

CO finale, l'orientation de l'air de postcombustion permet une meilleure combustion dans la troisième zone.

Par la modification de la longueur de la zone de reburning, le gradient de température a été modifié : bien que le temps de séjour de 600 ms perturbe les réactions dans la zone de reburning et diminue la réduction des  $\text{NO}_x$  dans la zone de reburning, l'injection de l'air de postcombustion permet de terminer la combustion du coke. Pour la cartographie 2, la teneur en  $\text{CO}_2$  mesurée au carneau est légèrement plus importante (14,01 % au lieu de 13,63 % pour la cartographie 1) et parallèlement, la teneur en CO est fortement réduite (967 ppm au lieu de 4336 ppm pour la cartographie 1).

Globalement, les évolutions axiales des teneurs en gaz et de la température sont correctement comparables à celles obtenues sur des pilotes de plus petites tailles (chapitre III, partie 1). Cela permet de conclure à la légitimité et à la validité des données acquises lors de l'application du reburning sur le four pilote.

## Conclusion

Des expérimentations de reburning au charbon ont été effectuées sur le four pilote du CERCHAR afin d'étudier l'influence de cinq paramètres sur ce procédé : la température et la teneur en  $\text{NO}_x$  à l'entrée de la zone de reburning, la stœchiométrie et le temps de séjour dans cette même zone et la nature du charbon utilisé comme combustible secondaire (teneur en azote et indice de matières volatiles).

Quatre charbons (deux charbons issus de l'hémisphère sud et deux issus de l'hémisphère nord) ont été testés comme combustible de reburning avec des teneurs en azote variant de 0,82 à 2,03 % et des indices de matières volatiles allant de 30 à 36 %. Les réductions varient de 20 à 68 % par rapport à une flamme de référence à 20 % d'excès d'air selon les conditions opératoires du reburning. Les résultats ont par ailleurs montré l'influence de la teneur en azote du combustible de reburning sur les réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  par le reburning et celle moins notable de l'indice de matières volatiles. Toutefois, dans des conditions permettant de réduire au maximum les émissions de  $\text{NO}_x$  (température de 1200 °C, temps de séjour de 900 ms dans la zone de reburning, teneur en  $\text{NO}_x$  de 547 ppm et stœchiométrie théorique de reburning de 0,82), les charbons de reburning possédant une teneur en azote volatile plus importante (charbon colombien et sud-africain) permettent d'obtenir des réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  plus importantes (68 %).

Comme dans le cas du reburning au gaz naturel, la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  par le reburning au charbon a entraîné une augmentation des imbrûlés gazeux (teneur en CO) et solides (teneur en imbrûlés dans les cendres volantes), selon le type de charbon de reburning utilisé. Toutefois, bien que la teneur en imbrûlés solides augmente avec l'application du reburning sur le four pilote, elle est en grande partie due à la réduction de l'excès d'air en sortie du brûleur. En effet, l'excès d'air normal de 20 % (excès d'air pour une flamme de référence) doit être réduit à 5 % afin d'obtenir une zone secondaire réductrice. L'ensemble génère une production importante d'imbrûlés solides et une diminution de l'efficacité de combustion.

Nos résultats ont été comparés à ceux obtenus dans différentes études avec des pilotes de plus petite taille. Les comparaisons sont globalement bonnes, les faibles dispersions observées dans les résultats peuvent être considérées comme due partiellement aux différences dans les installations.

Une première tentative de modélisation a permis de caractériser la réduction des  $\text{NO}_x$  en fonction des valeurs théoriques (calculées) de la stœchiométrie de reburning et du temps de séjour dans la zone de reburning. Ces valeurs ne sont en fait pas indépendantes l'une de l'autre en raison de la re-circulation de l'air de postcombustion plus importante pour une stœchiométrie de reburning plus faible. Pour cela, le temps de séjour réel que l'on peut appeler temps de réaction diffère du temps de séjour calculé. Cette première modélisation est cependant trop grossière pour pouvoir prétendre à expliquer le procédé. Aussi, il est nécessaire d'avoir recours à d'autres méthodes permettant soit de considérer le procédé étudié comme une « boîte noire » où l'on peut connaître la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  à partir de différentes valeurs des paramètres d'études sans déterminer véritablement la fonction les reliant, soit en prenant en compte l'aspect chimique et/ou l'aspect hydrodynamique du procédé. A partir du moment où le procédé peut être correctement modélisé, il est possible d'apporter d'éventuelles améliorations quant à la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$ .





## **PARTIE 5**

# **LES RESEAUX DE NEURONES**



# Chapitre I

## Présentation des réseaux de neurones

### Introduction

Le reburning même sur notre four pilote est un procédé difficile à modéliser en raison de la complexité de l'installation (four « à parois froides », brûleur bas-NO<sub>x</sub>), du type de combustible utilisé comme combustible de reburning (charbons à différentes teneurs en azote fixé et en azote volatile) et des paramètres opératoires dont les valeurs « théoriques » s'éloignent des conditions réelles (temps de séjour) et dont l'indépendance les uns des autres a été remise en cause au cours de nos essais (stœchiométrie et temps de séjour). Dans les parties 3 et 4, nous avons présenté une tentative de modélisation fondée sur des hypothèses simplifiées de cinétique des réactions de destruction des NO<sub>x</sub> et d'évolution des concentrations dans la zone de reburning. Les résultats assez encourageants pour le reburning au charbon ont été plutôt décevants pour celui au gaz naturel, sans doute en raison des simplifications excessives qui ne prennent pas en compte les aspects liés de cinétique chimique et d'hydrodynamique des gaz de combustion. Une autre approche « plus industrielle » est possible et concerne la prédiction du comportement d'un procédé, en utilisant une modélisation faisant abstraction de phénomènes chimiques et/ou hydrodynamiques trop complexes. Plusieurs techniques permettant cette prédiction existent et font partie de ce que les industriels appellent, les techniques de contrôle ou de prédiction de processus.

### I - Techniques de contrôle de processus : les réseaux de neurones

#### I-1 « Contrôle avancé »

Ces dernières années ont vu l'arrivée de nouvelles techniques appelées "contrôle ou conduite avancée" [86]. Si la progression de ces nouvelles techniques est relativement lente, c'est parce qu'elles impliquent "une nouvelle approche de l'automatique, voire une nouvelle redistribution des rôles entre spécialistes du process, automaticiens et instrumentistes". Il est possible de proposer la définition ci-après : "une conduite avancée vise à optimiser la stabilité d'un procédé, mais aussi les coûts d'exploitation de l'unité, le prix de revient du produit, la qualité de celui-ci, etc" [86]. Les techniques de contrôle avancé ne servent donc pas

simplement à résoudre des problèmes de contrôles difficiles et à atteindre un but donné (systèmes non linéaires, à temps morts, instables, etc.), elles consistent également en l'estimation de l'état futur d'un processus à partir d'un historique de son comportement et des variables environnementales attenantes. Par-là même, elles servent surtout à améliorer la qualité du contrôle et donc la productivité. Certaines industries soumises à une très forte concurrence ont été les premières à s'équiper.

Parmi ces techniques de contrôle avancé, il est alors possible d'utiliser [86] :

- la **commande prédictive** qui est une technique bien adaptée pour faire une hypothèse sur le *futur de la variable manipulée*. Elle consiste à comparer l'état du processus par rapport au modèle, afin de prédire le comportement futur du processus. Les applications les plus significatives se situent dans le domaine du pétrole et de la sidérurgie.
- les **systèmes experts à la conduite** qui permettent de superviser et d'apporter un concours précieux pour prendre des décisions lorsqu'une situation anormale se présente. Ils reproduisent le comportement et le mode de raisonnement d'un expert humain (opérateurs) et non celui du procédé.
- la **commande floue** qui est une commande dite à base de règles, reflétant le comportement des opérateurs face aux circonstances de fabrication. Elle permet de réaliser du contrôle-commande et de reproduire également le comportement d'un expert humain (et son mode de raisonnement).
- les **réseaux de neurones** également appelés réseaux neuromimétiques ou réseaux de neurones formels qui sont des calculs (ou algorithmes), généralement réalisés à l'aide d'un ordinateur. Ces derniers peuvent correctement imiter ou prévoir le comportement de n'importe quel processus en fonction des facteurs qui influencent ce processus et qui déterminent ce comportement. Ils fonctionnent par apprentissage : à partir de données existantes, ils modélisent ce processus généralement non-linéaire et prédisent son comportement (données de sortie) en fonction de différentes données opératoires (données d'entrée).

## I-2 Utilisation d'un réseau de neurones formels

Le réseau de neurones résout donc un problème statistique ; leur aptitude à imiter et à prévoir des comportements, après apprentissage par l'exemple, leur donne des applications dans des domaines très divers : simulation par ordinateur ou prédiction du comportement de processus complexes industriels (installations industrielles), grand public (voitures), financiers (marketing) ou naturels (écosystèmes) ; reconnaissance des formes, des signaux et des événements [87].

Il est ainsi capable, par exemple, de prévoir le flux de chaleur en fonction de corrélations empiriques, le taux de combustion d'un charbon en fonction des conditions de combustion et de la nature du charbon et même la teneur en NO<sub>x</sub> lors de l'application du procédé reburning sur une installation en fonction des conditions opératoires de cette installation (voir paragraphe V).

## II - Généralités sur les réseaux de neurones formels

### II-1 Description

Inspiré du système nerveux biologique où le neurone engendre un signal dès qu'il a reçu un stimulus, un réseau neuromimétique est composé de plusieurs processeurs

élémentaires nommés « neurones formels » (ou simplement neurones) et dotés d'un état interne, l'activation, par lequel ils influencent les autres neurones du réseau. Cette activité se propage à ces autres neurones au moyen d'un ensemble de connexions (ou de synapses), chaque connexion étant caractérisée par un coefficient (force ou poids)  $w_i$ . La règle qui détermine l'activation d'un neurone en fonction de l'influence de ses pairs est appelée règle ou fonction d'activation. Les variables indépendantes de cette fonction sont habituellement appelées « entrées » du neurone, et la valeur de la fonction est appelée sa « sortie » [87].

Dans les neurones formels les plus fréquemment utilisés, une étape interne de calcul permet de transformer les influences ou connexions entre neurones en une valeur unique, l'activation pondérée  $v$ , à partir des entrées  $x_i$ , paramètres du réseau, pondérées par les poids  $w_i$ . Dans les neurones à seuil, un seuil d'activation  $\Theta$  est déterminé afin d'être comparé à l'activation pondérée ; en dessous de ce seuil, le neurone ne répond pas ou peu. De façon générale, la fonction d'activation ou de transfert  $f$  détermine l'activation réelle du neurone,  $y$ , à partir de son activité pondérée et de son seuil [88, 89]. Dans le cas simple d'un seul neurone, on notera :

$$v = \sum_{i=1}^n w_i x_i + w_0 ; \quad y = f(v). \quad (\text{figure 5.1}) \quad (5.1)$$

avec  $w_0$  communément appelé biais. Pour un réseau multicouche ayant  $k$  neurones de sortie, on adoptera la notation ci-après :

$$y_k = f\left(\sum_{i=1}^n w_{ik} x_i + w_{0k}\right) ; \quad (5.2)$$

Bien que le neurone formel ne soit pas un objet physique, il est commode de le représenter graphiquement par la figure 5.1.

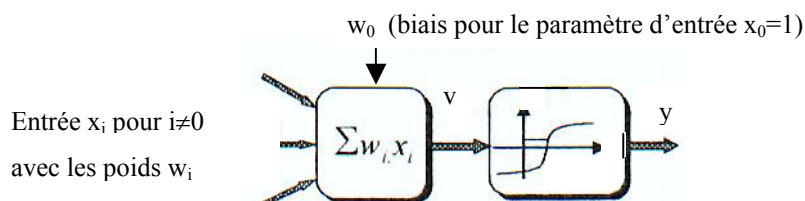


Figure 5.1 : principe d'un neurone formel [90]

## II-2 Architecture des réseaux de neurones formels

Dans les réseaux neuromimétiques, les neurones formels opèrent en parallèles. Ils sont disposés en plusieurs niveaux (couches ou sous-ensembles), chaque neurone étant relié (ou connecté) qu'à un autre niveau de neurones. On nommera architecture la structure (nombre et type de neurones) du réseau c'est-à-dire la manière dont on « relie » entre elles les sorties des neurones aux entrées d'autres neurones [87].

Le nombre de neurones est variable et est fonction du procédé à modéliser. Les neurones du réseau sont répartis en trois ensembles E, S et C [88] :

- l'ensemble (ou couche) E des neurones d'entrée qui perçoivent les données du problème.
- l'ensemble (ou couche) S des neurones de sortie dont l'activation sera interprétée comme la réponse du réseau : ce sont les neurones de sortie.
- l'ensemble C de neurones cachés (une ou plusieurs couches) qui ne sont ni à l'entrée ni à la sortie. Les neurones cachés n'ont aucun lien direct avec l'utilisateur et doivent donc agir par l'intermédiaire d'autres neurones.

Les données externes entrent donc dans le réseau au travers des neurones d'entrée et après des transformations typiquement non linéaires, des données de sorties sont engendrées par des neurones de sortie [88]. Dans la plupart des réseaux de neurones, il n'y a aucune connexion entre des neurones d'une même couche de sorte que l'information est transférée d'une couche précédente à la couche suivante. La figure 5.2 représente une architecture typique du réseau de neurones à trois couches.

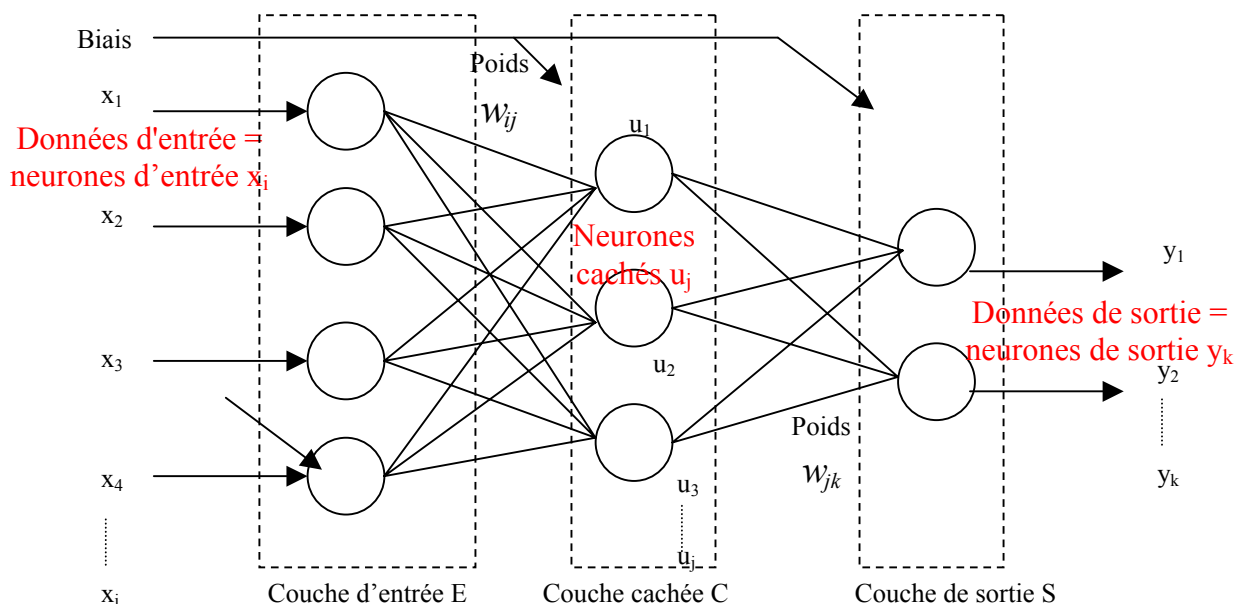


Figure 5.2 : Structure d'un réseau de neurones à trois couches ( $w_{ij}$  étant le poids des connexions entre les neurones d'entrée et cachés,  $w_{jk}$  le poids des connexions entre les neurones cachés et de sortie)

### II-3 Apprentissage du réseau

La plupart des réseaux de neurones sont dotés de méthodes d'apprentissage (ou algorithmes d'apprentissage) permettant d'ajuster ou de modifier les poids des connexions et des biais, de telle sorte que l'imitation et l'apprentissage soient aussi fidèles que possibles. Pour effectuer cet ajustement, on utilise des exemples du comportement que l'on veut imiter : on effectue ainsi l'apprentissage du réseau de neurones à partir des exemples. Une fois l'apprentissage terminé, le réseau doit être capable, non seulement de restituer les exemples de comportement appris, mais surtout de prévoir avec précision des comportements non appris : c'est la faculté de généralisation [87]. Les procédures d'apprentissage peuvent se subdiviser en deux grandes catégories : apprentissage supervisé ou non supervisé.

Le but de l'apprentissage supervisé est d'inculquer un comportement de référence au réseau. Cela implique l'existence d'un « professeur » qui a pour rôle d'évaluer le succès (ou l'échec) du réseau quand il lui est présenté un stimulus connu (on dit que ce stimulus est un exemple appartenant à la base d'apprentissage). Cette supervision consiste à renvoyer au réseau une information lui permettant de faire évoluer ses connexions (parfois aussi sa propre architecture) afin de faire diminuer son taux d'échec. L'information peut être explicite, sous la forme d'une mesure de l'erreur commise, exemple par exemple, ou globalement sur l'ensemble des exemples de la base [87, 88].

Dans un apprentissage non supervisé, la règle d'apprentissage n'est pas fonction du comportement de sortie du réseau, mais plutôt du comportement local des neurones. Les poids du réseau sont ajustés en fonction d'un critère interne, indépendant de l'adéquation entre le comportement du réseau et la tâche qu'il doit effectuer. Cela implique donc la fourniture à un réseau autonome d'une quantité suffisante d'exemples contenant des corrélations, telles que celui-ci en dégage les régularités automatiquement. Ces réseaux sont souvent appelés « auto-organiseurs » ou bien « à apprentissage compétitif » [89].

La phase d'apprentissage permet en conclusion de déterminer les poids des connexions entre les neurones à partir de données en entrée (stimuli) et établit de cette façon une relation complexe et en général non linéaire entre les données d'entrée (neurones d'entrée) et les données en sortie (neurones de sortie), via la couche intermédiaire de neurones (neurones cachés).

#### **II-4 Réseaux statiques et dynamiques**

On peut classer les réseaux en deux grandes catégories, selon la dépendance de l'évolution de ceux-ci en fonction explicite du temps.

Dans le cas de réseaux statiques appelés également non bouclés ou non récurrents, la modification de l'entrée n'entraîne qu'une modification stable de la sortie, mais n'entraîne pas de retour d'information vers cette entrée. L'information circule des entrées vers les sorties sans « retour en arrière » [87].

Les réseaux dynamiques ou bouclés contiennent des re-bouclages partiels ou totaux entre neurones, et ont donc une évolution dépendante du temps. Ces réseaux comprennent donc des boucles qui ramènent aux entrées d'un neurone la valeur de sa sortie, éventuellement par l'intermédiaire d'autres neurones. Il faut bien distinguer la dépendance théorique (pour laquelle l'état du réseau à un certain instant dépend de son état à l'instant ou aux instants précédents) du temps nécessaire à obtenir une réponse dans le cas d'une simulation sur ordinateur, que le réseau soit statique ou dynamique [87, 89].

#### **II-5 Approximation parcimonieuse**

Les réseaux de neurones non bouclés possèdent une propriété remarquable qui est à l'origine de leur intérêt pratique : ce sont des approximateurs universels parcimonieux. Cette propriété est mathématiquement la capacité du réseau de neurones à imiter n'importe quelle fonction après ajustement de ses paramètres par apprentissage. De plus, la parcimonie exprime le fait que le réseau a besoin d'un petit nombre de paramètres ajustables pour réaliser correctement sa tâche. En effet, ils ont besoin de moins de données que les méthodes de régression classique pour élaborer un modèle non linéaire de précision donnée et sont de plus réglables en peu de temps ; de manière équivalente, un réseau de neurones permet, à partir de la même quantité de données, de réaliser une approximation plus précise. De plus, le nombre de poids varie linéairement avec le nombre de variables de la fonction à approcher, alors qu'il varie exponentiellement pour la plupart des méthodes d'approximation [86, 87].

En général, dès qu'un problème fait intervenir beaucoup de variables, les réseaux de neurones sont préférables aux autres méthodes. Néanmoins, il est avant tout nécessaire de vérifier la stabilité et la cohérence du comportement qu'ils prédisent [87].



## II-6 Différents modèles utilisés

Parmi les modèles couramment utilisés, on distingue habituellement :

- Les modèles de la « boîte noire », couramment utilisés, qui sont établis uniquement à partir des mesures effectuées sur le procédé sans intervention d'autres connaissances. Le but est donc de développer un modèle mathématique à partir des observations du comportement entrée-sortie d'un procédé sans avoir à représenter explicitement les phénomènes physiques [86, 87],
- Les modèles de connaissance, dont l'expression mathématique résulte d'une analyse du procédé. Les phénomènes électriques, physiques, thermiques et chimiques mis en jeu sont décrits ; les équations mathématiques de tous ces phénomènes sont écrites [87],
- D'autres modèles dits hybrides existent et permettent de combiner quelques connaissances disponibles, sur le procédé à modéliser, avec un réseau de neurones de type « boîte noire ». Le modèle hybride apporte une meilleure interpolation et extrapolation, interprétant et analysant plus facilement les quelques exemples d'apprentissage. Certains auteurs notent que les estimations obtenues par ces modèles sont meilleures par rapport à celles obtenues avec d'autres modèles [87, 91].

## II-7 Limitations et problèmes

Les réseaux de neurones ont des limites d'utilisation. En effet, ils sont adaptés à des phénomènes non linéaires, très difficiles à décrire et ne sont valables que dans un domaine où on a ajusté (il n'y a pas de possibilité d'extrapoler). Les réseaux de neurones peuvent ainsi prévoir des événements futurs voire expliquer des résultats obtenus par le passé à condition que les facteurs restent les mêmes que ceux utilisés initialement. Un nouveau facteur apparaissant, le réseau de neurones n'est plus valable [86].

Un réseau avec une seule couche cachée est capable d'approximer avec la précision voulue toute fonction continue, à condition que la fonction d'activation ne soit pas un polynôme (cette classe de fonction n'étant pas suffisamment puissante pour approximer toutes les fonctions possibles avec un degré de précision arbitraire) et que le nombre de neurones de la couche cachée soit suffisant. Pour un très grand nombre de problèmes, les réseaux neuromimétiques sont en principe capables de calculer une réponse satisfaisante. Les échecs sont attribuables à des contraintes de connectivité trop restrictives ou à un nombre insuffisant de neurones cachés, limitant la puissance de calcul du réseau à tel point qu'il se trouverait incapable de résoudre le problème ; ils peuvent être dus également à des faiblesses de la technique d'apprentissage incapable d'inculquer au réseau un comportement dont il serait a priori capable [88].

## III - Différents types de réseau de neurones

Il n'existe donc pas un mais plusieurs types de réseaux de neurones, qui ont beaucoup évolué depuis 50 ans (annexe 7) et qui sont plus ou moins adaptés à des situations précises : contrôle des procédés, approximation des fonctions non linéaires, reconnaissance des images, classification [88, 89, 90, 92, 93, 94]... Parmi les réseaux statiques les plus connus, il faut nommer le *perceptron* (voir annexe 7) et les réseaux fonctionnels à base radiale (RBF) qui ont tous deux de nombreuses applications essentiellement grâce à leur propriété d'approximation.

### III-1 Les réseaux de neurones perceptron multicouches

#### III-1-1 Principe

Certains travaux dans les années 70 ont permis de modifier la structure du perceptron (annexe 7) en intercalant, entre la couche de cellules d'entrée et la couche de neurones de sortie, une ou plusieurs couches intermédiaires (appelées couches cachées), l'information circulant d'une couche à la suivante. Cette configuration, où le nombre et la taille des couches cachées doivent être définis, permet d'approximer n'importe quelle fonction ; Néanmoins, dans la plupart des cas, on constate qu'une couche cachée est suffisante (figure 5.3, [89]).

#### III-1-2 Apprentissage par rétro-propagation de l'erreur

L'apprentissage est basé sur le principe du modèle de Widrow-Hoff (Adaline) présenté en annexe 7 dans le cas du perceptron mono-couche : on présente itérativement les exemples, après avoir initialisé tous les poids (ou connexions) à des valeurs aléatoires petites, et on applique la méthode de descente du gradient pour minimiser l'erreur. Cette dernière est calculée comme la somme quadratique des erreurs sur chaque cellule de sortie. On a une rétro-propagation de l'erreur d'où une modification des poids. L'apprentissage est réussi lorsque l'erreur quadratique sur l'ensemble des exemples est inférieure à une valeur donnée [89]. Seulement, pour la couche de sortie, le calcul du changement de poids est direct. Pour d'autres couches, il faut appliquer l'algorithme de rétro-propagation de l'erreur.

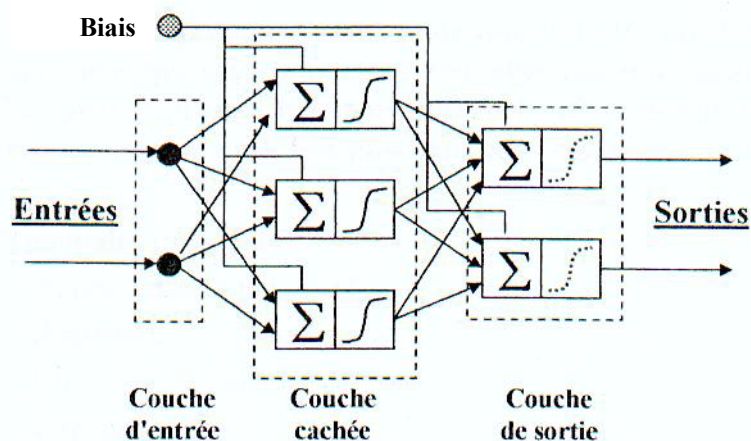


Figure 5.3 : Schéma général du réseau de neurone perceptron multicouches [89, 90]

L'apprentissage se fait en deux étapes. Dans la première étape, on présente un exemple d'entrée et on propage les signaux de couche en couche jusqu'à la sortie, à travers les poids connectant les sorties des neurones d'une couche à ceux de la couche suivante. On peut alors mettre en évidence les erreurs apparaissant sur les neurones de sortie. Dans la seconde étape, on applique l'algorithme de mise à jour dans la dernière couche de poids, puis on propage les erreurs de sortie à travers cette couche de poids sur l'avant-dernière couche, ce qui permet alors de réitérer l'algorithme en mettant à jour l'avant-dernière couche de poids, et ainsi de suite. Le principe est donc de rétro-propager l'erreur commise en sortie vers les couches internes successives [89] et l'on parle alors de rétro-propagation de l'erreur.

Pour un réseau multicouche (figure 5.3, [89]), le calcul des poids  $w_{ij}$  entre deux couches de neurones s'effectue dans le temps lors de la rétro-propagation selon la règle suivante :

$$\Delta w_{ij}^m(t+\Delta t) = \gamma w_{ij}^m(t) + \eta \delta_B^m x_i^m \quad (5.3)$$

où  $t$  est le temps,  $m$  est le nombre de fois que la donnée a été présentée au système,  $\eta$  est le taux d'apprentissage,  $\gamma$  un facteur supplémentaire caractérisant l'apprentissage.  $\delta_B^m$  est l'erreur pour le neurone B d'une couche qui s'exprime, en fonction d'un neurone A de la couche suivante, comme :

$$\delta_B^m = f'(v_B^m) \sum_A w_{ij} \delta_A^m \quad (5.4)$$

où  $v_B^m$  est l'activation du neurone B (voir relation 5.1),  $f$  est la fonction d'activation ( $f'$  étant sa dérivée) et  $\delta_A^m$  est l'erreur qui apparaît à la couche suivante.

L'erreur  $\delta_A^m$  est égale à la différence  $f'(v_A^m) \sum_m (Y_A^m - y_A^m)$  où  $Y$  est la réponse théorique du neurone A pour une donnée d'entrée,  $y$  est la réponse réelle de ce neurone et où  $v_A^m$  est l'activation du neurone A. Le calcul est répété autant de fois et l'apprentissage continue jusqu'à ce que la somme des carrés des erreurs des signaux de sortie du neurone précédent B :  $\sum_m (Y_B^m - y_B^m)^2$  soit inférieure à une valeur donnée.

$\eta$  est un paramètre important pour l'apprentissage du réseau. Choisi trop petit, la convergence des poids et des biais vers leur optimum sera lente. Trop important, de grandes variations des poids et des biais sont à prévoir à chaque itération, ce qui peut conduire à un comportement oscillant de l'optimisation, sans obtention d'un véritable minimum [95]. Ce paramètre est supposé constant mais il peut être adapté selon la valeur de l'erreur quadratique.

### III-2 Le réseau de neurones "Fonction de base radiale" (Radial Basis Function ou RBF)

Un des inconvénients majeurs des réseaux de neurones, utilisant l'algorithme de rétro-propagation, vient du fait qu'ils peuvent être pris dans un minimum local durant la phase d'apprentissage, l'entraînement étant par ailleurs très long. Il existe un autre type de réseau de neurones nécessitant de petites durées d'entraînement et atteignant le minimum global de la surface d'erreur durant cet entraînement. Ce réseau utilise les fonctions de base radiales et est ainsi appelé réseaux fonctions de base radiales (ou réseau de type radial) ou Radial Basis Functions (RBF) [96].

Les réseaux RBF (figure 5.4) ont trois couches (entrée, cachée et sortie) parmi lesquelles une seule engendre une réponse non-linéaire. Les neurones d'entrée sont similaires à ceux des autres modèles et ne servent qu'à distribuer les données aux neurones cachés. Ces derniers ont une fonction de transfert plus complexe que celle des neurones cachés des réseaux à rétro-propagation de gradient. Les neurones de sortie ont une fonction de transfert linéaire qui rend possible le calcul simple des poids optimaux.

Il est important de rappeler qu'un des principaux inconvénients des réseaux de neurones est l'impossibilité d'extrapoler. En effet, ils ne peuvent ajuster leurs paramètres qu'avec les données d'entraînement qu'ils possèdent. Pour des régions de l'espace où ils ne possèdent pas de données d'entraînement, les prédictions ne sont pas fiables. Les réseaux de neurones RBF fournissent des méthodes simples de détection d'extrapolation. En effet, l'activation des fonctions "noyau" peut être utilisée pour détecter si une donnée se trouve dans l'intervalle de valeurs d'entraînement [96]. Un neurone de sortie doit être utilisé pour détecter cette condition d'extrapolation des prédictions.

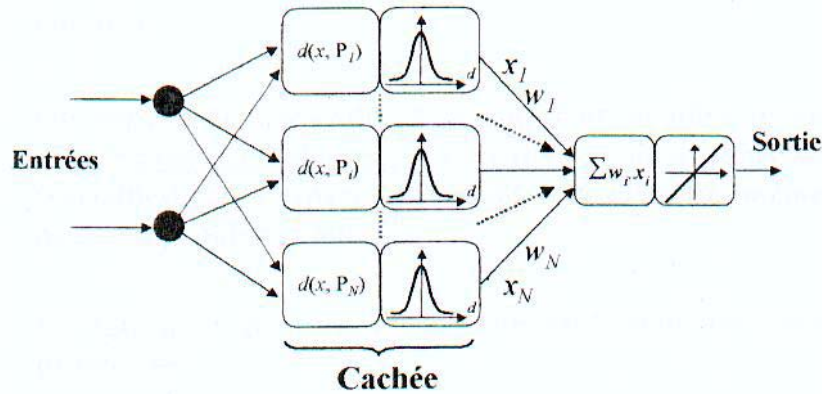


Figure 5.4 : Schéma général du réseau fonction de base radiale [90]

Les réseaux de neurones RBF appartiennent à la catégorie des méthodes d'estimation par "noyau". Ces méthodes utilisent des fonctions non linéaires dites de "noyau"  $\Phi$  qui représentent les différents groupements de données (figure 5.5 pour un cas à deux dimensions où les données sont représentées en fonction de deux paramètres d'entrée). Elles s'écrivent  $\Phi(d_i)$  où  $d_i$  est la distance entre  $x$ , une donnée d'entrée et  $P_i$  le centre d'une fonction "noyau". D'après la littérature, la fonction "noyau" peut être approchée par une fonction gaussienne. Soit le paramètre  $n$  qui représente le nombre de fonctions "noyau" égal au nombre de neurones cachés et les coefficients  $w_i$  représentant le poids de la couche de sortie. La fonction de transfert s'écrit donc comme :

$$f(x) = \sum_{i=1}^n w_i \Phi(x - P_i) + w_0 \text{ où } w_0 \text{ est le biais} \quad (5.5)$$

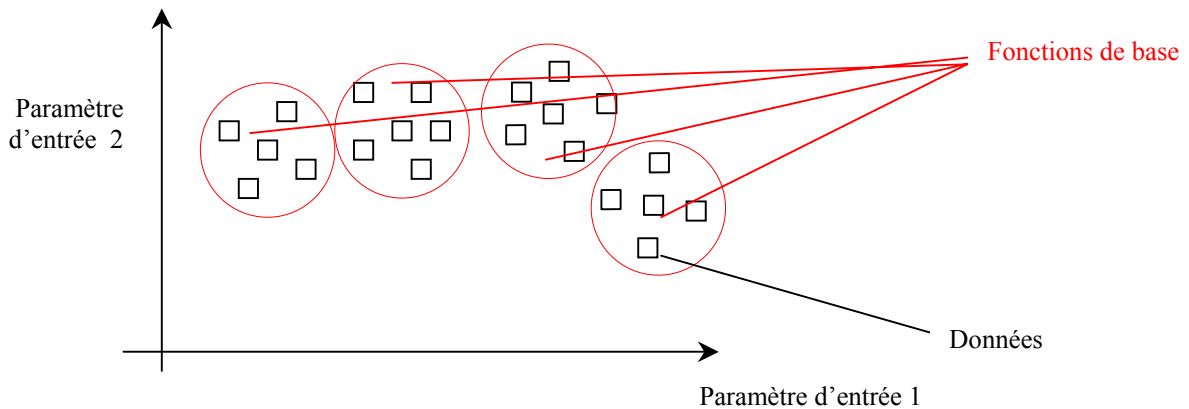


Figure 5.5 : Principe de la fonction dite de noyau [93]

L'apprentissage des réseaux fonction de base radiale se fait en deux étapes [96] :

- d'abord un apprentissage non supervisé pour la détermination des centres. On a recours pour cela à des algorithmes permettant une bonne répartition des centres afin de couvrir l'ensemble des données disponibles (figure 5.5). Cette phase d'apprentissage se base uniquement sur les entrées du réseau. Le choix des centres (nombre et position) est critique puisqu'il affecte directement les résultats finaux obtenus ;
- puis un apprentissage supervisé afin d'optimiser les poids et les biais de la couche de sortie, sur base de la minimisation d'une fonction de coût représentant l'erreur commise entre sorties effectives du réseau et

données réelles ou à prédire. La fonction de coût est une fonction linéaire des paramètres à optimiser contrairement à celle du réseau perceptron à multicouches qui est non linéaire.

## IV - Apprentissage : méthodologie

### IV-1 Procédure d'apprentissage

Le choix d'un ensemble de poids correct pour les connexions d'un réseau est un problème en raison de leur nombre et de leur influence sur le comportement global du réseau. C'est pourquoi la majorité des réseaux de neurones disposent d'une règle d'apprentissage qui leur permet d'adapter leur poids en fonction d'un critère soit interne, soit externe.

Ce protocole comprend 4 étapes de calcul [88] :

- Initialisation des poids des connexions du réseau : la pratique courante est d'initialiser les poids du réseau à des petites valeurs aléatoires au début de l'apprentissage.
- Présentation des données d'entrée et propagation de l'activation
- Calcul de l'erreur : pour chaque neurone du réseau, une valeur d'erreur est calculée à partir de son activation et de celui des neurones qui lui sont reliés. Dans le cas d'un apprentissage supervisé, l'erreur est la différence entre l'activation des neurones de sortie (données calculées) et des données d'entrée (données existantes).
- Calcul du vecteur de correction : à partir des valeurs d'erreur, on détermine la correction à apporter aux poids des connexions et aux seuils des neurones. La correction effective des poids peut se faire après chaque présentation des données d'entrée.

Les trois dernières étapes sont répétées jusqu'à la fin de l'apprentissage.

### IV-2 Validation de l'apprentissage

L'objectif de cette validation est d'estimer la capacité à « généraliser » ou à « interpoler » d'un réseau durant ou après son apprentissage. Elle consiste d'abord à mesurer l'évolution des performances du réseau sur des données d'apprentissage. En général, ces performances s'améliorent constamment au cours de l'apprentissage. Cependant, cette mesure ne fournit pas à elle seule une évaluation objective des performances réelles du réseau. En effet, il est possible que le réseau apprenne à traiter spécifiquement les informations contenues au travers d'un ensemble de données d'apprentissage, au détriment de ses performances sur le problème général. Ce phénomène survient souvent en fin d'apprentissage et se nomme sur-apprentissage ou apprentissage par cœur [95].

Pour éviter ce problème, au cours de l'apprentissage, on mesure l'évolution des performances du réseau sur un second ensemble de données (données de validation) distinct du premier mais appartenant au même espace « entrées-sorties ». Dans la mesure où le réseau apprend effectivement à traiter le problème, ses performances s'amélioreront à la fois sur un ensemble de données d'apprentissage et sur l'ensemble de données de validation. Si le réseau commence à apprendre par cœur, ses performances se dégraderont. Le moment judicieux pour interrompre l'apprentissage est celui où les performances sont optimales.

Après l'apprentissage, les performances du réseau peuvent être mesurées sur un troisième ensemble de données (données test) appartenant au même espace « entrées-sorties »

que celui sur lequel l'apprentissage a été effectué : cette dernière mesure constitue l'évaluation des performances réelles du réseau.

L'apprentissage d'un réseau de neurones nécessite l'utilisation de trois ensemble de données pour mesurer les performances du réseau [90] :

- des données d'entraînement permettant de procéder à l'entraînement du réseau grâce auquel on évalue le comportement du réseau,
- des données de validation permettant de vérifier la qualité du réseau au cours de l'apprentissage,
- et des données de test permettant de vérifier la qualité du réseau après l'apprentissage.

#### **IV-3 Problèmes d'apprentissage**

Il n'y a pas de méthode définie pour déterminer a priori les paramètres du réseau tel que le nombre de neurones cachés, le nombre de neurones d'entrée, la fonction de transfert et/ou le pourcentage de données d'apprentissage [89].

Les performances des réseaux de neurones dépendent beaucoup de la quantité et de la qualité des données disponibles pour entraîner et valider le modèle. Si le nombre de données est insuffisant, la possibilité du modèle à prédire de nouvelles données, similaires à celles ayant servi à entraîner le modèle, serait compromise [88].

Les réseaux de neurones sont sensibles au nombre de neurones dans la couche cachée. Peu de neurones cachés peuvent mener à un sous-ajustement ou à la sous-paramétrisation : le réseau ne reproduit correctement ni les données d'apprentissage, ni les données test. Trop de neurones cachés peuvent contribuer à un sur-ajustement ou à la sur-paramétrisation. Un tel sur-ajustement entraîne une erreur importante sur les nouvelles données prédites bien que les données d'entraînement du réseau s'ajustent bien [88, 95]. Le choix d'un nombre approprié de neurones dans la couche cachée est donc nécessaire pour reproduire correctement les données d'apprentissage et de disposer de facultés de généralisation sur les données test [95].

### **V - Exemples d'applications des réseaux de neurones**

Dans la littérature, on trouve beaucoup d'exemples de recherches et études effectuées à l'aide des réseaux de neurones. Le domaine d'application est diversifié, le type et l'architecture des réseaux varient selon le processus à modéliser. D'autres types de réseaux de neurones utilisés dans le domaine industriel sont présentés en annexe 7 (réseaux de neurones inversés [97, 98]).

#### **V-1 Prédiction du flux de chaleur**

Mazzola [91] a étudié le flux de chaleur dans le cas d'écoulements d'eau en ébullition. C'est un paramètre important pour la conception des réacteurs nucléaires, des échangeurs de chaleur. Du fait de la spécificité de ces installations, très peu de corrélations sont capables de prédire de façon satisfaisante le flux de chaleur critique.

Pour prédire ce flux de chaleur, l'auteur a utilisé un modèle de réseau hybride couplant une corrélation heuristique et un réseau de neurones. L'approche de Mazzola conserve les avantages du modèle analytique, et permet de surmonter le caractère typique de « boîte noire » de l'application stricte des réseaux de neurones, du fait que le rôle du réseau se limite à l'ajustement de la corrélation.

Le réseau de neurones comprend un seul neurone de sortie correspondant au paramètre à évaluer et plusieurs neurones en entrée correspondant aux conditions thermo-hydrauliques. La fonction de transfert utilisée est la fonction tangente hyperbolique. Pour s'assurer que le réseau est capable de généraliser, Mazzola a sélectionné la moitié des données expérimentales disponibles pour l'entraînement du réseau et l'autre moitié pour le tester par la suite. L'ensemble permet d'obtenir des résultats très précis, la méthodologie semble convenir au traitement de données thermo-hydrauliques et de transfert de chaleur.

### V-2 Prédiction du taux de combustion du charbon

Plusieurs chercheurs ont développé des modèles théoriques ou empiriques de la combustion du charbon et du coke depuis les deux dernières décennies. La plupart de ces modèles, qui sont principalement fondées sur des valeurs cinétiques et sur la structure du charbon et du coke, sont limités dans les applications pratiques. Zhu *et al* [99] ont exploré l'approche utilisant les réseaux de neurones pour le calcul du taux de combustion de plusieurs charbons et cokes. Ils ont, pour cela, utilisé la méthode de rétro-propagation du gradient.

Zhu *et al* [99] ont sélectionné, en tant que données d'entrée, un ensemble de divers paramètres notamment la température de combustion, le rang du charbon, la surface totale du coke.... Le paramètre de sortie est le taux de combustion du charbon. Une base de données constituées de 55 cokes dérivant de 26 charbons a été établie.

Les résultats indiquent que les prédictions des réseaux de neurones s'ajustent bien avec les données expérimentales bien qu'ils y aient quelques écarts. Zhu conclut que lorsque la quantité de données d'entraînement est limitée, le réseau tend à sur-ajuster. Pour construire un modèle de réseau de neurones robuste et juste, une grande quantité de données d'entraînement, obtenues à partir d'une grande variété de charbons, doit être disponible.

### V-3 Prédiction du taux de NO<sub>x</sub> lors du procédé de reburning

Dans le but d'appliquer le reburning à des installations industrielles et d'aider les opérateurs de conduite à optimiser cette technique, Reifman *et al* [100] ont également étudié l'approche permettant de développer des modèles empiriques basés sur des réseaux de neurones artificiels. En effet, selon les auteurs, les réseaux de neurones peuvent modéliser les émissions de NO<sub>x</sub> et de CO lors de la combustion de combustible fossile.

Plusieurs essais de reburning au gaz naturel (représentant 3 à 8 % de la charge thermique totale de l'installation) ont eu lieu sur une chaudière à charbon de type cyclone délivrant 320 MW. L'objectif était d'obtenir le maximum de réductions des émissions de NO<sub>x</sub> tout en maintenant des émissions de CO en dessous de 200 ppm. L'ensemble des réglages du reburning et les mesures de concentrations des gaz (NO<sub>x</sub>, CO, O<sub>2</sub>) dans les fumées ont été enregistrées lors de ces essais et regroupés dans une base de données. Les réductions des émissions de NO<sub>x</sub> obtenues sont de l'ordre de 35 à 40 % avec 7 % de puissance fournie par le gaz naturel par rapport à la charge totale de la chaudière.

Le réseau de neurones utilisé est le perceptron à rétro-propagation du gradient constitué de trois couches. La fonction de transfert de la couche d'entrée est linéaire alors que les couches de neurones cachés et de sortie utilisent la fonction sigmoïde. 75 % des données recueillies lors des essais paramétriques ont été utilisées afin d'effectuer l'entraînement du réseau, les 25 % restant ont permis de le tester. Malgré la quantité limitée de données, le modèle est capable de prédire les taux d'émissions de NO<sub>x</sub> en fonction de l'injection de gaz. Il est donc possible que les réseaux de neurones soient utilisés pour prévoir les conditions

opératoires optimales de l'installation industrielle (injection optimale du gaz naturel entraînant les réductions de NO<sub>x</sub> les plus importantes [100].

#### V-4 Utilisation des réseaux de neurones pour des installations industrielles

Les réseaux de neurones ont déjà été appliqués pour différentes chaudières à charbon de type tangentiel et de type frontal [101]. Ainsi, dans le cas d'une chaudière de 500 MW, les émissions de NO<sub>x</sub> ont été réduites de 55 % à basse charge et de 23 % à pleine charge lorsque les opérateurs ont suivi les recommandations du réseau de neurones. Le taux de carbone imbrûlé a baissé de 30 % bien que les émissions de CO aient augmenté de 10 à 210 ppm. Cette approche des réseaux de neurones se base sur l'utilisation de deux réseaux de neurones (le premier pour l'entraînement et la construction du modèle et le deuxième pour l'optimisation) et a été appliquée à des installations de puissance allant de 146 à 800 MWe. Makansi [101] donne également des exemples d'utilisation combinée de réseaux de neurones avec d'autres algorithmes ou techniques de conduite avancée (systèmes experts...).

#### V-5 Utilisation d'un réseau de neurones "bouclés ou "récurrents"

Comme nous l'avons vu auparavant, il existe des réseaux de neurones dits "bouclés" ou "récurrents", contenant des connexions récurrentes (ou rétroaction). Ces récurrences permettent la représentation d'une information qui est fonction du temps. A partir de séries de données d'entrée, on peut donc obtenir des séries de caractéristiques (données de sortie) du comportement d'un système dit dynamique.

Pour son étude, Reifman *et al.* [102] ont utilisé un algorithme, simple et facile à exécuter pour des équations récursives. L'architecture des réseaux de neurones "récurrents" comprend N neurones d'entrée et M neurones de calculs. Les neurones de calculs sont interconnectés entre eux et chaque neurone d'entrée est connecté à un neurone de calculs. Dans cette architecture, quelques neurones de calculs sont utilisés comme neurones de sortie ; il n'y a par ailleurs plus de distinction entre neurones cachés et neurones de sortie. La fonction de transfert ne s'exprime plus de la même façon et devient fonction du temps.

Reifman *et al.* [102] ont par ailleurs étudié l'approche d'une utilisation combinée d'un réseau de neurones non bouclé afin de contrôler le procédé et d'un réseau de neurones "bouclé" pour identifier le procédé. Les deux réseaux installés en série ont pour objectif la prédiction et le contrôle, en boucle fermée, des émissions d'oxyde d'azote d'une centrale à charbon de 278 MWe.

Le réseau de neurones "bouclé" a été entraîné avec comme données d'entrée, la teneur en O<sub>2</sub>, deux températures de foyer, la puissance délivrée par l'installation et le taux de NO<sub>x</sub> mesuré à un temps t. La valeur des NO<sub>x</sub> prédite par ce réseau au temps t a été réutilisée comme entrée pour la prédiction des NO<sub>x</sub> au temps t+1. Le réseau de neurones non bouclé a ensuite été entraîné avec le taux de NO<sub>x</sub> à l'instant t, le taux de NO<sub>x</sub> désiré et la puissance délivrée par l'installation comme données d'entrée et le taux d'O<sub>2</sub> et deux températures à l'instant t comme données de sortie. Une fois le réseau simple entraîné, les trois données de sortie prédites sont des variables dites de contrôle. Elles sont ensuite utilisées comme données d'entrée au réseau récurrent (teneur en O<sub>2</sub>, deux températures de foyer). A partir de ces données et de la teneur en NO<sub>x</sub> calculée à l'instant t, le réseau "bouclé" aboutit à une valeur calculée de la teneur en NO<sub>x</sub> à l'instant t+1.



## V-6 Autres domaines d'application des réseaux de neurones

Les principales applications des réseaux de neurones sont la modélisation non linéaire de données statiques (prédiction des propriétés d'une molécule, à partir de sa masse, de son volume, du nombre d'atomes, des charges électriques portées par ces atomes, sans avoir besoin de la synthétiser ; prédiction des propriétés mécaniques de caoutchoucs de pneumatiques etc...) et la modélisation non linéaire de processus dynamiques (utilisation de la récurrence) dont l'objectif est la prédiction de l'évolution prochaine d'un processus (élaboration de simulateurs pour l'aide à la conception et pour la formation du personnel).

Les applications industrielles sont donc assez diversifiées et peuvent également concerner la détection des anomalies de fonctionnement (détection et identification de la défaillance, prédiction de l'évolution d'un processus pour vérifier si son mode de fonctionnement est normal), la classification des défauts, le traitement du signal, la prévision d'un comportement ou la reconnaissance de forme (estimation d'une probabilité d'appartenance d'un objet inconnu à une classe parmi plusieurs possibles) etc. Dans certaines conditions, ils peuvent détecter et remplacer, grâce à leur pouvoir de prédiction, un signal défectueux (erreur importante constatée sur l'affichage d'une valeur) et donc de se substituer à un capteur défaillant (prédiction de la valeur, basée sur les corrélations apprises avec les autres valeurs, [86, 100, 101, 103]).

Les réseaux de neurones sont également utilisés dans d'autres domaines comme l'économie et les finances (modélisation des données financières et économiques).

## Conclusion

Les réseaux de neurones sont globalement des méthodes puissantes de traitement de données permettant de modéliser un procédé non linéaire. Elles sont analogues aux méthodes de régression linéaire ou multilinéaire. Cette technique qui a fait ses preuves dans de nombreux domaines dont le contrôle de procédés industriels permet de décrire le comportement d'un système physique à partir de données opératoires, en utilisant des techniques algorithmiques et statistiques. Pour modéliser un procédé par les réseaux de neurones, il faut tout d'abord connaître le procédé en question, disposer de données le concernant et utiliser un outil de modélisation disponible au sein des réseaux de neurones. Cependant, il est impossible d'extrapoler avec ces réseaux.

## Chapitre II

# Apprentissage et utilisation des réseaux de neurones

### Introduction

Pour modéliser les résultats obtenus lors des essais de reburning au gaz naturel et au charbon, nous avons retenu deux types de réseaux de neurones : le perceptron avec une couche cachée et le réseau avec la Fonction de base Radiale (RBF).

Notre objectif est de pouvoir prédire l'efficacité du procédé de réduction des émissions d'oxydes d'azote en fonction des conditions opératoires (température, temps de séjour, stœchiométrie...). Il sera important par ailleurs de s'intéresser au maintien de l'efficacité de combustion (teneur en CO et imbrûlés solides acceptables) et à l'influence de certaines caractéristiques du combustible de reburning (teneur en azote, indice de matières volatiles).

Nous avons effectué l'apprentissage des deux types de réseaux de neurones retenus et comparé les prédictions obtenues avec nos données expérimentales.

### I - Reburning au gaz naturel

#### I-1 Méthodologie

Les expérimentations de reburning au gaz naturel ont permis de déterminer l'influence de quatre paramètres d'étude (teneur initiale en NO<sub>x</sub>, stœchiométrie et temps de séjour de la zone de reburning, température à l'entrée de cette même zone) sur l'efficacité de la dénitrification par ce procédé. Suite à ces expérimentations, une base de données a pu être établie regroupant les teneurs de gaz dans les fumées (NO<sub>x</sub>, CO) et la teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes en fonction des valeurs de ces paramètres : 81 ensembles de données sont répertoriés. Cette base de données sera utilisée afin de procéder à l'apprentissage du réseau de neurones et d'obtenir des prédictions sur le procédé du reburning au gaz naturel. Les quatre paramètres d'étude seront les paramètres d'entrée au réseau de neurones. Les paramètres de sortie du réseau de neurones (appelés valeurs cibles ou valeurs à

prédire) sont la teneur en NO<sub>x</sub>, en CO et l'augmentation des imbrûlés solides dans les cendres volantes.

Nous avons utilisé le logiciel NeuralConnection 2.0 commercialisé en France par la société SPSS. Il permet d'élaborer plusieurs types de réseaux de neurones (en particulier le réseau du type perceptron et celui avec la fonction de base radiale ou RBF). Pour construire un réseau et en vérifier les performances, le logiciel répartit les données en deux groupes : un groupe permettant d'effectuer l'apprentissage du réseau (données d'entraînement et de validation) et un autre permettant de tester les prédictions faites par ce réseau (données test). Sur l'ensemble de la base de données, 90 % des données (73 ensembles de données) permettront d'effectuer l'apprentissage du réseau de neurones (65 ensembles pour l'entraînement et 8 ensembles pour la validation), les 10 % restant (8 ensembles) seront destinés à le tester lorsque l'apprentissage sera fini. L'objectif est en effet de vérifier que le réseau de neurones est capable de généraliser ses prédictions, c'est-à-dire de faire des prédictions pour des conditions opératoires différentes des exemples utilisés au cours de son apprentissage.

Plusieurs configurations des deux types de réseaux de neurones ont été testées avec pour objectif d'obtenir une erreur minimale  $\Sigma$  estimée à partir de la mesure  $x$  et de la valeur prédite  $y$ . Pour évaluer les performances du réseau, Jodouin [88] définit l'erreur du réseau par la relation :

$$\Sigma = \frac{1}{n} \sum_{i \leq n} |y - x| \quad \text{avec } n, \text{ le nombre de mesures} \quad (5.6)$$

## I-2 Utilisation du réseau de neurones Multilayer Perceptron à rétropropagation du gradient

### I-2-1 Apprentissage

Nous avons utilisé le perceptron avec une seule couche intermédiaire de neurones cachés. La fonction de transfert retenue pour la couche de neurones cachés est la fonction tangente hyperbolique. L'erreur commise sur les prédictions au cours de l'apprentissage a été calculée grâce à la relation (5.6), selon le nombre de neurones dans la couche cachée, à partir de la totalité des données d'apprentissage (données d'entraînement et de validation, tableau 5.1). Le nombre de neurones dans la couche cachée a été pris inférieur ou égal au nombre de neurones dans la couche d'entrée (4) et supérieur ou égal au nombre de neurones dans la couche de sortie (3).

Nombre de neurones cachés	3	4
Erreur sur la prédiction du NO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	30	29
Erreur sur la prédiction du CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	145	137
Erreur sur la prédiction de l'augmentation d'imbrûlés solides (% abs)	2,04	1,85

Tableau 5.1 : Erreur  $\Sigma$  sur les prédictions par le réseau de neurones perceptron (apprentissage)

Les figures 5.6 à 5.8 représentent la capacité du perceptron à reproduire les données d'apprentissage pour les trois paramètres de sortie (teneur en  $\text{NO}_x$ , en CO et augmentation des imbrûlés solides dans les cendres volantes avec 4 neurones dans la couche cachée).

Concentration en  $\text{NO}_x$   
( $\text{mg.Nm}^{-3}$  à 6 % d' $\text{O}_2$ )

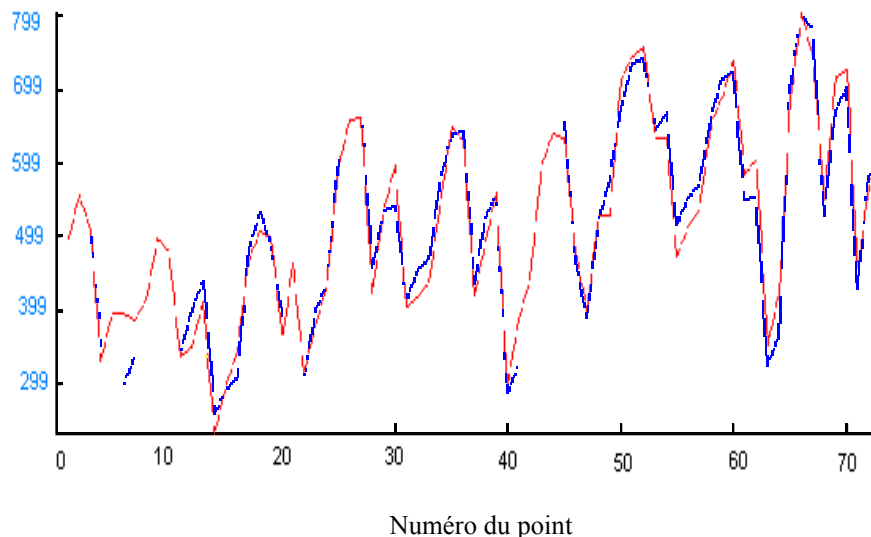


Figure 5.6 : Comparaison de la teneur en  $\text{NO}_x$  calculée par le réseau de neurones perceptron avec les données d'expériences (apprentissage)

Concentration en CO  
( $\text{mg.Nm}^{-3}$  à 6 % d' $\text{O}_2$ )

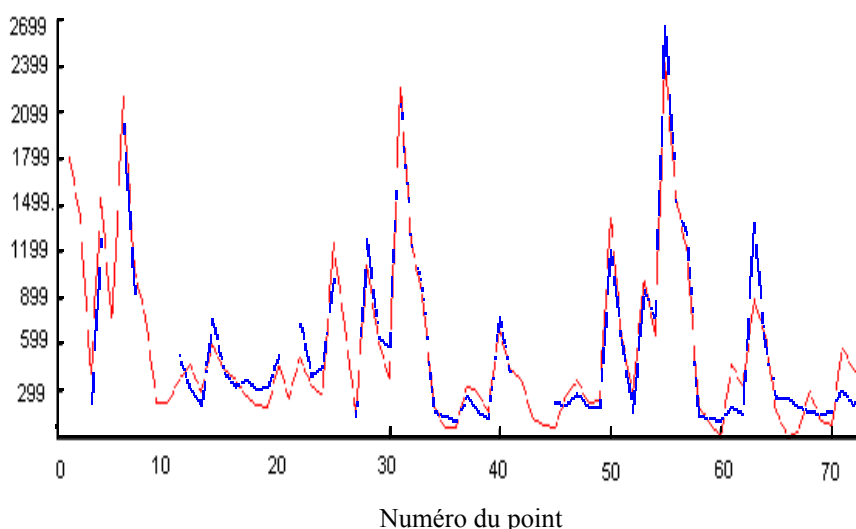


Figure 5.7 : Comparaison de la teneur en CO calculée par le réseau de neurones perceptron avec les données d'expériences (apprentissage)

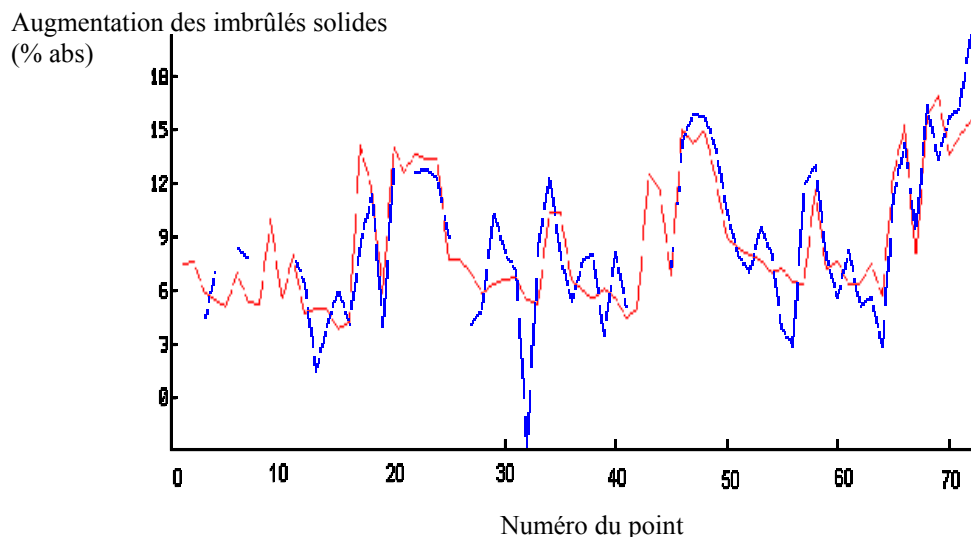


Figure 5.8 : Comparaison de l'augmentation des imbrûlés solides calculée par le réseau de neurones perceptron avec les données d'expériences (apprentissage)

Le réseau perceptron est donc capable de reproduire nos données expérimentales. Néanmoins, il est important de tester les prédictions faites par ce réseau en les comparant avec des données expérimentales non utilisées lors de l'apprentissage (données de test). Cette procédure permet de connaître la capacité du réseau non pas à reproduire des résultats mais à les généraliser.

### I-2-2 Comparaison des prédictions avec les résultats expérimentaux

La comparaison des prédictions du réseau avec les données expérimentales non utilisées au cours de l'apprentissage (données de test, tableau 5.2) a permis de calculer l'erreur  $\Sigma$  définie par la relation (5.6). Les erreurs sur la teneur en NO et sur l'augmentation des imbrûlés solides sont légèrement supérieures à celles commises au cours de l'apprentissage. L'erreur sur la teneur en CO est nettement plus importante avec les données de test.

Nombre de neurones cachés	3	4
Erreur sur la prédiction du NO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	33	34
Erreur sur la prédiction du CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	205	206
Erreur sur la prédiction de l'augmentation d'imbrûlés solides (% abs)	1,85	2,05

Tableau 5.2 : Erreur  $\Sigma$  sur les prédictions par le réseau de neurones perceptron par rapport aux données de test

Les diagrammes de parité correspondants (figures 5.9 à 5.11) permettent de conclure à des prédictions correctes de la teneur en NO (intervalle prédit allant de 300 à 700 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>). Les prédictions faites pour un réseau perceptron avec 3 et 4 neurones cachés sont relativement proches de la droite de parité  $y = x$  (figure 5.9).

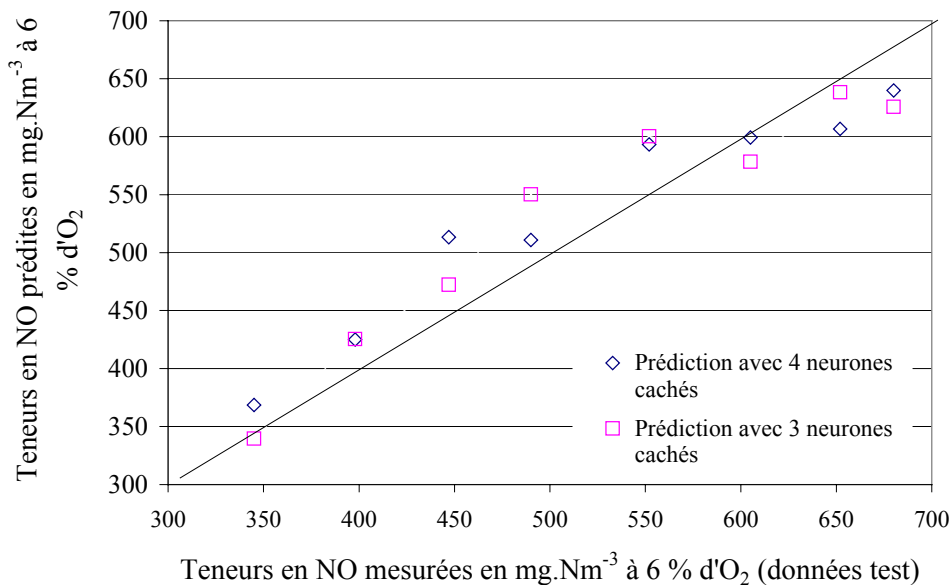


Figure 5.9 : Comparaison des prédictions de teneur en NO avec des mesures expérimentales (réseau perceptron, données de test)

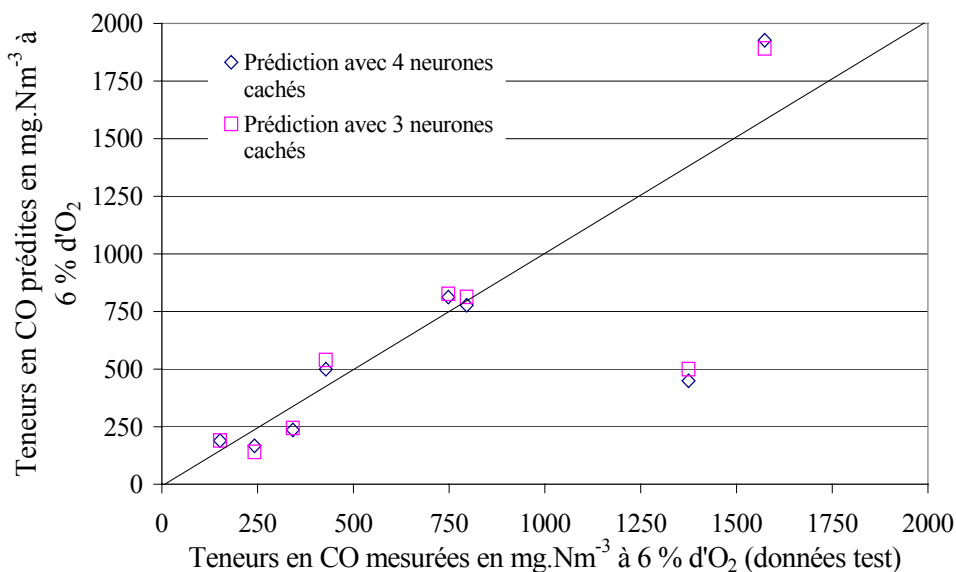


Figure 5.10 : Comparaison des prédictions de teneur en CO avec des mesures expérimentales (réseau perceptron, données de test)

Bien que les prédictions de la teneur en CO soient satisfaisantes pour des teneurs allant jusqu'à 750 mg.Nm<sup>-3</sup>, elles deviennent plus éloignées des données expérimentales pour des teneurs importantes (figure 5.10). Ce comportement peut être expliqué par le nombre réduit de données d'apprentissage dont la teneur en CO excède cette limite de 750 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>. En effet, les deux tiers des données obtenues lors des expérimentations sont regroupées autour d'une teneur de 300 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>.

Les prédictions de l'augmentation des imbrûlés solides semblent moins bonnes (figure 5.11). L'allure du diagramme de parité correspondant peut s'expliquer en partie par une faible variation (6 à 10 %) des données de test alors que sur l'ensemble de la base de données, elle varie de -3 à 19 %. Bien que les erreurs commises sur ces prédictions soient plus ou moins satisfaisantes (tableau 5.2), ces dernières seront toutefois à utiliser avec une certaine précaution.

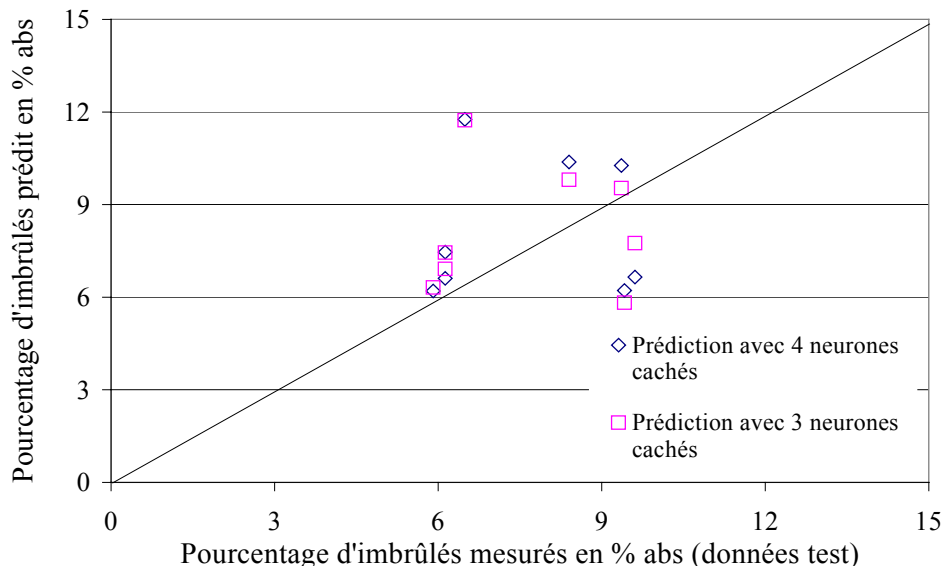


Figure 5.11 : Comparaison des prédictions de l'augmentation des imbrûlés solides avec des mesures expérimentales (réseau perceptron, données de test)

### I-3 Utilisation du réseau de neurones Fonction de base Radiale (RBF)

#### I-3-1 Apprentissage

Nous avons utilisé le réseau de neurones RBF avec une seule couche de neurones cachés. Chaque neurone de cette couche possède un centre  $c$  associé et la fonction de transfert retenue pour la couche de neurones cachés est la « fonction *spline* » (d'équation  $d^2 \cdot \log(d)$ ) avec  $d = \left\| \vec{x}_i - \vec{c} \right\|$  la distance de la donnée  $x$  par rapport au centre de la fonction. L'erreur commise sur les prédictions a été calculée grâce à la relation (5.6) en fonction du nombre de centres dans la couche cachée, à partir des données d'apprentissage (données d'entraînement et de validation, tableau 5.3). Les valeurs obtenues sont nettement inférieures à celles trouvées pour le réseau perceptron.

Comme dans le cas de l'apprentissage du perceptron, afin d'éviter que le réseau de neurones ne soit d'une part sur-entraîné et d'autre part qu'il ne puisse pas généraliser et prédire des valeurs pour des exemples qu'il n'a pas entraînés, le nombre de neurones dans la couche cachée a été pris inférieur ou égal au nombre de neurones dans la couche d'entrée et supérieur ou égal au nombre de neurones dans la couche de sortie.

La capacité du RBF à reproduire les données d'apprentissage (pour les trois paramètres de sortie : teneur en  $\text{NO}_x$ , en CO et augmentation des imbrûlés solides avec 4 neurones dans la couche cachée) est représentée par les figures 5.12 à 5.14.

Nombre de centres	3	4
Erreur sur la prédiction du NO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	13	8
Erreur sur la prédiction du CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	64	56
Erreur sur la prédiction de l'augmentation d'imbrûlés solides (% abs)	0,94	0,72

Tableau 5.3 : Erreur  $\Sigma$  sur les prédictions par le réseau de neurones RBF (données d'apprentissage)

Concentration en NO<sub>x</sub>  
(mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>)

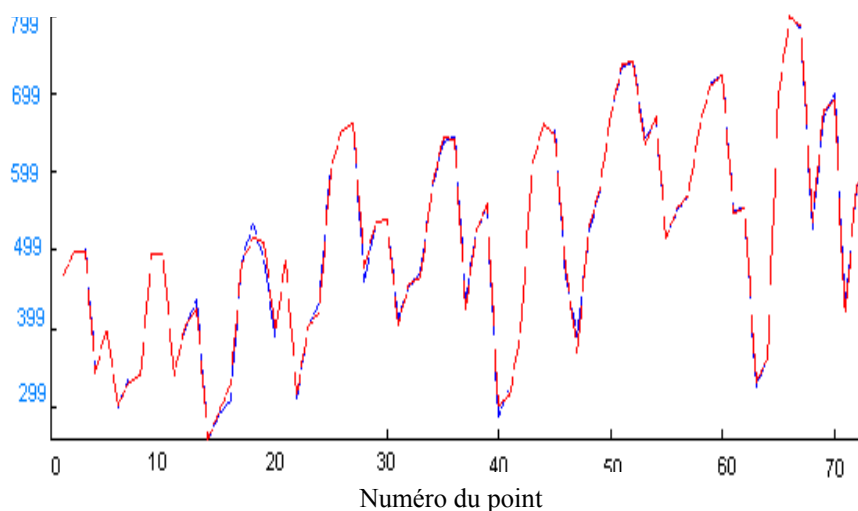


Figure 5.12 : Comparaison de la teneur en NO<sub>x</sub> calculée par le réseau de neurones RBF avec des données d'expériences (apprentissage)

Concentration en CO  
(mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>)

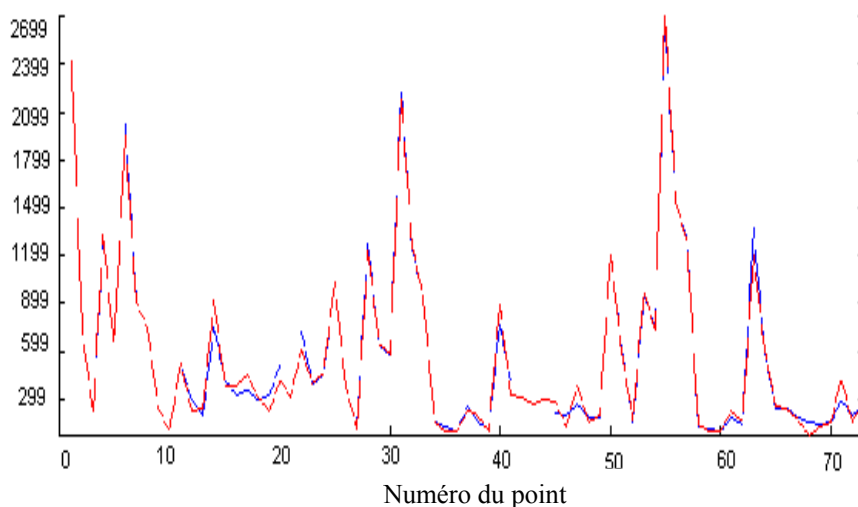


Figure 5.13 : Comparaison de la teneur en CO calculée par le réseau de neurones RBF avec des données d'expériences (apprentissage)



Augmentation des imbrûlés solides  
(% abs)

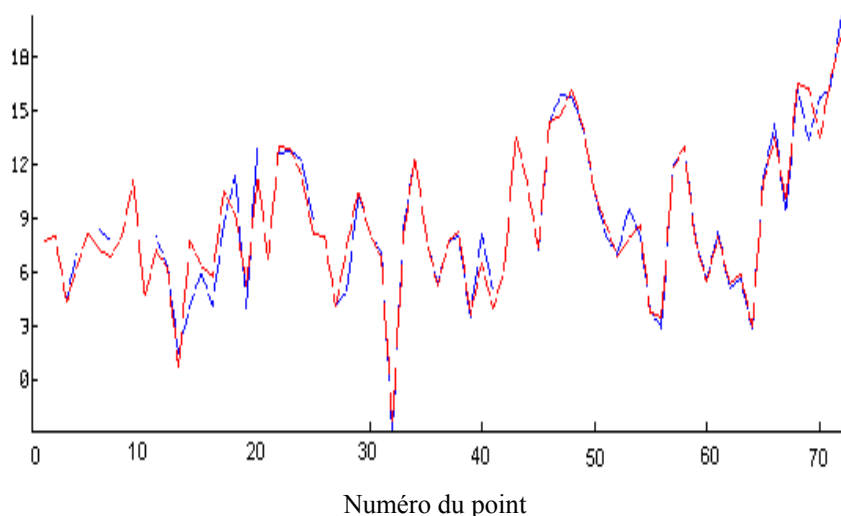


Figure 5.14 : Comparaison de l'augmentation des imbrûlés solides calculée par le réseau de neurones RBF avec des données d'expériences (apprentissage)

Le réseau RBF reproduit plus fidèlement nos données expérimentales, en particulier l'augmentation des imbrûlés solides. Les prédictions faites au cours de l'apprentissage sont en effet meilleures : les erreurs commises sur les prédictions sont réduites de moitié par rapport à celles obtenues avec le perceptron.

### I-3-2 Comparaison des prédictions avec les résultats expérimentaux

Le tableau 5.4 représente l'erreur  $\Sigma$  (relation 5.6) commise sur la prédiction par rapport aux données expérimentales non utilisées au cours de l'apprentissage du RBF. Les erreurs commises sur les teneurs en NO, en CO et l'augmentation des imbrûlés solides sont plus importantes avec les données de test.

Nombre de centres	3	4
Erreur sur la prédiction du NO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	10	16
Erreur sur la prédiction du CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	133	137
Erreur sur la prédiction de l'augmentation d'imbrûlés solides (% abs)	2,17	2,25

Tableau 5.4 : Erreur  $\Sigma$  sur les prédictions par le réseau de neurones RBF par rapport aux données de test

La représentation graphique de la comparaison entre données prédites et données expérimentales (figure 5.15 à 5.17) permet de conclure que les prédictions pour la teneur en NO sont relativement fidèles dans tout l'intervalle étudié allant de 300 à 700 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>, figure 5.15. Ces prédictions obtenues pour un réseau RBF avec 3 et 4 neurones cachés sont plus fiables que celles obtenues par des réseaux perceptron.

Comme dans le cas des réseaux perceptron, les prédictions faites pour la teneur en CO sont satisfaisantes jusqu'à une teneur de 750 mg.Nm<sup>-3</sup> à 6 % d'O<sub>2</sub>. Au-delà, les prédictions s'éloignent de la droite de parité y=x (figure 5.16). De même, les prédictions concernant l'augmentation des imbrûlés solides semblent moins fiables (figure 5.17). Ceci peut être dû en partie à une faible variation de cette valeur dans le groupe de données retenues comme données de test (6 à 10 % abs par rapport à l'intervalle -3 % à +19 % sur l'ensemble des données).

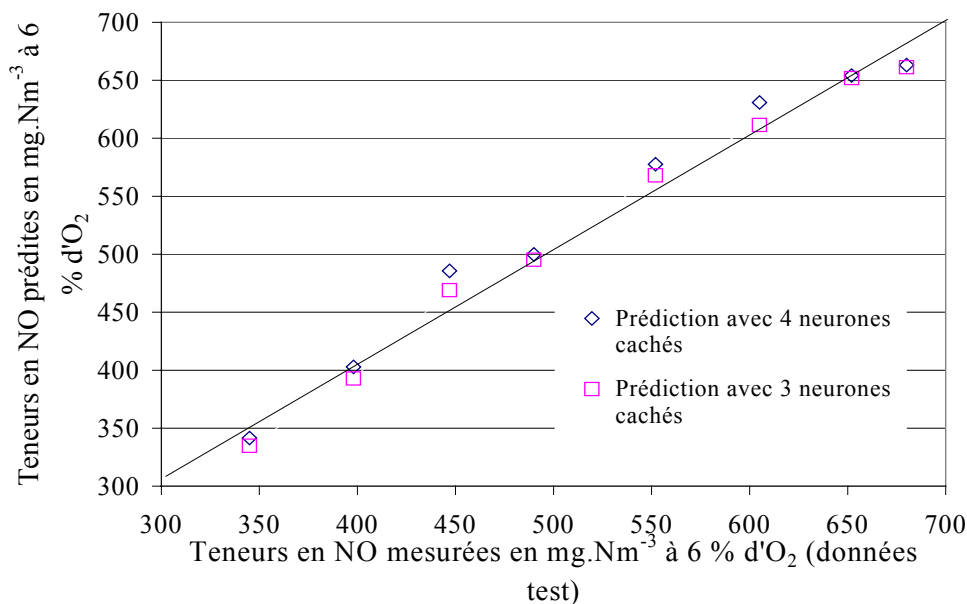


Figure 5.15 : Comparaison de la prédiction de la teneur en NO avec des mesures expérimentales (réseau RBF, données de test)

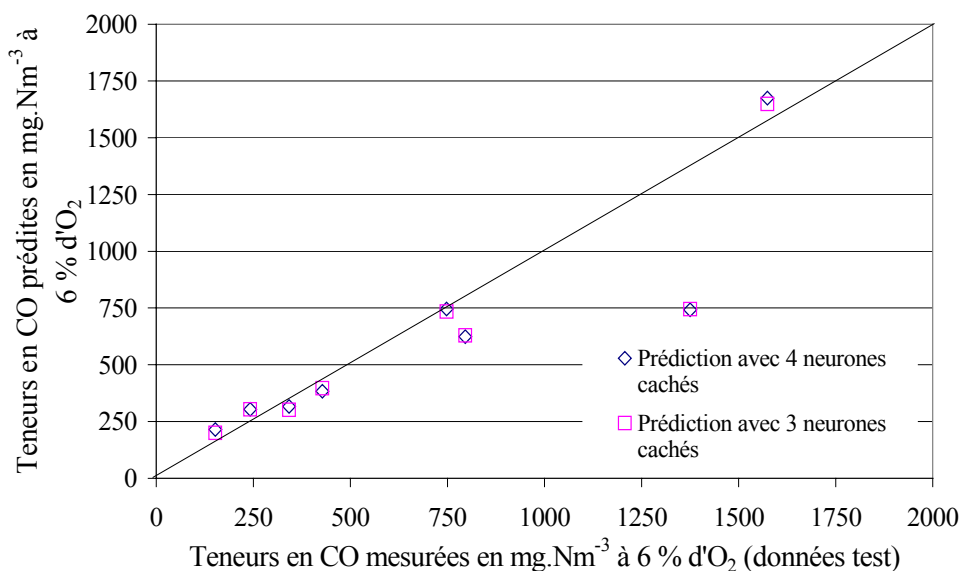


Figure 5.16 : Comparaison de la prédiction de la teneur en CO avec des mesures expérimentales (réseau RBF, données de test)

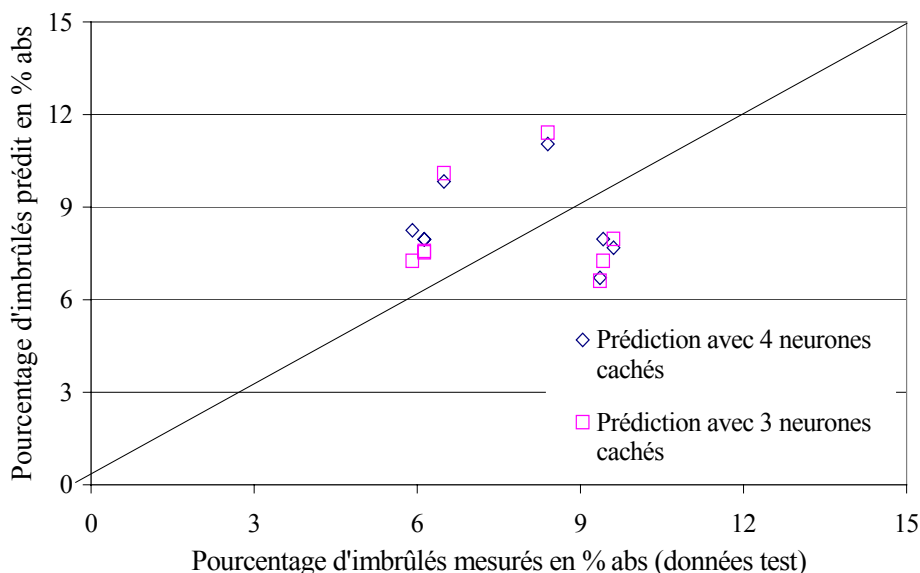


Figure 5.17 : Comparaison de la prédiction de l'augmentation des imbrûlés solides avec des mesures expérimentales (réseau RBF, données de test)

#### I-4 Conclusion

L'utilisation du réseau avec la fonction de base radiale permet d'obtenir des prédictions de teneur en  $\text{NO}_x$  assez proches des données expérimentales, nettement meilleures par rapport aux prédictions faites par le perceptron.

Les prédictions de la teneur en CO sont aussi relativement fiables, pour les deux types de réseau étudiés, jusqu'à  $750 \text{ mg Nm}^{-3}$  à 6 % d' $\text{O}_2$ . On peut remarquer que les valeurs supérieures correspondent à une très mauvaise qualité de combustion, et de ce fait présentent un moindre intérêt.

Les prédictions de l'augmentation des imbrûlés solides par les deux réseaux semblent moins fiables. Plusieurs raisons peuvent être évoquées : mauvaises performances du réseau (trois paramètres de sortie nuisent à la fiabilité des prédictions), faible variation des valeurs expérimentales (les mesures varient entre 6 et 10 % abs), voire erreurs de mesure de l'augmentation des imbrûlés ce qui entraînent de mauvaises prédictions du réseau (seule l'évolution des mesures et donc des prédictions seraient à prendre en considération).

Lors des expérimentations de reburning au gaz naturel (chapitre II, partie 3), nous avons vu qu'il y a une nécessité d'injecter le gaz naturel et l'air de postcombustion selon un paramétrage précis afin de réduire les émissions de  $\text{NO}_x$  tout en maintenant un bon rendement de combustion (faible teneur en CO et en imbrûlés solides dans les cendres volantes). Le réseau de neurones RBF que nous venons de construire peut être un outil permettant de déterminer ce paramétrage optimal pour notre pilote ou pour toute autre installation industrielle.

Le meilleur compromis entre réduction des  $\text{NO}_x$  et augmentation du CO pour une installation dépend toutefois du coût économique attribué à l'émission de ces deux gaz nocifs.

## II - Reburning au charbon

### II-1 Données d'apprentissage et méthodologie

Les données, obtenues lors de l'expérimentation du reburning au gaz naturel, nous ont permis d'élaborer un réseau de neurones permettant d'obtenir des prédictions sur les teneurs en  $\text{NO}_x$ , CO et en imbrûlés solides en fonction des paramètres opératoires du reburning (température et concentration en  $\text{NO}_x$  à l'entrée de la zone de reburning, temps de séjour et stœchiométrie de la zone de reburning).

Lors des expérimentations de reburning au charbon, nous avons, en plus de ces quatre paramètres intervenant dans le reburning au gaz naturel, un cinquième : la nature du charbon utilisé comme combustible de reburning. Par la suite, une base de données a pu être établie regroupant les teneurs de gaz dans les fumées ( $\text{NO}_x$ , CO) et la teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes en fonction des valeurs de ces paramètres : 90 ensembles de données ont été répertoriés. Cette base de données sera utilisée pour l'apprentissage des réseaux de neurones et vérification de leurs performances.

D'après la littérature, nous avons dû traduire quantitativement la nature des charbons utilisés par leurs teneurs en azote et en matières volatiles. Toutefois, la base de données élaborée suite à nos expérimentations s'est avérée insuffisante pour permettre la prédiction, par un réseau de neurones, de la réduction des  $\text{NO}_x$  en fonction de ces paramètres. Pour des raisons industrielles, seulement quatre charbons sélectionnés en fonction de leur disponibilité sur le marché ont été étudiés comme combustible de reburning ; la variation de l'indice de matières volatiles dans ces charbons a été très restreinte, de 33 à 37 %. Arbitrairement, nous avons toutefois identifié les charbons par leur teneur en azote totale qui est de ce fait devenue le cinquième paramètre d'entrée.

Comme auparavant, nous avons testé dans cette partie de notre travail deux types de réseaux de neurones. Le logiciel utilisé est NeuroOne commercialisé par la société Netral. Il répartit automatiquement les données expérimentales en plusieurs ensembles (entraînement, validation et test) et permet d'utiliser les deux types de réseaux de neurones présentés dans le chapitre I : le perceptron à trois couches et le réseau avec les fonctions de base radiales. Les paramètres d'entrée du réseau de neurones seront la stœchiométrie et le temps de séjour de la zone de reburning, la teneur initiale en  $\text{NO}_x$  et la température à l'entrée de cette même zone et type de charbon utilisé comme combustible de reburning (français, polonais, sud-africain, colombien). Le paramètre de sortie du réseau de neurones est la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  par le reburning.

Comme précédemment, 80 % des données (72 ensembles) seront utilisés dans l'entraînement du réseau de neurones, dont 10 % (9 ensembles) permettront de valider le réseau au cours de l'apprentissage. 10 % restant des données (9 ensembles) serviront à tester le réseau de neurones lorsque l'apprentissage sera fini. L'objectif est toujours de vérifier si le réseau de neurones est capable de généraliser et de prédire des valeurs pour des exemples pour lesquels il n'a pas entraîné.

### II-2 Validation de l'apprentissage des réseaux perceptron et fonction de base radiale

Les deux réseaux de neurones, perceptron et fonction de base radiale, ont été utilisés. Plusieurs configurations de ces deux réseaux de neurones ont été testées avec pour objectif d'obtenir une erreur minimale  $\Sigma$  entre la mesure et la valeur prédite (relation 5.6).

Le logiciel NeuroOne, de conception plus récente que le précédent logiciel utilisé, permet d'obtenir directement une estimation de performance du réseau, grâce aux données de test, en calculant plusieurs types de fonction d'erreur et notamment l'erreur  $\Sigma$  définie par la relation (5.6). Les tableaux 5.5 et 5.6 représentent cette erreur commise sur les prédictions en fonction du nombre de neurones ou de centres dans la couche cachée pour les deux réseaux de neurones. La fonction de transfert optimale pour la couche cachée du réseau perceptron est la fonction tangente hyperbolique. L'apprentissage d'un réseau de neurones avec un seul paramètre de sortie permet de simplifier l'entraînement du réseau. Les prédictions de la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  par le reburning obtenues pour les deux réseaux de neurones sont relativement voisines.

Nombre de neurones cachés	6	5	4	3	2
Erreur sur la prédiction de la réduction de NO (%)	0,92	1,49	1,66	2,32	3,17

*Tableau 5.5 : Erreur  $\Sigma$  sur la prédiction de la réduction des émissions de NO par le réseau perceptron par rapport aux données de test*

Les réseaux RBF, mais également perceptron, donnent tous les deux des prédictions de réduction de teneur en  $\text{NO}_x$  assez proches des données expérimentales. Le choix d'un seul paramètre de sortie semble apporter une meilleure précision dans la prédiction.

Nombre de centres cachés	6	5	4	3	2
Erreur sur la prédiction de la réduction de NO (%)	1,39	1,88	2,45	2,7	2,86

*Tableau 5.6 : Erreur sur la prédiction de la réduction des émissions de NO par le réseau RBF par rapport aux données de test*

La représentation graphique de la comparaison entre les données prédites avec, par exemple, le réseau RBF (cas de 6 centres sur la couche cachée) et les données expérimentales (données de test, figure 5.18) permet de conclure que les prédictions sont relativement proches de la réalité et donc que les performances du réseau RBF sont plutôt satisfaisantes : ce réseau est donc capable de reproduire les réductions des émissions des  $\text{NO}_x$  obtenues lors du reburning au charbon

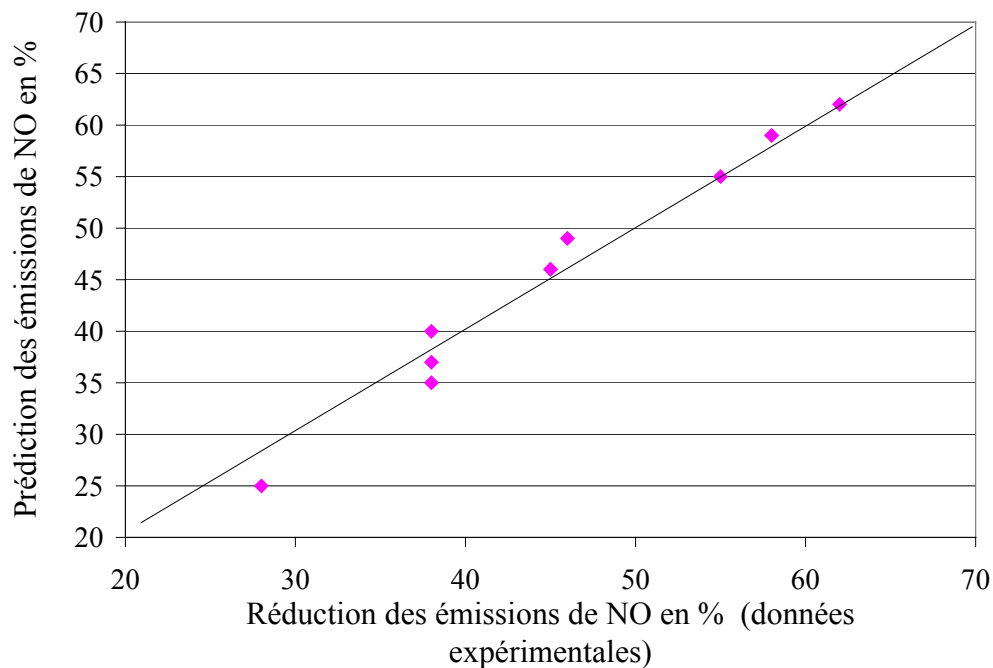


Figure 5.18 : Comparaison de la prédiction des émissions de  $NO_x$  avec des mesures expérimentales (réseau RBF, données de test)

### II-3 Conclusion

Lors des expérimentations de reburning au charbon, nous avons vu l'influence du type de charbon utilisé comme combustible de reburning sur la réduction des émissions de  $NO_x$ . Le réseau de neurones RBF (avec 6 centres dans la couche cachée) que nous venons de construire peut être développé en un outil de prédiction de cette influence, ainsi que de celle des paramètres opératoires, bien que cela nécessite une étude plus poussée avec des charbons plus diversifiés.

Les charbons que nous avons étudiés n'ont pas été sélectionnés en fonction de leur teneur en azote et de leur indice de matières volatiles. Le réseau de neurones dont nous avons fait l'apprentissage permet uniquement de distinguer, entre ces charbons, le combustible de reburning le plus efficace dans les conditions opératoires données. Les travaux futurs devraient créer une base de donnée plus importante et couvrir une large gamme de teneur en azote et d'indice de matières volatiles.



## Conclusion

Nous avons procédé à l'apprentissage et à l'application de quelques types de réseau de neurones afin de corrélérer différents résultats du reburning au gaz naturel et au charbon avec les paramètres opératoires de ce procédé. Nous avons utilisé pour cela des bases de données constituées grâce aux expérimentations correspondantes sur le four pilote de 4 MW du CERCHAR.

Le type et la configuration du réseau de neurones dépendent du procédé à modéliser et permettent d'obtenir des prédictions plus ou moins fiables. Aussi, bien que le réseau de neurones puisse prédire la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  en fonction des conditions opératoires (ou paramètres d'études) et du type de charbon utilisé comme combustible de reburning, il est toutefois important de repérer la capacité de généralisation du réseau en utilisant un intervalle de confiance sur la prédiction effectuée. Cette capacité du réseau dépend entre autres de la taille de la base de données utilisée pour effectuer son apprentissage. Les bases de données élaborées à partir des essais de reburning au gaz naturel et au charbon comportaient respectivement 81 et 90 ensembles de données. Si la première est assez conséquente pour quatre paramètres d'entrée, la deuxième peut être considérée comme insuffisante pour faire intervenir en plus les deux caractéristiques du charbon utilisé comme combustible de reburning (d'après la littérature, l'indice de matières volatiles et la teneur en azote) comme paramètres d'entrée. En effet, les expérimentations de reburning au charbon ont porté sur uniquement quatre charbons. Dans le cas où l'on prend en compte uniquement le type de charbon comme cinquième paramètre, la base de données est toutefois suffisante pour obtenir de bonnes prédictions.

Pour une réalisation du reburning sur une installation industrielle, plusieurs applications des réseaux de neurones peuvent être envisagées : maintien de l'efficacité de l'installation, contrôle de la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  en fonction du charbon utilisé comme combustible de reburning, prédiction des conditions opératoires optimales pour un reburning au gaz naturel ou au charbon (température à l'entrée de la zone de reburning, stœchiométrie et temps de séjour dans cette zone, type de charbon comme combustible de reburning).... La capacité des réseaux de neurones artificiels à reproduire le comportement de notre four pilote permet de prévoir leur utilité pour de telles applications.





## **PARTIE 6**

# **MODELISATION DU REBURNING**



# Chapitre I

## Modélisation de la cinétique chimique, Modélisation hydrodynamique

### Introduction

Le reburning, qui a été étudié sur un grand nombre de réacteurs de laboratoires et de pilotes, est un procédé intéressant de réduction des émissions de  $\text{NO}_x$ , notamment dans le cas de systèmes de combustion à charbon pulvérisé. Depuis l'apparition de ce procédé, on cherche à améliorer les méthodes de prédiction et d'optimisation des résultats, ce qui exige une compréhension des phénomènes chimiques et hydrodynamiques intervenants.

### I – Modélisation cinétique

#### I-1 Introduction

Les schémas de réactions élémentaires des hydrocarbures, des espèces azotées et de divers systèmes d'oxydation ont été développés pendant plusieurs années par différents groupes de travail (Glarborg *et al.* [104], Miller et Bowman [105]). Les constantes cinétiques des réactions élémentaires de ces mécanismes sont de plus en plus fiables. Elles ont été utilisées entre autres pour modéliser les différentes versions du reburning [33].

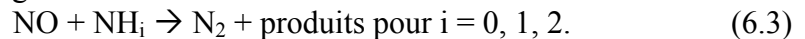
La chimie du reburning inclut un grand nombre de réactions de formation et de destruction d'espèces azotées et hydrocarbonées. Plusieurs modèles décrivent le procédé de reburning au gaz naturel. Ces modèles développés peuvent être classés en différentes catégories : *détaillés*, *simplifiés* ou *réduits*. Les modèles dits "détaillés" sont composés d'un grand nombre de réactions et d'espèces et incluent l'ensemble des réactions intervenant dans le procédé étudié. Les modèles dits "simplifiés" sont constitués d'un minimum de réactions qui permettent une description satisfaisante du procédé étudié et qui sont considérées comme les plus importantes. Les modèles dits "réduits" incluent un petit nombre de réactions et d'espèces qui sont considérées comme les plus importantes pour le processus étudié.

Le modèle de Miller et Bowman [105], élaboré en 1989, est un modèle détaillé et est constitué de 307 réactions élémentaires et de 48 espèces chimiques, comprenant les réactions des espèces azotées et des espèces hydrocarbonées en phase gaz. Il inclue la formation des NO thermiques et précoces, ainsi que la conversion de l'azote contenu dans le combustible. En 1992, Kilpinen *et al.* [106] ont utilisé ce modèle complété par des valeurs obtenues par Glarborg et Hadvig en 1991 (d'après [33]) pour modéliser la réduction des NO<sub>x</sub> par du gaz naturel. Leur modèle comprend 225 réactions et 48 espèces chimiques. Glarborg *et al.* [107, 108] ont ensuite proposé en 1994 un modèle pour la combustion du méthane faisant intervenir les interactions entre les espèces azotées et les radicaux hydrocarbonés. Il comprend 234 réactions et 48 espèces chimiques.

La plupart des modèles schématisent le reburning par les deux familles de réactions suivantes :



Mereb et Wendt [41] ont inclus également la réaction suivante :



## I-2 Objectifs de la modélisation cinétique

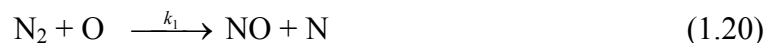
L'efficacité du reburning dépend de l'interaction entre la chimie des gaz et la dynamique des fluides dans la chambre de combustion (effets de mélange) et en particulier de l'interaction entre les NO<sub>x</sub> et les radicaux hydrocarbonés. Cette interaction dépend de plusieurs variables « locales » : température, composition chimique et du point de vue du procédé, des variables opératoires comme les températures, les stœchiométries, les temps de séjour et la qualité du mélange des flux.

Un modèle de simulation approprié peut déterminer les conditions opératoires optimales. Afin d'élaborer un tel modèle, plusieurs auteurs [104, 105, 106] ont cherché à mettre en évidence le processus de conversion de l'azote et à caractériser les mécanismes cinétiques du reburning (vitesse des réactions).

## I-3 Mécanismes de formation des oxydes d'azote

### I-3-1 Les NO<sub>x</sub> thermiques

La formation des NO<sub>x</sub> thermiques à partir de l'azote et de l'oxygène est décrite par le mécanisme de Zeldovich (équation 1.20, 1.21 et 1.22, chapitre II, partie 1) [104, 105] :



qui doit être complété parfois par la réaction :



Le mécanisme de Zeldovich étendu tient compte non seulement de l'influence de la

température, du temps de séjour et de la concentration en O<sub>2</sub> mais également celle des radicaux O et OH sur la formation des NO. Ces radicaux, en particulier O, jouent en effet des rôles importants dans l'oxydation du combustible. Leurs concentrations peuvent être mesurées ou calculées à partir des conditions d'équilibre.

Il est possible de calculer le taux de conversion du N<sub>2</sub> en NO thermique à partir de la température et des concentrations en N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, O, OH, H<sub>2</sub>O. La vitesse globale de formation des NO<sub>x</sub> thermiques pour les trois équations est égale à [109]:

$$r = \frac{d[NO]}{dt} = 2[O] \left\{ \frac{k_1[N_2] - k_{-1} \frac{k_{-2}[NO]^2}{k_2[O_2]}}{1 + \frac{k_{-1}[NO]}{k_2[O_2] + k_3[OH]}} \right\} \quad (6.4)$$

où  $k_i$  représente la constante de vitesse des réactions (1.20, 1.21 et 1.22).

Si les concentrations initiales de NO et OH peuvent être négligeables, l'expression 6.4 peut être simplifiée :

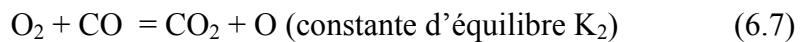
$$r = 2k_1[O][N_2] \quad (\text{mol.cm}^{-3}\text{s}^{-1}) \quad (6.5)$$

La formation des NO thermiques dépend non seulement de la température mais dépend aussi de la concentration en oxygène.

Pour les zones pauvres en combustible, on peut admettre que O est en équilibre avec O<sub>2</sub> (constante d'équilibre K<sub>1</sub>), d'où [110]:

$$[O] = K_1[O_2]^{\frac{1}{2}} \quad (6.6)$$

Dans les zones riches en combustible, on a proposé de tenir compte de la réaction :



ce qui donne [110] :

$$[O] = K_2 \frac{[O_2][CO]}{[CO_2]} \quad (6.8)$$

Si CO, CO<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> sont en équilibre, les deux équations donnent la même valeur pour [O]. Si le rapport [CO]/[CO<sub>2</sub>] est nettement supérieur à  $1/K_3[O_2]^{\frac{1}{2}}$  où K<sub>3</sub> est la constante d'équilibre de la réaction :

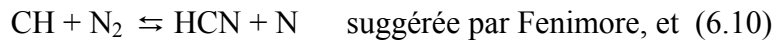


Les valeurs calculées pour l'équilibre « partiel » seront supérieures à celles prédites par l'équation de O en équilibre avec O<sub>2</sub>.

### I-3-2 Les NO<sub>x</sub> précoces

Le mécanisme de Zeldovich ne peut décrire seul la formation des oxydes d'azote dans les flammes et la formation du NO précoce (mécanisme de Fenimore) doit être considérée.

La formation de NO précoce est expliquée principalement par deux équations :



Miller et Bowman suggèrent également la réaction :



Ce type de formation de NO a lieu dans des zones réductrices et est associé à des temps de séjour courts dans la flamme.

Le HCN réagit ensuite avec de l'oxygène pour former des NO par la réaction [104, 105, 111] :



Cette dernière réaction est en compétition avec la réaction suivante :



La quantité de NO précoce formé est proportionnelle au nombre d'atomes de carbone présent dans la molécule du combustible. En raison de la complexité du mécanisme, une équation simplifiée a été proposée pour prédire la formation des NO<sub>x</sub> précoces [111, 112] :

$$\frac{d[\text{NO}]}{dt} = f T^\beta k^{pr} [\text{O}_2]^a [\text{N}_2] [\text{combustible}]^b \exp(-E_a/RT) \quad (6.15)$$

où f est un facteur de corrélation, fonction du type de combustible et du rapport air/combustible. Il est calculé comme

$$f = 4,75 + C_1 n - C_2 \Theta + C_3 \Theta^2 - C_4 \Theta^3 \quad (6.16)$$

où n est le nombre d'atomes de carbone dans la molécule du combustible. C<sub>1</sub>, C<sub>2</sub>, C<sub>3</sub> et C<sub>4</sub> sont égaux respectivement à 8,19.10<sup>-2</sup>, 23,2, 32 et 12,2. Θ est le rapport air / combustible ; a l'ordre de réaction de l'oxygène : il est déterminé en fonction de la fraction molaire en oxygène ; β, a et b sont des constantes. k<sup>pr</sup> est la constante de vitesse de la formation de NO précoce et E<sub>a</sub> est l'énergie d'activation.

La formation des NO est dominée par le mécanisme de formation des NO précoces ou par celui des NO<sub>x</sub> thermiques, cela selon la température. Ainsi, à une température inférieure à 1700 °C, les NO sont principalement des NO précoces alors que pour des températures élevées, la formation des NO suit principalement le mécanisme des NO thermiques [111].

### I-3-3 Les NO<sub>x</sub> combustibles

La principale source d'émissions de NO<sub>x</sub> lors de la combustion d'un charbon est l'azote contenu dans le combustible (0,5 à 2 %). Ces émissions dépendent de la température et de l'excès d'air. L'azote contenu dans le combustible se convertit en composés HCN et radicaux NH<sub>i</sub> qui s'oxydent et produisent des NO<sub>x</sub> [112]. Selon la bibliographie, plusieurs mécanismes de formation des NO<sub>x</sub> peuvent être pris en compte, considérant aussi bien les réactions en phase gaz que les réactions hétérogènes du coke (ou char) [111].

Selon [112], un premier mécanisme possible est celui où l'azote contenu dans le charbon (azote volatile et fixé) se convertit d'abord en HCN et par la suite, partiellement, en NO (mécanisme A, figure 6.1a). Dans un autre mécanisme (B), l'azote fixé qui se trouve dans le coke (ou char) se convertit directement en NO (figure 6.1b). Dans ces deux mécanismes, une partie de l'azote formé est ensuite réduite sur la surface du coke produisant de l'azote moléculaire.

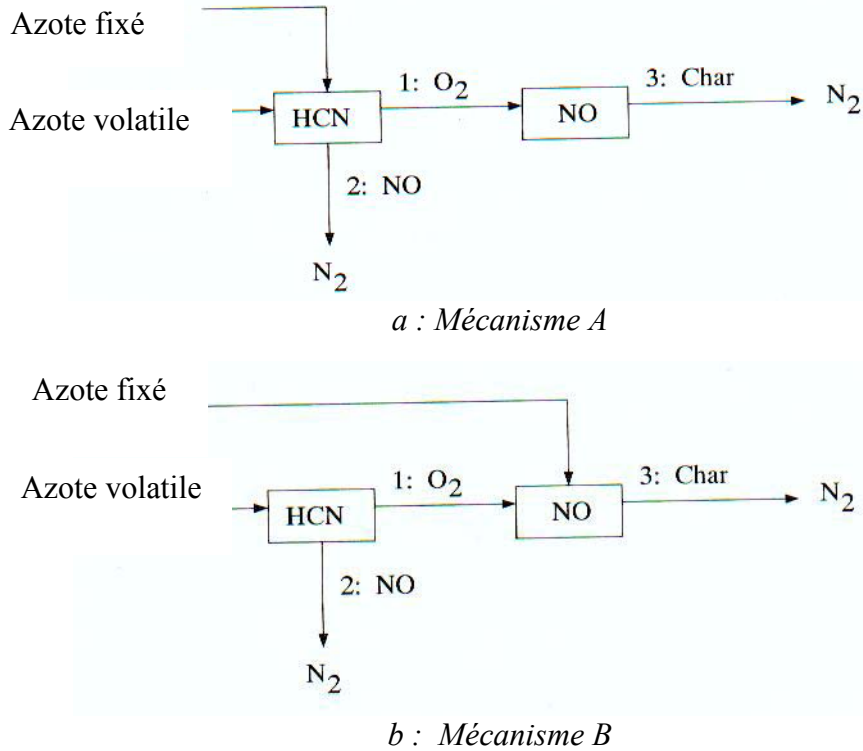


Figure 6.1 : Mécanismes de formation du NO et du N<sub>2</sub>

### a - NO<sub>x</sub> combustibles formés dans les réactions homogènes

D'après les figures 6.1a et 6.1b, les vitesses de conversion du HCN en NO par la réaction 1 (notée  $r_{1,HCN}$ ) ou en N<sub>2</sub> par la réaction 2 (notée  $r_{2,HCN}$ ) s'écrivent :

$$r_{1,HCN} = k_1 x_{HCN} x_{O_2}^a \exp(-E_1/RT) \quad (6.17)$$

$$r_{2,HCN} = k_2 x_{HCN} x_{NO} \exp(-E_2/RT) \quad (6.18)$$

- où
- $k_1$  et  $k_2$  sont les constantes de vitesse de conversion du HCN (s<sup>-1</sup>)
  - T la température instantanée (K)
  - $x_i$  les fractions molaires
  - R la constante des gaz parfaits
  - $E_1$  et  $E_2$  les énergies d'activation
  - a l'ordre de réaction de l'oxygène fonction de la fraction molaire en oxygène

Les NO combustibles sont produits par la réaction 1 mais détruits par la réaction 2. La vitesse de formation massique des NO combustibles par des réactions homogènes s'écrit :

$$\frac{d[NO]}{dt} = r_1 - r_2 \quad (6.19)$$



### b - NO<sub>x</sub> combustibles formés à partir du coke

Les relations 6.17 à 6.19 permettent de calculer la formation de NO à partir du HCN formé par les deux mécanismes A et B. Néanmoins, avec le mécanisme B, il est important de prendre en compte également la formation de NO directement par le coke grâce à la relation [111] :

$$r_{C, NO} = V_{comb} \xi_{char} m_{N, coke} / M_N \quad (6.20)$$

où

- $r_{C, NO}$  est la vitesse de formation des NO à partir du coke
- $\xi_{char}$  est une constante indiquant la fraction d'azote du coke converti en NO
- $m_{N, coke}$  la fraction massique d'azote dans le coke
- $M_N$  la masse molaire de l'azote
- $V_{comb}$  la vitesse de combustion du coke

### c - Réduction hétérogène avec le coke

La réaction hétérogène de la réduction des NO sur la surface du coke (réaction 3, figure 6.1 et 6.2) est représentée par la relation suivante [112]:

$$r_3 = k_3 \exp(-E_3/RT) S_c \overline{P_{NO}} \quad (6.21)$$

- où  $r_3$  est la vitesse de réduction du NO par unité de masse
- $\overline{P_{NO}}$  la pression partielle NO moyenne
- $S_c$  l'aire spécifique du coke
- $E_3$  l'énergie d'activation
- $k_3$  la constante de vitesse de la réduction du NO par le coke

## I-4 Modélisation de la combustion du grain de charbon

### I-4-1 La dévolatilisation

Plusieurs modèles permettent de décrire la cinétique de la dévolatilisation du grain de charbon. La plupart des approches utilisées dans les modèles de combustion représentent la vitesse de dévolatilisation en fonction de la température, sous la forme de la loi Arrhénius comme [113] :

$$r_v = f_v m_p k_v \exp\left(-\frac{E_v}{RT_p}\right) = r_{vo} \exp\left(-\frac{E_v}{RT_p}\right) \quad (6.22)$$

avec  $r_v$ , la vitesse de production de matières volatiles,  $r_{vo}$  le facteur pré-exponentiel,  $f_v$  la fraction massique de matières volatiles dans le grain de charbon,  $m_p$  la masse de la particule,  $k_v$  est la constante de vitesse,  $E_v$  est l'énergie d'activation de la dévolatilisation,  $T_p$  est la température de la particule,  $R$  est la constante des gaz parfaits.

Dans le cas d'un modèle de dévolatilisation limité à une réaction, la vitesse est supposée du premier ordre par rapport au taux de matières volatiles restant dans la particule. La réaction est décrite par l'équation suivante :



La vitesse de cette réaction supposée du premier ordre s'écrit :

$$\frac{dV}{dt} = k_{dev} \cdot (V_{\infty} - V) \quad (6.24)$$

où :

- $\frac{dV}{dt}$  représente le flux molaire de matières volatiles (mole.s<sup>-1</sup>) éjectées par la particule
- $V$  représente le nombre de moles de matières volatiles émises par la particule au bout d'un temps t (moles)
- $V_{\infty}$  représente le nombre de moles initial de matières volatiles de la particule (moles)
- $k_{dev}$  représente la constante de vitesse exprimée en s<sup>-1</sup> ; cette constante suit la loi d'Arrhenius et est de la forme de l'équation (6.22)
- t représente le temps.

Le modèle de dévolatilisation à deux réactions est le plus utilisé dans les codes de calculs. Les réactions sont décrites par la figure 6.2 [113].

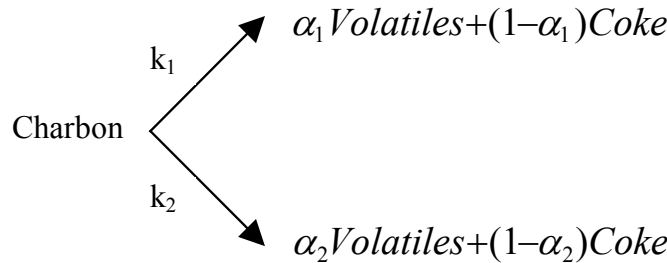


Figure 6.2 : Modèle de dévolatilisation à deux réactions

où  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  sont les coefficients stœchiométriques représentant la part de matières volatiles qui se dégage du grain de charbon dans chaque réaction.  $k_1$  et  $k_2$  sont des constantes de vitesse correspondantes. La vitesse de formation des matières volatiles s'écrit alors :

$$\frac{dV}{dt} = \alpha_1 \cdot k_1^0 \cdot \exp\left(-\frac{E_1}{RT}\right) (V_{\infty,1} - V) + \alpha_2 \cdot k_2^0 \cdot \exp\left(-\frac{E_2}{RT}\right) (V_{\infty,2} - V) \quad (6.25)$$

Ces approches nécessitent des constantes empiriques, obtenues à partir de la corrélation de vitesse de dévolatilisation, mesurées pour différents types de charbons bien spécifiques. La nature empirique de ces relations rend difficile la généralisation en dehors du domaine pour lequel les constantes ont été mesurées [110]. D'autres modèles plus sophistiqués existent et sont basés sur des lois de distribution d'énergies d'activation. Bien que complexes à mettre en œuvre, ils rendent cependant bien compte de la diversité des réactions chimiques intervenant durant la dévolatilisation [113, 114].

#### I-4-2 L'oxydation du coke

La modélisation de la combustion du coke (ou semi-coke) est complexe car elle inclue la vitesse de diffusion massique des espèces chimiques oxydantes à la surface d'un grain de charbon et la réaction en surface de ces espèces avec le coke [110, 111, 113, 114]. La vitesse de réaction pour une particule s'écrit :

$$r_{comb} = \frac{1}{\frac{1}{k_d} + \frac{1}{k_c}} \cdot S_{part} \cdot P_{O_2} \quad (6.26)$$

avec

- $k_d$  la constante de vitesse diffusionnelle exprimé en fonction du coefficient de diffusion de l'oxygène
- $k_c$  la constante de vitesse de la réaction chimique intrinsèque exprimée sous la forme d'une équation d'Arrhénius
- $S_{part.}$  la surface de la particule
- $P_{O_2}$  la pression partielle en oxygène.

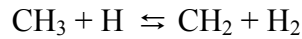
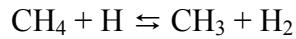
## I-5 Modélisation du reburning

### I-5-1 Décomposition et réaction des radicaux hydrocarbonés (reburning)

Glarborg *et al.* [104] décrivent la décomposition des radicaux  $CH_i$  avec  $i = 1$  à 4 lors de la combustion du méthane dans des conditions riches en combustibles par les réactions :



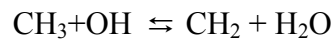
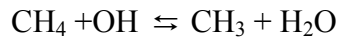
par exemple



Dans des conditions d'excès d'air, la réaction principale est la suivante :



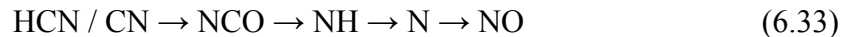
Exemples :



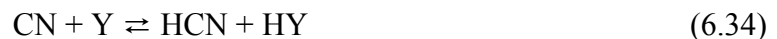
Glarborg attribue la destruction des oxydes d'azote à leurs réactions avec les radicaux C, CH et  $CH_2$  :



Le NO réagit donc avec les radicaux hydrocarbonés pour produire du CN et du HCN en grande quantité. Par la suite, le HCN et le CN formés sont convertis en espèces  $NH_i$  et peuvent produire du NO par la réaction :



CN peut également se transformer en HCN par la réaction [105] :



où Y peut être H, OH ou O. Dans des conditions de combustion sous-stœchiométriques (ou pauvres), la réaction du NO avec les radicaux libres d'hydrocarbures mène non seulement à la formation de HCN mais aussi à celle de  $N_2$ . En effet, le HCN peut être partiellement converti en  $N_2$  par les réactions suivantes :





Selon les conditions de combustion, les radicaux libres  $\text{NH}_i$  peuvent être oxydés en NO ou réagir avec les NO pour donner l'azote moléculaire.

### I-5-2 Modélisation du reburning dans des réacteurs simplifiés (« idéaux »)

Les considérations mécanistiques du paragraphe précédent ont été utilisées dans la modélisation et simulation du reburning. Etant donné la complexité de l'hydrodynamique dans les fours pilotes et les foyers industriels, la plupart des travaux de ce type concerne les réacteurs de laboratoire, proches du modèle de réacteur parfaitement agité ou réacteur piston idéal.

Glarborg *et al.* [104] ont analysé les émissions de NO lors de la combustion du méthane et modélisé ces émissions avec leur modèle cinétique. Bien que ce travail ne concerne pas le reburning, on peut y voir l'origine des travaux ultérieurs sur ce sujet, de la même équipe et d'autres groupes. Ils ont par ailleurs constitué une base de données cinétiques pour 213 réactions réversibles pour l'appliquer à l'analyse des données expérimentales de Bartok *et al.* et de Duterque *et al.* (d'après [33]) sur l'évolution des émissions de NO lors de la combustion du méthane dans un réacteur « jet-stirred ». Ces travaux ont abouti à des prédictions sur les émissions de NO supérieures aux données expérimentales dans des conditions d'excès d'air et inférieures dans des conditions riches en combustible. Une analyse de sensibilité a permis d'apprécier l'importance relative des différentes réactions élémentaires lors de la formation et de la destruction du NO.

En modélisant cinétiquement le reburning, Miller et Bowman [105] ont obtenu des valeurs prédites conformes à des données expérimentales obtenues avec un réacteur (agité ou à écoulement piston) et avec une grande variété de flammes. La principale réaction d'équilibre considérée dans cette modélisation entre le HCN et le CN a été la suivante :



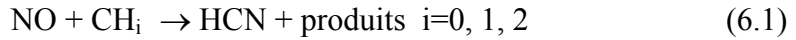
C'est une réaction très importante dans une zone de combustion en léger défaut d'air. Par la même occasion, dans des conditions légèrement sur-stœchiométriques ou stœchiométriques, les auteurs considèrent, comme importante, la réaction suivante :



Ces auteurs considèrent par ailleurs que, pour des températures de flamme de 800 °C, le  $\text{N}_2\text{O}$  peut se former comme une espèce intermédiaire. Le  $\text{N}_2\text{O}$  est une espèce qui a une courte durée de vie dans des gaz de combustion chauds. Il peut être issu de la transformation du NO et peut produire du  $\text{N}_2$ .

Kristensen, Glarborg et Dam-Johansen [50] ont étudié les processus chimiques dans la zone de postcombustion dans les réacteurs à écoulement piston. Ensuite, ils ont tenté de modéliser les résultats en utilisant les modèles cinétiques détaillés (Glarborg *et al.* [104], Miller et Bowman [105]) et le logiciel Chemkin. Les deux modèles cinétiques permettent d'obtenir des prédictions correctes dans le cas d'une combustion à excès d'air. Néanmoins, dans des conditions riches en combustible, les deux modèles font défaut.

Mereb et Wendt [41] ont utilisé les résultats de Glarborg *et al.* [104] pour modéliser leurs expériences sur le reburning au gaz naturel et sur l'étagement de l'air dans un réacteur à écoulement piston. Afin d'exprimer la vitesse de décomposition des NO, les auteurs se sont basés des réactions (6.1) et (6.3) :



Les concentrations des intermédiaires  $\text{NH}_i$  et  $\text{CH}_i$  ont été exprimées par celles des  $\text{NH}_3$  et  $\text{CH}_4$  à partir des conditions d'équilibre des réactions :



Le résultat final permet d'aboutir à la relation :

$$\frac{d\text{NO}}{dt} = - f_1[\text{NO}] [\text{NH}_3] - f_2[\text{NO}] [\text{CH}_4] \quad (6.44)$$

où les fonctions  $f_1$  et  $f_2$  sont des fonctions complexes de la température et des concentrations en OH et  $\text{H}_2\text{O}$ .

Les valeurs prédites par Mereb et Wendt sont relativement proches des valeurs obtenues lors des essais de reburning au gaz naturel sur des flammes au gaz naturel enrichies de  $\text{NH}_3$ . Bien que, dans le cas d'un reburning au gaz naturel sur une flamme à charbon, le modèle présente quelques difficultés de prédictions pour la décomposition rapide du HCN à hautes températures, l'ensemble des prédictions des teneurs en espèces azotées est globalement satisfaisant. Les concentrations de NO prédites sont toutefois trop élevées et celles de  $\text{NH}_3$  trop faibles par rapport aux données expérimentales. Selon Mereb et Wendt, ces différences entre valeurs prédites et résultats expérimentaux peuvent être dues à une estimation erronée de la concentration de l'espèce OH. Ce modèle cinétique a été appliqué au procédé d'étagement de l'air et les comparaisons obtenues entre les valeurs prédites et les données expérimentales, pour toutes les espèces azotées, sont relativement bonnes. Globalement, le modèle décrit mieux l'étagement de l'air que le reburning [41].

Kilpinen, Glarborg et Hupa [106] ont développé un modèle basé sur le modèle cinétique détaillé de Glarborg [104] modifié par Glarborg et Hadvig (d'après [33]). Aucune réaction hétérogène n'est considérée, seules les réactions des gaz sont prises en compte dans ce modèle. Les modifications, qui ont été apportées, sont des nouvelles évaluations de données cinétiques. Afin de vérifier la crédibilité du modèle, les résultats des calculs ont été comparés à des données expérimentales obtenus par Chen *et al.* (combustion du méthane additionné de NO, modèle de réacteur parfaitement agité). Comme la comparaison s'est avérée satisfaisante, Kilpinen *et al.* considèrent que leur modèle permet une bonne description de la formation et de la destruction des espèces azotées dans la zone de reburning. Cependant, les principales incertitudes viennent de la prédiction de concentrations de radicaux hydrocarbonés et de constantes de vitesse de quelques réactions entre des radicaux hydrocarbonés et les  $\text{NO}_x$ . Concernant la zone de postcombustion, les auteurs ne sont pas capables de tester leur système réactionnel en raison d'un manque de données expérimentales.

Les auteurs ont ensuite utilisé leur modèle pour simuler le reburning dans un réacteur isotherme à écoulement piston. Comparées à des données expérimentales recueillies par Mereb et Wendt, pour le reburning dans des conditions de combustion de charbon pulvérisé, les valeurs prédites sous-estiment la réduction des NO. Selon les auteurs, la différence est due

partiellement au problème de temps de mélange entre le combustible de reburning et les gaz issus de la combustion primaire, et d'autre part à la différence entre l'écoulement réel et le modèle d'écoulement piston.

Seo *et al.* [51] ont utilisé le modèle cinétique de Kilpinen *et al.* [106] et le code de calcul de cinétique chimique Senkin afin d'étudier la réduction des NO<sub>x</sub> par le reburning. Ils ont pu vérifier que les valeurs prédites sont proches des données expérimentales obtenues avec un réacteur à écoulement piston pour des stœchiométries de la zone de reburning supérieures à 0.6. Bilbao *et al.* [115] ont également comparé des valeurs expérimentales (obtenues lors d'essais paramétriques avec un réacteur) avec des données prédites. Le modèle utilisé est un modèle détaillé, basé sur celui de Kilpinen *et al.* [106] (complété par quelques réactions provenant du modèle de Glarborg) et le logiciel de cinétique chimique est Chemkin. Les comparaisons entre valeurs expérimentales et données prédites sont bonnes pour une température de 1300 °C. Pour 1400 °C et une stœchiométrie de reburning proche de 1, les teneurs prédites en NO sont plus grandes que les valeurs expérimentales. A cette même température et pour une stœchiométrie proche de 0,9, les teneurs prédites en HCN sont également différentes des données expérimentales. Néanmoins, les teneurs prédites en CO et en CO<sub>2</sub> sont sensiblement les mêmes que celles obtenues expérimentalement.

## II - Modélisation hydrodynamique

### II-1 Introduction

Dans les systèmes étudiés, la vitesse de réaction est souvent limitée par la dynamique des fluides, notamment par l'écoulement et par la diffusion turbulente de la chaleur et des réactifs. Le système ne peut alors être traité comme un problème purement cinétique. Afin de prendre en compte les phénomènes de turbulences et d'écoulement, on utilise des logiciels de mécanique numérique des fluides (Computational Fluid Dynamic ou C.F.D.) ; C'est une approche nécessaire car elle permet de simuler ou de modéliser des mécanismes complexes et d'effectuer les traitements mathématiques affinés et diversifiés des équations du modèle. La C.F.D est un outil efficace et très utile dans le domaine du génie des réactions chimiques.

### II-2 Modélisation de la combustion

Beaucoup d'efforts se sont focalisés sur le développement de modèles mathématiques multidimensionnels permettant de représenter les chaudières, les réacteurs et/ou autres systèmes de gazéification et de pyrolyse. Ces outils permettent de caractériser et d'analyser les procédés de combustion des combustibles fossiles et de représenter les procédés d'écoulement réactif, remplaçant les expériences physiques par des expériences numériques [113]. Le développement et l'application de ces modèles numériques de combustion, simples et multidimensionnels, s'accroissent. Jadis uniquement considérés comme des codes de calculs de recherche spécialisés, ces modèles de combustion deviennent plus facilement accessibles comme options dans des codes de calculs de mécanique numérique des fluides, disponibles commercialement. Des simulations qui ont été faites avec de tels codes de calculs offrent un grand potentiel pour l'analyse, le design, le retrofit et l'optimisation des rendements de systèmes de conversion et de combustion de combustibles fossiles.

La technologie des modèles de combustion permet de faire le lien entre des essais sur des pilotes donnant des informations valables qui sont toutefois impossibles à extrapoler en raison de la complexité des procédés d'écoulements réactifs et turbulents, et des installations

industrielles dont les données sont limitées aux mesures des effluents. Ces modèles offrent une meilleure caractérisation des procédés de combustion que les programmes expérimentaux (gains financiers et de temps, plus d'informations).

Toutefois, il est important de faire des comparaisons entre les prédictions faites par le modèle de combustion et les données expérimentales mesurées dans des flammes de réacteurs. En conséquence, des données obtenues avec une série de bancs d'essai de différentes tailles sont nécessaires pour valider la fiabilité des prédictions du code de calcul et établir le degré de précision que le code de calcul peut faire sur le comportement des foyers industriels [113].

## II-2-1 Caractéristiques des modèles de combustion

Un modèle de combustion inclut les nécessaires phénomènes chimiques et physiques, ce qui permet par la suite de considérer notamment le procédé de combustion du charbon pulvérisé. Ces phénomènes sont donc, pour les écoulements gazeux et gaz-solide :

- La mécanique des gaz turbulents avec transfert de chaleur,
- La combustion turbulente,
- Le transfert de l'énergie radiative.

La combustion des particules et des gouttelettes prend en compte :

- La mécanique des fluides multiphasiques turbulents,
- La vaporisation du liquide à partir de particules ou de gouttelettes,
- La dévolatilisation et l'oxydation des particules.

La combustion du charbon pulvérisé nécessite une prise en compte de la formation de poussières et de polluants ainsi que le comportement des cendres (« slagging » et « fouling »).

### a - Ecoulement turbulent gazeux avec transfert de chaleur

Le mouvement d'un fluide peut être déterminé par cinq variables ou au moins cinq équations : trois composantes de la vitesse et deux propriétés thermodynamiques. En dérivant ces équations, trois lois de physiques sont employées :

- La conservation de la masse (pour un fluide newtonien, l'écoulement est caractérisé par l'équation de continuité),
- La conservation de l'énergie (équation de l'énergie),
- La seconde loi du mouvement de Newton (équation de Navier-Stokes dit équation de moment ou de mouvement).

Pour résoudre ces équations, diverses techniques numériques peuvent être employées comme la simulation numérique directe ou les dynamiques des vortex. La méthode la plus utilisée pour la modélisation CFD est la méthode de discrétisation. Dans cette méthode, les dérivées des équations différentielles sont approximées par des expressions algébriques correspondant à des distances discrètes dans le domaine de l'écoulement. Ces expressions algébriques peuvent être dérivées par la méthode des éléments finis ou des différences finies. La discrétisation peut également avoir lieu également sur la forme intégrale des équations de conservation à la place de la forme différentielle. La méthode de dérivation la plus utilisée est celle des volumes finis. Le résultat final de la méthode de discrétisation est un ensemble

d'équations algébriques qui peuvent être résolues afin de prédire la masse, le moment et l'énergie à des points discrets du domaine de l'écoulement. Cette collection de points peut être appliquée à un maillage.

Deux méthodes de résolution de ces équations de discrétisation existent : celle basée sur un fluide compressible (calcul basé sur la densité) et celle basée sur un fluide incompressible (calcul dit isolé ou séparé pour une séparation de la solution de la pression de la prédiction de la vitesse). Dans la plupart des simulations de combustion de combustibles fossiles, la forme incompressible des équations de mouvement est résolue en utilisant la méthode des volumes finis pour les équations de discrétisation [113].

Plusieurs relations peuvent être développées afin de mettre en évidence les effets de la turbulence sur les phénomènes de transports. Pour cela, il suffit de décomposer les grandeurs instantanées  $\Phi$  des équations de conservation en une somme d'une valeur moyenne  $\bar{\phi}$  et d'une fluctuation  $\phi'$ , telle que  $\Phi = \bar{\phi} + \phi'$ . Cette décomposition permet de mettre en relief dans les équations de conservation, les termes du tenseur de Reynolds, termes responsables de la turbulence. Les équations du tenseur de Reynolds peuvent être résolues directement en développant plusieurs approches pour la solution mais des corrélations du troisième ordre sont difficiles à approximer (modèle des tenseurs de Reynolds). La plupart des modèles de turbulence utilisent l'hypothèse de Boussinesq dans laquelle le tenseur de Reynolds est exprimé par des formules empiriques. Une constante de proportionnalité est de ce fait définie comme la viscosité turbulente supposée uniforme dans tout le fluide. Plusieurs modèles constitués d'une multitude d'équations différentielles permettent de déterminer cette viscosité turbulente, la plus connue étant le modèle de la longueur de mélange de Prandtl (modèle à 0 équation) où la viscosité turbulente est définie en fonction d'une longueur de mélange. Un autre modèle permet d'exprimer cette viscosité turbulente en fonction d'une grandeur  $k$  définie comme l'énergie cinétique des fluctuations des vitesses turbulentes (modèle de turbulence à 1 équation). Des modèles à deux équations comme les modèles  $k-\omega$  et  $k-\varepsilon$  ont été déterminés et donnent des prédictions plus ou moins fiables dans la modélisation de la turbulence. D'autres modèles de turbulence existent et permettent d'obtenir des prédictions fiables dans le cas d'écoulements fortement turbulents (modèle Renormalization Group ou RNG, modèle Large Eddy Dissipation ou LES).

Pour modéliser la transition de l'écoulement laminaire en écoulement turbulent, il est possible de développer l'approche des fonctions de paroi (où une expression analytique est utilisée pour modéliser la distribution de la vitesse et de la température) ou l'approche d'un faible nombre de Reynolds (où la turbulence est modifiée pour inclure les termes prenant en compte la transition de l'écoulement turbulent en écoulement laminaire).

### **b - Combustion turbulente gazeuse**

La simulation des procédés de combustion turbulente non-prémélangée (le combustible et le comburant ne sont pas mélangés avant la combustion) a besoin d'une structure efficace pour modéliser le mélange et les réactions des espèces chimiques. Parallèlement aux équations de conservation pour la masse, le mouvement et l'énergie, une autre équation est donc prise en compte pour chaque espèce chimique. Un terme de production ou de disparition d'une espèce chimique est déterminé [113] :

$$r_i = (v_i - v_i^*) M_i k \prod_l C_l^{\gamma_l} \quad (6.45)$$



avec  $\nu_i'$  et  $\nu_i$  les coefficients stœchiométriques de l'espèce  $i$  pour respectivement les produits et les réactifs,  $M_i$  le poids moléculaire de cette espèce ; le coefficient  $k$  est une vitesse de réaction en général exprimée par une équation Arrhenius modifiée.  $C_l$  est la concentration molaire de l'espèce réactive  $l$  et  $\nu_l$  son coefficient stœchiométrique.

En considérant chaque variable de cette équation égale à une somme d'une valeur moyennée et d'une fluctuation et en les remplaçant dans cette équation, il est possible de décomposer l'équation du terme de production par un système d'équations. En couplant une solution simplifiée de ce problème à la mécanique des fluides, deux hypothèses d'échelle de temps différents sont utilisées :

- L'échelle de temps de la réaction qui est le temps typique nécessaire à une espèce pour réagir et atteindre l'équilibre,
- L'échelle de temps pour le mélange turbulent qui est le temps typique requis pour que les tourbillons turbulents à grande échelle se dissipent et laissent agir les interactions moléculaires,

et deux approches de modélisation peuvent être utilisées :

- Soit les espèces chimiques sont pré-mélangées ou le temps de mélange turbulent est trop rapide comparé à l'échelle de temps de réaction
- Soit l'échelle du temps de mélange turbulent est du même ordre ou est plus longue que les échelles de temps de réaction de la plupart des espèces chimiques intéressantes.

Dans le cas où le temps de mélange est similaire au temps de réaction, il est possible de modéliser les deux échelles de temps simultanément. Néanmoins, dans le cas où le temps de mélange est plus long que le temps de réaction, le mélange turbulent est traité plus en détails. Pour cela, on prend en compte une variable scalaire appelée fraction de mélange qui définit le degré de mixité entre des constituants massiques. La fonction de densité de probabilité est utilisée avec cette fraction scalaire pour calculer des valeurs moyennes en temps ([113], annexe 7).

### c - Transfert de l'énergie radiative

La caractérisation du transport de l'énergie radiative est un élément crucial pour la modélisation des systèmes de combustion mais c'est aussi un phénomène assez complexe. Par exemple, la radiation inclut les contributions des particules charbon/coke, cendres et poussières.

Deux approches complémentaires sont utilisées pour étudier l'interaction des radiations avec des solides, gaz et liquides. La première tient compte de l'interaction des radiations avec un gaz, solide ou liquide à un niveau atomique ou moléculaire, permettant de distinguer les propriétés radiatives de ces matériaux. Ces propriétés sont utilisées dans une seconde approche pour étudier le transfert de chaleur par radiation. L'étude du transfert de chaleur par radiation est possible au moyen d'une équation différentielle exprimant l'intensité de radiation en fonction de trois termes représentant le changement d'intensité due à l'absorption, l'émission et la diffusion. Les conditions aux frontières sont définies en terme de coefficients d'absorption, d'émission et de diffusion des parois. L'intégration d'une telle équation permet de donner une expression de la conservation de l'énergie radiative

directement liée à l'équation de l'énergie. Plusieurs méthodes existent permettant de prédire les propriétés radiatives des gaz ou de particules [113].

La solution de l'équation différentielle du transfert de l'énergie radiative est difficile à obtenir. Plusieurs méthodes de solutions, fiables et différentes selon le système physique étudié, peuvent être obtenues à partir de certaines approximations. Ce sont à la fois des méthodes [113] :

- Statistiques (méthode de Monte-Carlo) notamment pour des géométries complexes. Leur forme la plus simple est celle d'un nombre fini et très large de photons qui se propagent dans toutes les directions.
- Zonales (méthode de zones de Hottel), très utilisées pour les transferts de chaleur dans les chambres de combustion, dans lesquelles les surfaces et les volumes sont décomposés en plusieurs zones, chacune ayant leur propre température et leurs propres propriétés radiatives. Un équilibre énergétique est déterminé pour chacune des zones. Le flux de chaleur radiative est généré par l'échange de chaleur entre plusieurs zones.
- De flux, basé sur la séparation des dépendances angulaires des intensités rayonnantes. Le fait que les intensités soient uniformes sur des intervalles définies d'angle solide, permet de simplifier l'équation intégro-différentielle en une série d'équations différentielles, linéaires, couplées et exprimées en terme d'intensités radiatives ou de flux radiatifs.
- D'approximation ordonnées discrètes (cas particulier de la méthode de flux) qui appliquent des contraintes appropriées telles que la symétrie, le moment ou la conservation de l'énergie radiative. C'est une méthode de choix dans les modèles de combustion aussi bien que dans d'autres procédés de mécanique des fluides ou de transfert de chaleur où la radiation est un mode important de transfert d'énergie.
- D'intensité radiative exprimée par une série de produits de fonctions angulaires et spatiales. Si la dépendance angulaire est exprimée par un développement de Taylor, la méthode est connue comme la méthode de moment. Si des harmoniques sphériques sont utilisées pour exprimer l'intensité, c'est l'approximation des harmoniques sphériques. Le premier ordre des harmoniques sphériques (P1) est une approximation simple qui peut être calculée comme une équation différentielle du second ordre mais la simplicité sacrifie la fiabilité.
- Hybrides combinant diverses autres méthodes tel que le modèle de transfert discret associant les vertus des méthodes de zones, de Monte-Carlo et des ordonnées discrètes.

#### **d - Les modèles d'écoulement multi-phase pour des écoulements réactifs**

Plusieurs procédés de combustion font intervenir des matières multi-phases réagissant et interagissant simultanément. Le combustible est très souvent un solide ou un liquide. Un modèle de combustion doit être capable de prendre en compte le transport de masse, d'énergie et de moment pour chaque phase intéressante aussi bien que l'échange de ces quantités entre les différentes phases.

Un cas relativement simple se présente quand les particules solides ou les gouttelettes liquides entraînées dans un écoulement gazeux sont diluées (fraction volumique négligeable) et dispersées (interactions particule-particule négligées). Dans le cas de la combustion du charbon pulvérisé, les particules sont entraînées dans le gaz et ont une fraction volumétrique presque insignifiante.

Pour la modélisation d'un écoulement multi-phase, dilué et dispersé, on peut différencier deux catégories [113] :

- un écoulement homogène avec des vitesses d'échanges interphase rapides pour la masse, le moment et l'énergie. Les phases sont alors constamment en équilibre dynamique et thermodynamique en chaque point du fluide. Il y a le cas spécial où la densité de la particule est similaire à celle du fluide : les effets d'inertie de la particule peuvent être négligés et les particules ont la vitesse du fluide en ce point.
- un écoulement séparé où les vitesses de transports interphases sont considérées. Trois formulations peuvent être utilisées :
  - le modèle d'écoulement séparé Eulérien-Eulérien où la phase particule et la phase gaz sont considérés continu en espace et en temps.
  - l'expression Lagrangienne où la phase gaz est traitée comme une continuité par l'approche de discrétisation.
  - l'expression probabiliste par la fonction de densité de probabilité pour caractériser la distribution des particules dans la phase continue.

#### **e - Les modèles de réaction des particules**

Une relation additionnelle requise pour la modélisation de la combustion des particules, comme le charbon, le coke ou les combustibles liquides, est la vitesse de changement de la masse des gouttelettes ou des particules dues aux procédés de vaporisation, de dévolatilisation et d'oxydation du coke. Cette vitesse doit être exprimée en fonction de la taille des particules, de la composition et de la température des gaz environnants [110, 113, 114]. Cette vitesse a été définie dans le chapitre I pour la dévolatilisation du grain de charbon et l'oxydation du résidu carboné.

#### **f - Les modèles de formation des oxydes d'azote**

Le développement d'un modèle efficace prédisant la formation de polluant dans un système de combustion demande une caractérisation adéquate des réactions hétérogènes et homogènes parmi les espèces oxydantes, le combustible et l'azote. Des descriptions additionnelles sont nécessaires quant à la conversion de l'azote du combustible en matières volatiles [110, 111, 112, 113, 114].

Pour simuler les quatre processus de formation et de destruction des  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO}_x$  thermique,  $\text{NO}_x$  précoce,  $\text{NO}_x$  combustible, reburning), il faut résoudre séparément les équations de transport massiques pour les espèces NO prenant en compte la convection, la diffusion, la production et la destruction des NO et des espèces associées (« post-processing »).

## II-3 Exemples de modélisation du reburning

### II-3-1 Modélisation cinétique couplée à une modélisation hydrodynamique simplifiée

Afin de prédire l'efficacité du reburning pour différentes valeurs des conditions opératoires, Rota *et al.* [116] ont couplé un modèle détaillé de la chimie des gaz avec une description simplifiée de la dynamique des fluides. La modélisation chimique comprend un grand nombre de réactions élémentaires et inclut plusieurs espèces chimiques. Plusieurs modèles cinétiques détaillés ont été explicités et sont considérés, notamment les mécanismes cinétiques complexes de Miller et Bowman [105] et de Kilpinen *et al.* [106] (tous deux basés sur le mécanisme de Glarborg *et al.* [104]). L'objectif est de prédire le comportement du système en modifiant les valeurs des paramètres opératoires. Pour cela, peu de paramètres sont fixés.

De bonnes comparaisons sont faites entre les données prédites (par l'intermédiaire du logiciel Chemkin) en utilisant l'un ou l'autre de ces deux modèles cinétiques dans des conditions de reburning (configuration d'un réacteur parfaitement agité iso-thermique) et celles issues des expériences faites par Chen et Malte (d'après [106]), avec un reburning au méthane sur un réacteur à jet entraîné, où les conditions d'un bon mélange sont atteintes.

La modélisation du reburning, permettant de décrire la cinétique des gaz et de prédire le rendement de la dénitrification, se heurte néanmoins à deux problèmes : le premier concerne la composition des gaz quittant le premier étage et entrant dans l'étage du reburning et le deuxième est relatif à la complexité du mélange. Si le premier problème dépend en fait de la nature du combustible primaire (gaz, solide ou liquide) et du brûleur (les combustibles liquides ou solides entraînent des réactions hétérogènes qui posent des problèmes pour développer un modèle de simulation), le deuxième problème inclut la description de la chambre de combustion par un modèle d'écoulement. La vitesse d'injection du second jet de combustible peut affecter le mélange. Cela rend impossible la simulation avec un modèle idéal à écoulement piston et un autre modèle doit être développé où le combustible de reburning est uniformément mélangé aux gaz issus de la zone primaire.

De nouvelles prédictions ont été faites avec un autre réacteur dans les conditions de reburning, en utilisant les modèles cinétiques de Miller et Bowman [105] et de Kilpinen *et al.* [106]. Bien que la tendance de l'évolution de la teneur en NO soit la même, les deux modèles ne donnent pas les mêmes prédictions pour ce modèle de réacteur où les réactifs ne sont pas pré-mélangés. En effet, le modèle de Kilpinen *et al.* [106] calcule une réduction plus importante des émissions de NO que le modèle de Miller et Bowman [105]. Les résultats sont donc en contradiction avec ceux obtenus avec le précédent réacteur où les deux modèles donnaient des prédictions sensiblement similaires. Les différences obtenues avec le nouveau modèle de réacteur sont liées à l'interaction non linéaire entre la dynamique des fluides et les réactions chimiques.

Cette modélisation a par la suite été testée avec des données expérimentales obtenues par Kolb *et al.* [48] avec une chambre de combustion. Une longueur caractéristique pour le procédé de mélange est calculée à partir de la formule de la pénétration d'un jet dans un écoulement (longueur de mélange définie dans la première partie). Un temps caractéristique de mélange est également calculé. Deux valeurs obtenues pour ces formules (un jet à grande vitesse et un jet à faible vitesse) ont été comparées aux valeurs prédites par les deux modèles cités auparavant (Miller et Bowman [105], Kilpinen *et al.* [106]). Bien que la tendance soit la

même entre les deux modèles, quelques différences existent dans les résultats présentés. Les auteurs concluent toutefois que le modèle de Miller et Bowman est plus performant que celui de Kilpinen *et al.*.

Un modèle couplant un schéma cinétique détaillé et les équations de la dynamique des fluides a donc été développé, afin de simuler l'efficacité du procédé de reburning. Il est capable de prédire la tendance de la concentration expérimentale des NO et de décrire le procédé de mélange. Le choix à la fois du schéma cinétique et du modèle de réacteur joue un rôle fondamental car il permet de rendre fiable l'approche développée.

### II-3-2 Modélisation cinétique couplée à une utilisation mixte d'un écoulement idéal (« piston ») et d'un écoulement complexe

Ernola *et al.* [117] ont effectué une modélisation cinétique détaillée, dans des conditions optimales d'écoulement piston. Leur objectif est d'étudier la chimie de l'azote au cours du reburning. L'étude des cinétiques chimiques dans des conditions de bon mélange permet de caractériser l'influence des différents paramètres sur la formation de polluants. Néanmoins, le système étudié ne peut être traité comme un problème purement cinétique et les vitesses de réaction sont souvent limitées par la dynamique des fluides. Pour cela, le modèle cinétique détaillé a ensuite été étudié avec un modèle d'écoulement plus complexe.

#### a - Ecoulement idéal (« piston »)

Les calculs, effectués dans le cas d'un réacteur piston, ont été réalisés grâce au code de calcul Chemkin. Les mécanismes de réactions et les données thermodynamiques sont issues de la littérature. Deux mécanismes de réduction des émissions de NO sont étudiés afin de caractériser l'importance de la réduction des NO par les hydrocarbures :

- Le mécanisme de Glarborg comprenant les réactions d'oxydation du CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, HCN et NH<sub>3</sub>, accompagné des interactions entre l'azote et les espèces hydrocarbonées (formation du NO précoce et réactions NO/C<sub>i</sub>H<sub>j</sub>)
- Un mécanisme où les réactions des NO avec les radicaux hydrocarbonés sont omises. Dans ce mécanisme, sont exclues les réactions suivantes :



Les prédictions montrent une contradiction avec les données issues de la littérature. En effet, le H<sub>2</sub> est le combustible de reburning le plus efficace [117] alors que la littérature indique une meilleure efficacité du reburning avec des hydrocarbures comme combustible de reburning, contrairement au H<sub>2</sub> qui est moins efficace (Chen *et al.* d'après [117]). Ces contradictions dans les résultats résultent en partie des conditions idéales prises pour les calculs, totalement différentes des conditions expérimentales. D'autres explications à ces contradictions s'expliquent par les mécanismes réactionnels prises en compte : en effet, seules quatre réactions sont prises en compte alors que selon Miller et Bowman [105], les espèces CH<sub>3</sub> et CH<sub>2</sub> réagissent avec le NO.

### **b - Méthode de zones**

Une modélisation a été entreprise avec un modèle d'écoulement plus complexe. Elle nécessite trois phases d'études et est appliquée à un foyer de 8 MWth :

- La première phase de cette modélisation nécessite une simulation de l'écoulement en 3 dimensions. Les différents transferts de masse, de moment et de chaleur entre les particules d'hydrocarbures et les gaz ont été déterminés. La combustion turbulente a été modélisée au moyen du modèle de turbulence k- $\epsilon$ .
- Dans la deuxième phase de la modélisation, l'écoulement est divisé en plusieurs séries de "tubes" d'écoulement hypothétique de même température et de même stœchiométrie représentant chacun un écoulement piston idéal avec des cinétiques chimiques détaillées.
- Lors de la troisième phase, le schéma cinétique chimique homogène est appliqué à chaque tube.

Que ce soit pour une combustion classique, pour un étage de l'air ou pour le reburning, les profils de concentration de NO<sub>x</sub> calculés sont identiques aux données expérimentales. Néanmoins, selon les auteurs, il apparaît nécessaire d'obtenir plus de données expérimentales afin de tester et de prouver la crédibilité du modèle.

### **II-3-3 Modélisation hydrodynamique couplée à une modélisation cinétique simplifiée**

Ehrhardt *et al.* [118] ont également développé un modèle afin de prédire la réduction des émissions de NO<sub>x</sub> par le reburning et de définir les conditions opératoires optimales. Comme l'a suggéré Rota *et al.* [116], il est possible de coupler, dans les cas de flammes turbulentes industrielles, les calculs des propriétés d'écoulement de fluide, de températures et de concentrations d'espèces chimiques avec un modèle détaillé de la réduction des NO par des espèces hydrocarbonées. Cela nécessite, toutefois, de longs calculs et une autre approche consiste à utiliser un modèle cinétique réduit avec une modélisation de dynamique des fluides (C.F.D.). Les cinétiques chimiques sont significativement simplifiées (Braun *et al.* [119]). Ils proposent, néanmoins, l'utilisation d'un modèle complet de cinétiques chimiques dont les calculs sont séparés de ceux de la dynamique des fluides. Dans ce concept, l'écoulement est tout d'abord modélisé par l'intermédiaire d'un code C.F.D. (modélisation de la turbulence par le modèle standard k- $\epsilon$ ) avec un modèle cinétique réduit afin de déterminer le dégagement de chaleur par oxydation du combustible. Cela permet de connaître les vitesses, les températures, les densités et la turbulence de l'écoulement. Par la suite, l'écoulement est fractionné en plusieurs zones et les concentrations des espèces chimiques sont ensuite re-calculées dans chaque zone à l'aide d'un modèle cinétique détaillé. Chaque zone est alors considérée comme un réacteur piston. Ces calculs ne sont pas seulement effectués pour la concentration en NO mais également pour la concentration d'autres espèces.

Ernola *et al.* [117] ont également appliqué cette méthode de zones à la modélisation cinétique détaillée où chaque tube d'écoulement est représentatif de l'écoulement entier. Cela permet de calculer la réduction des NO<sub>x</sub> par le reburning, au sein de l'écoulement d'un foyer pilote, sans simplification considérable de la dynamique de fluides. L'application du modèle de zone au reburning requiert, toutefois, plusieurs informations sur le lieu du jet du combustible de reburning (vitesse axiale, densité), la température, le temps de séjour (vitesse axiale) et les échanges turbulents. L'interaction entre les zones en question est par ailleurs d'une importance fondamentale pour le modèle. Les comparaisons entre les prédictions, faites

grâce à Chemkin pour le modèle de zone, et les données expérimentales obtenues, avec un combustible de reburning enrichi ou non de  $\text{NH}_3$ , sont relativement bonnes. Cependant, des contradictions subsistent comme, par exemple, la sur-prédiction de la réduction du NO dans le jet du combustible de reburning.

Dans le cas d'un combustible de reburning enrichi de  $\text{NH}_3$ , les fractions molaires de différentes espèces sont mesurées et comparées aux valeurs prédites avec le modèle cinétique de Miller et Bowman [105]. Pour la plupart des espèces, les valeurs prédites sont correctes mais une contradiction existe entre les valeurs prédites et expérimentales concernant la teneur en NO. Le modèle de Glarborg et Hadvig d'après [33] a également été appliqué et comparé à celui de Miller et Bowman [105] afin de déterminer la sensibilité du modèle de zone au modèle cinétique utilisé. Les résultats calculés avec le modèle de Glarborg et Hadvig ne permettent pas d'avoir d'aussi bonnes comparaisons avec les données expérimentales que celles obtenues par le modèle de Miller et Bowman [105]. Selon Ehrhardt *et al.* [118], Braun *et al.* [119] qui ont modifié le modèle de Glarborg et Hadvig, obtiennent de meilleures comparaisons entre les données prédites et expérimentales mais pas encore satisfaisantes dans le cas de la teneur en NO. Dans le cas d'un combustible de reburning non enrichi, nous avons les mêmes différences entre l'expérimentation et la modélisation et également entre les trois modèles cinétiques envisagés.

Une évaluation de l'efficacité du reburning est possible en utilisant le modèle de zone pour un écoulement turbulent dans un foyer pilote. Ce modèle permet également de montrer les différences entre les modèles cinétiques. Les résultats sont toutefois prometteurs et montrent que la méthode des zones peut être adaptée au calcul d'espèces chimiques au sein de flammes turbulentes.

### II-3-4 Modélisation hydrodynamique

En utilisant des résultats expérimentaux obtenus avec un four pilote de 160 KWth, Hesselmann *et al.* [67] ont modélisé l'étagement de l'air et le reburning sur une chaudière de 600 MW par la C.F.D. Leurs objectifs sont de pouvoir prédire les effets de la qualité du charbon sur les teneurs en  $\text{NO}_x$  et en carbone imbrûlé pour différents excès d'air. Le modèle standard de la turbulence  $\kappa - \varepsilon$  a été utilisé. Ils ont toutefois obtenu des teneurs prédites en  $\text{NO}_x$  et en carbone imbrûlé plus importantes que les valeurs expérimentales.

Martin *et al.* [46] ont également entrepris une modélisation en 3 dimensions et ont pris en compte tous les types de transfert de chaleur. Ils ont par ailleurs utilisé le logiciel Chemkin. La simulation numérique permet d'obtenir la répartition des températures au sein de la chambre de combustion et de montrer l'influence de la température à l'entrée des zones de reburning et de postcombustion en fonction du débit et du lieu d'injection du combustible de reburning (à proximité des parois ou et sur l'axe). Mis à part le cas du méthane où l'on ne peut que confirmer des tendances, les valeurs prédites sont sensiblement proches des données expérimentales obtenues avec un réacteur de 10 KWth.

## Chapitre II

# Modélisation du reburning appliqué au four pilote

### Introduction

La modélisation cinétique détaillée accouplée à la modélisation hydrodynamique entraînerait des temps de calculs trop longs. Pour cette partie de notre étude, nous avons mis l'accent sur la modélisation hydrodynamique du reburning avec un traitement simplifié de la cinétique. Notre objectif a été de calculer les profils de la température, des concentrations et de la vitesse de gaz dans le four CERCHAR fonctionnant avec le reburning, et de comparer les résultats avec les données expérimentales, en particulier les cartographies. Nous avons utilisé un logiciel de mécanique numérique des fluides Fluent qui permet notamment de simuler la combustion du charbon. Ce logiciel ainsi que les logiciels associés (Gambit, PrePdf) et les modèles utilisés au cours de cette étude sont présentés en annexe 8.

### I - Maillage

Les simulations du reburning au four pilote du CERCHAR ont été tentées en 2 et 3 dimensions (« 2D » et « 3D »). Pour représenter la géométrie du four, nous avons choisi une configuration du reburning permettant d'obtenir une réduction maximale des  $\text{NO}_x$  (partie 3 et 4). Dans cette configuration, l'injection du combustible de reburning est effectuée à 1,9 m de l'ouvrage du brûleur ce qui correspond à une température de 1200 °C à l'entrée de la zone de reburning. L'injection de l'air de postcombustion intervient à 4,4 m de l'ouvrage, ce qui correspond à un temps de séjour nominal dans la zone de reburning d'environ 900 ms.

La représentation et le maillage de la géométrie du four avec Gambit ont été faits par étapes afin de traiter d'abord séparément chaque zone de réaction. Ces zones sont :

- la zone du brûleur avec répartition des différents airs de combustion



- La zone de combustion primaire comprise entre la sortie du brûleur et le point d'injection du combustible de reburning
- La zone de reburning comprise entre les deux points d'injection
- La zone de postcombustion située entre le point d'injection d'air de postcombustion et le rétrécissement du four

Toutes les zones de réaction ont ensuite été reliées entre elles.

Le maillage utilisé pour ces différentes parties était de type structuré (le regroupement de plusieurs nœuds forme des quadrilatères et/ou des triangles dans le cas à deux dimensions). Afin d'obtenir une grande précision dans les calculs avec Fluent, le nombre de mailles à proximité des zones d'injection du combustible et de l'air de postcombustion mais également en sortie du brûleur était plus important (tableau 6.1). Le logiciel Gambit propose par ailleurs plusieurs types de maillages à utiliser en fonction de la géométrie du système. Nous avons principalement utilisé le maillage hexaédrique appelé « *cooper* » qui permet, à partir du maillage d'une surface, de mailler le volume adjacent. Ce maillage a été utilisé notamment pour les zones de reburning et de postcombustion. Nous avons également utilisé le maillage « *Tgrid* » pour la zone primaire qui permet de faire des maillages pyramidaux, hexahédraux et tétraédraux. Les principales définitions de ces maillages peuvent toutefois être obtenues dans le guide d'utilisation de Gambit [112].

Dans le cas à 3 dimensions, nous avons représenté et maillé les deux systèmes d'injection de combustible de reburning et d'air de postcombustion en respectant le nombre et la taille des injecteurs. Toutefois, pour simplifier la géométrie et le maillage, nous avons remplacé les orifices circulaires des injecteurs par des orifices rectangulaires en respectant la surface des injecteurs. La représentation et le maillage du brûleur et de ces systèmes d'injection ont été le point de départ à la représentation et au maillage de notre four en raison de leur complexité.

Dans le cas à 2 dimensions, la représentation exacte de la géométrie des injecteurs du combustible de reburning et d'air de postcombustion est impossible dans la mesure où l'injection est radiale. Nous avons donc choisi de représenter les injecteurs par des *edges* (« bordures ») au travers desquels le combustible de reburning et l'air de postcombustion sont injectés.

Afin de réduire les temps de calcul, nous avons profité des propriétés de symétrie des géométries générées : ainsi, dans le cas 2D, nous avons dessiné et maillé la partie du plan horizontal passant par l'axe du four et située à gauche de ce même axe (figure 6.3). Le nombre de mailles est finalement de 22 532 pour le cas 2-D et de 352 306 pour le cas 3-D (tableau 6.1).

Les conditions d'entrée pour la simulation par Fluent du reburning concernent les caractéristiques (débit ou vitesse, température) des airs de combustion (air I, II et III), de l'air de transport du charbon (combustible de reburning) et de l'air de postcombustion, ainsi que celles des parois du four (épaisseur, matériau, température). D'autres conditions sont les caractéristiques d'écoulement des gaz au sortir de la géométrie du four représentée.

	cas 2D	cas 3D
Zone du brûleur	3748	4471
Zone primaire	4648	161440
Zone de reburning	3040	82050
Zone de postcombustion	5092	95725
Rétrécissement	6004	3150
Système d'injection du combustible de reburning (cas 3D)		2735
Système d'injection de l'air de postcombustion (cas 3D)		2735
<b>Nombre total de mailles</b>	<b>22532</b>	<b>352306</b>

Tableau 6.1 : Nombre de mailles pour les cas 2D et 3D

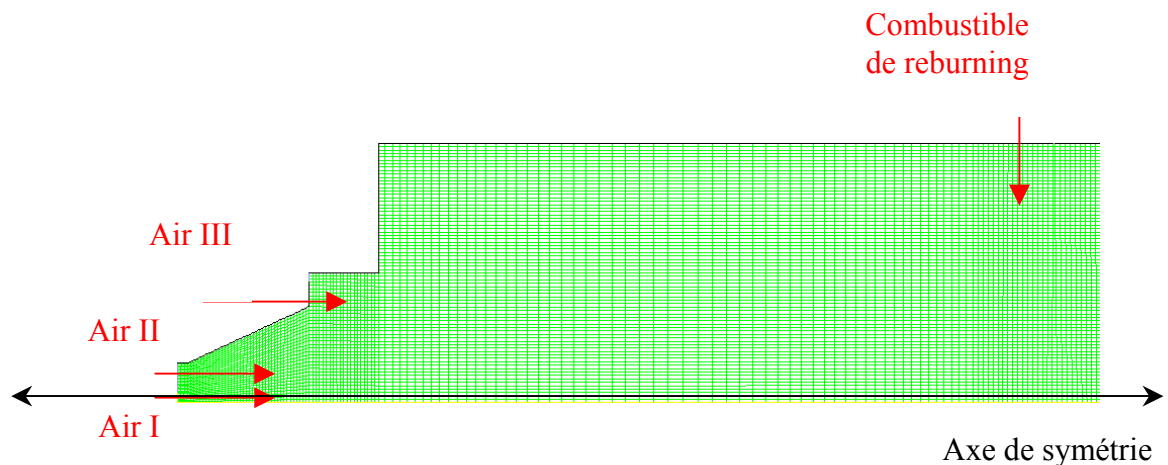


Figure 6.3 : Maillage du four à deux dimensions

## II - Simulation

Les maillages élaborés sous Gambit ont été importés dans Fluent afin de simuler le procédé de reburning pour une configuration qui a permis d'obtenir expérimentalement les meilleures réductions des émissions de  $\text{NO}_x$  (température à l'entrée de la zone de reburning de  $1200\text{ }^\circ\text{C}$ , temps de séjour de 900 ms dans la zone de reburning, stœchiométrie de reburning de 0,85, ST1 de 0,8 ou teneur en  $\text{NO}_x$  initial de 547 ppm). Nous avons utilisé, lors de ces simulations, un serveur Dec AlphaServer 1200 équipé de deux processeurs Alpha 533 Mhz sous Digital UNIX V4.0F (mémoire vive 1 Go) et un PC équipé de deux processeurs Pentium III, 800 Mhz sous Linux RedHat 7.0 (mémoire vive 2 Go).

Pour les calculs à deux dimensions, nous avons choisi de considérer un écoulement axisymétrique. Concernant le modèle de turbulence, nous avons choisi le modèle standard  $\kappa-\varepsilon$  [113]. Les critères de convergence sont définis dans Fluent (valeur des résidus à atteindre) ; la convergence du calcul a été contrôlée au cours de la simulation [112].

La simulation de l'écoulement a été commencée pour le cas 3D. Néanmoins, en raison du nombre élevé de mailles, les temps de calculs étaient trop longs pour obtenir la convergence des résultats (2 à 3 semaines). La réduction du nombre de mailles risquait de nous faire perdre la précision dans le calcul. Nous avons donc choisi de simuler la combustion et le reburning uniquement avec le cas 2-D dont les temps de calculs nécessitent un à deux jours. Le tableau (6.2) présente les différentes simulations faites avec Fluent.

Cas 1	Combustion dans le four sans reburning avec un excès d'air de 5 %
Cas 2	Combustion dans le four avec injection d'air à l'entrée de la zone de reburning et de postcombustion (excès d'air de 5 %)
Cas 3	Reburning au charbon
Cas 4	Optimisation du reburning au charbon avec orientation de l'air de postcombustion

Tableau 6.2 : Différents cas de simulation

Pour modéliser chaque cas présenté dans le tableau ci-dessus, notre stratégie a été de simuler par étape ; tout d'abord, nous avons considéré uniquement l'écoulement sans combustion du combustible afin de valider le maillage adopté (convergence des résultats). A cette étape nous avons cherché à établir la cartographie des vitesses des gaz dans le four et vérifier ce qui a été expérimentalement constaté, en l'occurrence les zones de re-circulation des gaz à proximité des lieux d'injection radiale (partie 3 et 4). Par la suite, nous avons initié la combustion du charbon principal et vérifié qu'il y avait simulation de l'allumage de ce combustible. Nous avons ensuite ajouté le calcul du transfert de chaleur par rayonnement afin d'obtenir les champs de température et des concentrations de O<sub>2</sub>, CO et CO<sub>2</sub>, qui ont pu être comparés à nos mesures expérimentales. Finalement, le calcul de la concentration des oxydes d'azote a été effectué par le module de post-traitement, et comparé à nos mesures.

### II-2-1 Cas 1 : simulation de la combustion du charbon (avant application du reburning)

Nous avons simulé au préalable la combustion d'un charbon (combustible principal) dans le four pilote sans application du reburning pour un excès d'air de 5 % et un ST1 de 0,8.

La simulation de la combustion du charbon entraîne la modélisation de l'écoulement des espèces gazeuses et de leur interaction avec des particules solides. Les réactions de dévolatilisation et de combustion du coke ont été modélisées par l'approche de la fraction de mélange / densité de probabilité, dans sa version avec deux fractions de mélange [112]. En effet, nous avons considéré la combustion (turbulente) d'une part du semi-coke (combustible 1) et d'autre part celle des matières volatiles (combustible 2). Cette approche est disponible avec le logiciel prePDF et recommandée quand le seul combustible présent est un charbon (unique).

Les éléments ou espèces chimiques qui interviennent lors de la combustion du charbon ont été définies : carbone solide, CH<sub>4</sub>, H, H<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, N, N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, O, OH, CO, HCNO, CH<sub>3</sub>, CH<sub>2</sub>, CH, CN, NH<sub>3</sub> et HCN. Le semi-coke (combustible 1, annexe 8) est défini par la teneur en carbone fixe (-C) et les matières volatiles (combustible secondaire, annexe 8) par les teneurs en carbone volatile, hydrogène, oxygène et azote (approche « empirical fuel » [112]).

Les caractéristiques pertinentes du charbon considéré (combustible principal, charbon français 2) sont reportées dans le tableau 6.3. Le soufre a été négligé dans les calculs car l'équilibre peut être atteint pour le dioxyde de soufre (voir définition de la fraction de mélange en annexe 8).

% sur pur (charbon sec dénué de cendres)	
Carbone	83,15
Hydrogène	4,85
Oxygène	4,08
Azote	0,82
Soufre	0,77
% sur sec (charbon sec)	
Indice de matières volatiles	33,32
Cendres	6,33

Tableau : 6.3 Caractéristiques du charbon (charbon français)

Le débit de charbon et les airs de combustion ont été définis en respectant le ST1 de 0,8 et la stœchiométrie en sortie du brûleur de 1.05 (excès d'air de 5 %, tableau 6.4).

	Température	Débit	Vitesse
Débit de charbon	25°C	420 kg.h <sup>-1</sup>	15 m.s <sup>-1</sup>
Air I	25°C	711 kg.h <sup>-1</sup>	15 m.s <sup>-1</sup>
Air II	150°C	2836 kg.h <sup>-1</sup>	42 m.s <sup>-1</sup>
Air III	150°C	1273 kg.h <sup>-1</sup>	7,5 m.s <sup>-1</sup>
ST 1		0,78	
Stœchiométrie sortie brûleur		1,06	

Tableau 6.4 : Température et vitesse de l'air de transport et des airs de combustion

Le four est muni dans ses parois de boucles calorimétriques au sein desquelles circule de l'eau. La modélisation de ces parois froides doit prendre en compte leur température. Leur matériel est défini comme de l'acier d'une température externe de 20°C et d'une épaisseur de 100 mm. Les modèles de radiation pris en compte dans le four sont les modèles appelés « P1 » et « Ordonnées discrètes » (annexe 8) car ils prennent en compte le transfert de chaleur par rayonnement des particules solides telles que le coke ou un grain de charbon.

Les champs de température et de vitesse dans le four pilote lors de la combustion simple du charbon français, l'évolution des teneurs de différents gaz de combustion (CO, CO<sub>2</sub> et O<sub>2</sub>) et d'autres résultats obtenus avec Fluent sont représentés sur les figures 6.4 à 6.12. La teneur en NO<sub>x</sub> est calculée en prenant en compte les quatre modèles proposés par Fluent (NO<sub>x</sub> thermiques, précoces, combustibles et reburning).

a- Profil de température dans le four

Les températures des gaz de combustion calculées à deux mètres de la sortie du brûleur grâce à ces modèles sont comprises dans les intervalles 1600-1800 °C (modèle « P1 », figure 6.4) et 1200-1400 °C (modèle des « ordonnées discrètes », figure 6.5). Ces prédictions sont supérieures aux valeurs expérimentales jusqu'à 4 m de l'ouvreau. Par la suite, la température prédite est de l'ordre de 760 °C pour le modèle « P1 » et de 700 °C pour le modèle des « ordonnées discrètes » alors qu'expérimentalement, nous avons 600 °C environ.

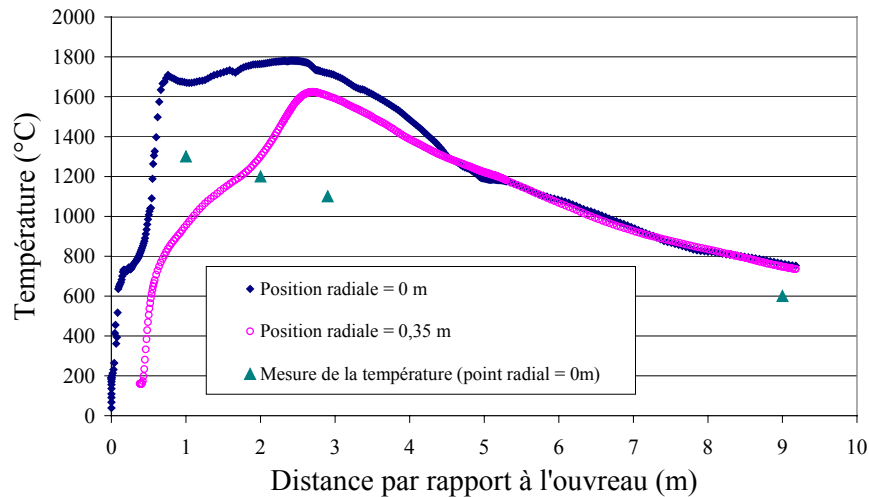


Figure 6.4 : Simulation de l'évolution axiale de la température (°C) pour une combustion sans reburning (modèle P1, cas 1, position radiale : 0 et 0,35 m)

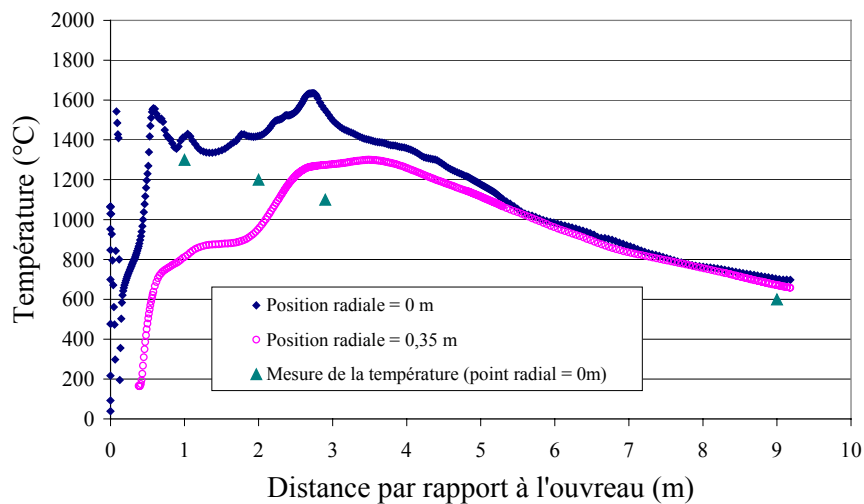
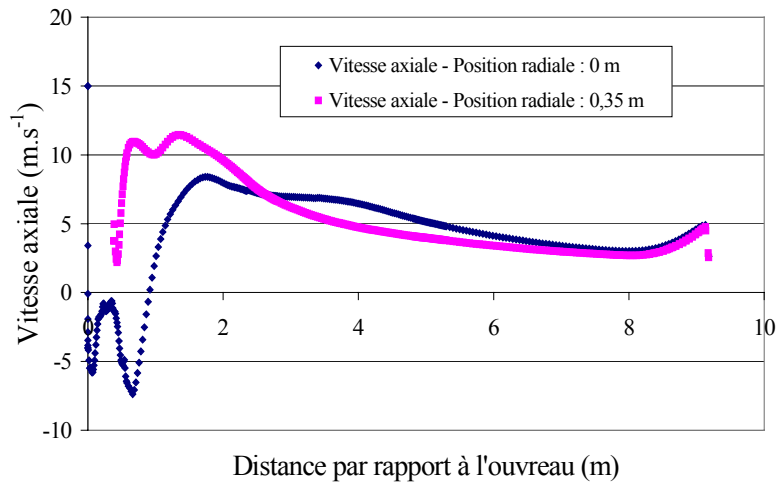


Figure 6.5 : Simulation de l'évolution axiale de la température (°C) pour une combustion sans reburning (modèle des ordonnées discrètes, cas 1, position radiale : 0 et 0,35 m)

Bien que, par le modèle des « ordonnées discrètes », nous obtenons des températures supérieures à nos mesures faites sur une flamme à charbon dans le four (figure 6.5), ce modèle sera adopté pour la suite des calculs des différents cas proposés dans le tableau 6.2. Le modèle de radiation « P1 » donne des températures des gaz de combustion largement sur-prédites (figure 6.4).

**b-Profil de vitesse des gaz de combustion**

La composante axiale calculée de la vitesse des gaz de combustion dans l'axe du four varie entre  $-7$  et  $+8$   $\text{m.s}^{-1}$  (figure 6.6). Cette évolution pour des positions radiales de 0 et 0,35 m, et en particulier des vitesses négatives dans le premier mètre de la sortie du brûleur correspondent à une zone de re-circulation des gaz (figure 6.6).



**c- Combustion du charbon**

Sur la figure 6.7 on peut constater l'évolution axiale prononcée de la fraction massique des matières volatiles, due à la dévolatilisation du charbon puis à la combustion rapide des matières volatiles libérées, localisée dans le premier mètre par rapport à l'ouverture et dans l'axe du four. L'évolution de la fraction massique de semi-coke est plus lente. Les deux fractions sont supérieures à zéro à la sortie du four, indiquant une combustion incomplète du charbon.

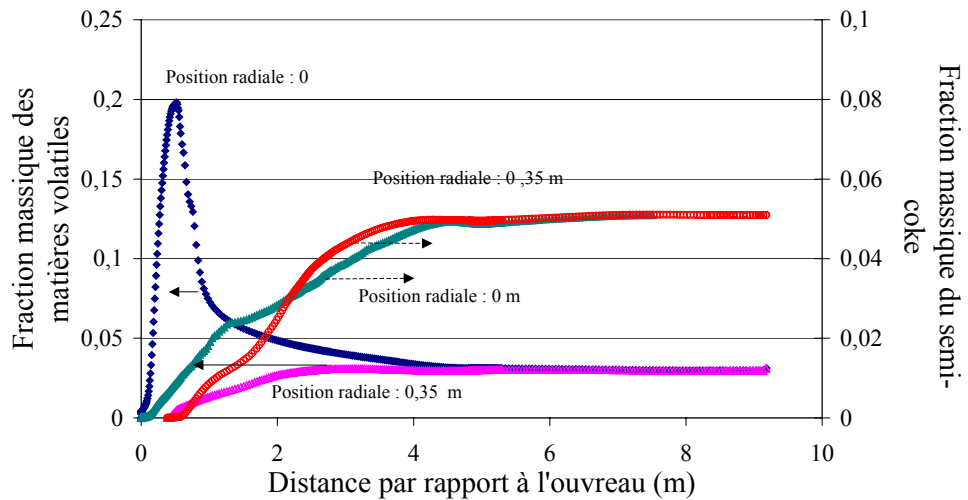


Figure 6.7 : Simulation de l'évolution axiale de la fraction massique des matières volatiles et du semi-coke (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 1)

**d- Composition des gaz de combustion**

Dans les premiers mètres de la sortie du brûleur, les teneurs en  $O_2$  et  $CO_2$  prédites par Fluent sont légèrement différentes des mesures expérimentales pour les deux positions radiales (figure 6.8 et 6.9). A partir d'une distance de 4 m de l'ouvrage, la teneur en  $O_2$  calculée est de l'ordre de 2,5 % alors que la teneur en oxygène théorique, correspondant à un excès d'air de 5 %, est de 1 % (figure 6.8). La teneur prédite en  $CO_2$  dépasse 16 % à partir d'une distance de 4 m par rapport à l'ouvrage pour atteindre presque 17 % à 9 m de l'ouvrage (figures 6.9). Ces valeurs sont proches de résultats des mesures faites au carneau lors des essais paramétriques dans les mêmes conditions opératoires, indiquées dans le tableau 2.9, chapitre II, partie 2 (1,23 % de  $O_2$  et 17,43 % de  $CO_2$ ).

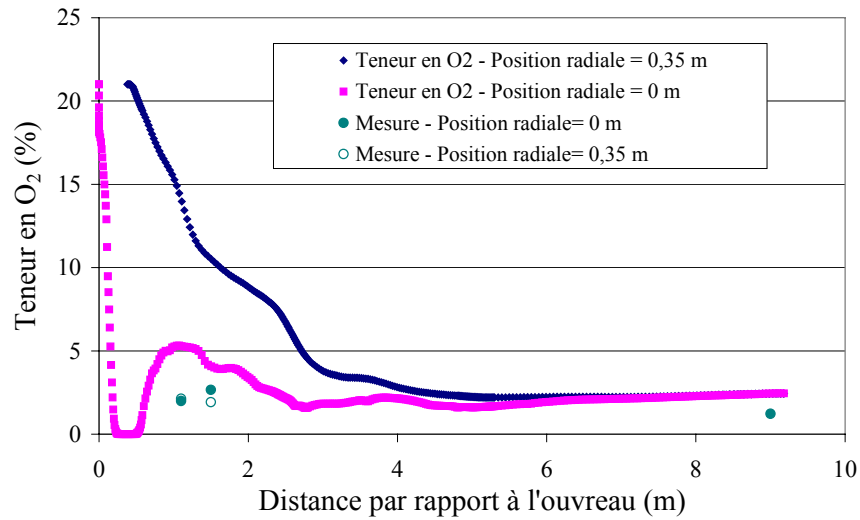


Figure 6.8 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en  $O_2$  dans le four (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 1)

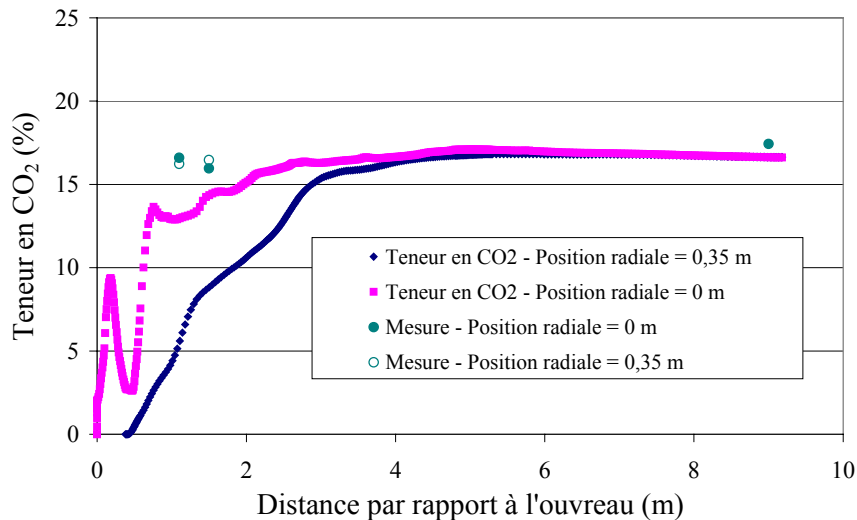


Figure 6.9 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en  $CO_2$  dans le four (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 1)

Les teneurs en CO calculées par Fluent sont surévaluées par rapport aux données expérimentales : nous obtenons plus de 5000 ppm à 9 m du brûleur (sortie du four, figure 6.10), alors que la valeur mesurée indiquée est de 182 ppm (tableau 2.9). Il faut constater également de très fortes concentrations de CO dans l'axe du four, sur le premier mètre de l'ouvreau, où nous ne possédons pas de valeurs expérimentales.

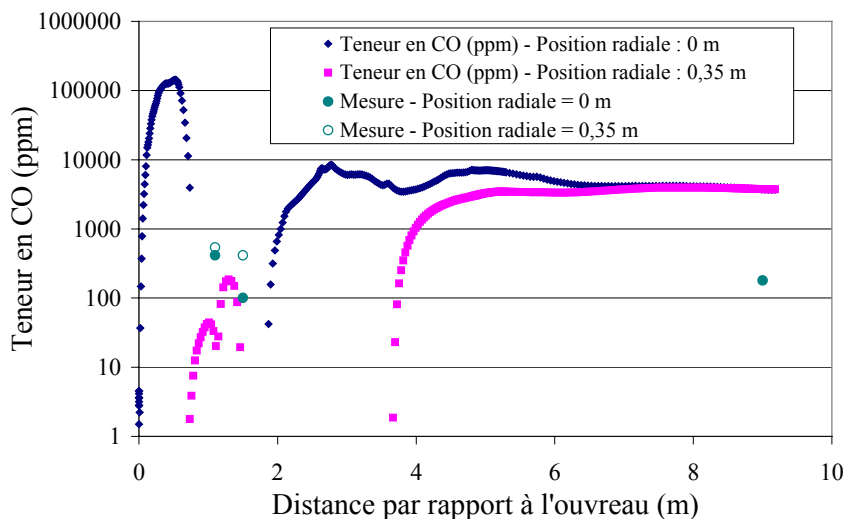


Figure 6.10 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en CO dans le four (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 1)

Les teneurs en CO et CO<sub>2</sub> permettent d'évaluer l'efficacité de la combustion par le rapport :

$$\text{Efficacité de combustion} = \frac{(\text{teneur en CO}_2 + \text{teneur CO})}{(\text{teneur en CO}_2 \text{ max})}$$

où la teneur en CO<sub>2</sub> max est calculée pour une combustion stœchiométrique complète du charbon. L'efficacité de combustion prédite avec Fluent varie localement de façon complexe, pour atteindre dans le carneau une valeur de 95%, inférieure à 98 % calculés à partir des teneurs en CO et CO<sub>2</sub> obtenues expérimentalement pour une flamme de référence à 5 % d'excès d'air (figure 6.11)

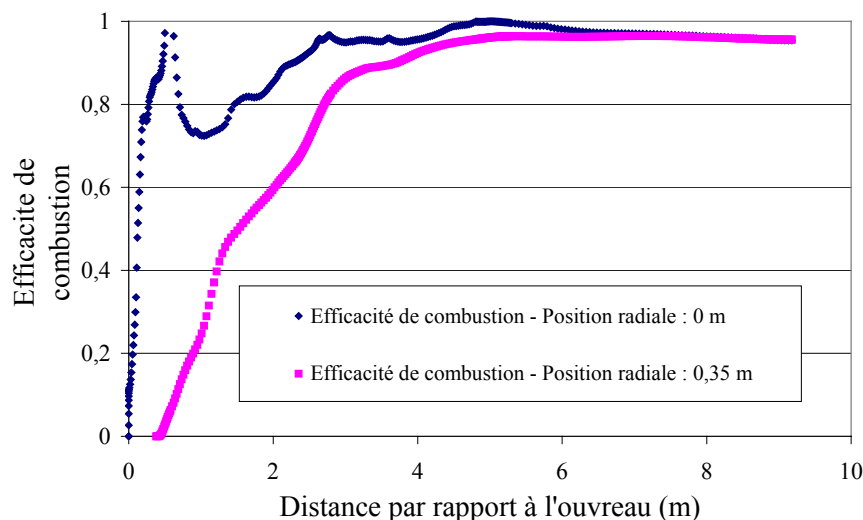


Figure 6.11 : Simulation de l'efficacité axiale de combustion dans le four (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 1)



Les teneurs en NO sont obtenues par un post-traitement : on considère l'évolution des espèces azotées dans les champs de température et des concentrations calculés auparavant. Dans les premiers mètres de la sortie du brûleur pour une position radiale de 0,35 m ces valeurs sont largement sous-prédites par rapport aux mesures effectuées lors des cartographies de la zone primaire (figure 6.12) : nous obtenons par calcul à 1 m de l'ouvreau entre 100 et 200 ppm alors qu'expérimentalement nous avons obtenu entre 600 et 700 ppm (figure 4.25, chapitre II, partie 4). Toutefois, au centre du four, la différence entre prédiction et mesure n'est que de 100 ppm environ. La teneur en NO calculée à 9 m de l'ouvreau est supérieure à 600 ppm, ce qui est peu différent de la concentration en NO mesurée et indiquée dans la partie II (concentration en NO de 547 ppm, réglage 10, figure 6.8).

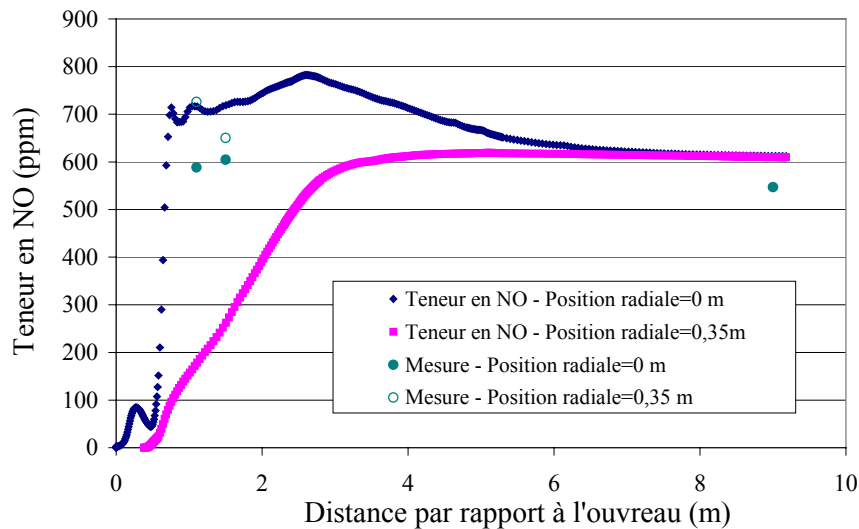


Figure 6.12 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en NO dans le four (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 1)

En conclusion, Fluent a permis de prédire assez correctement le déroulement de la combustion du charbon français, dans la mesure où les teneurs en NO, O<sub>2</sub> et CO<sub>2</sub> sont assez proches de la réalité. Les valeurs prédites de la teneur en CO et de l'efficacité de combustion sont respectivement trop importantes et trop faibles par rapport aux données expérimentales.

### II-2.2 Cas 2 : injection d'air à l'entrée de la zone de reburning et d'air de postcombustion

Afin de mettre en évidence les profils du vecteur vitesse dans les trois zones de réaction au cours du reburning, nous avons modélisé avec Fluent la combustion du charbon pulvérisé (combustible principal, charbon français 2) dans le four pilote accompagnée d'une injection d'air à l'entrée de la zone de reburning et d'air de postcombustion. Aucune injection de combustible de reburning n'a été prise en compte.

La vitesse et la température définies pour l'air aux lieux d'injection du combustible de reburning et de l'air de postcombustion sont données dans le tableau 6.5. Nous avons choisi des vitesses d'injection élevées pour le combustible de reburning (100 m.s<sup>-1</sup>) et l'air de postcombustion (150 m.s<sup>-1</sup>) afin de représenter les zones de mélange avec les gaz de combustion issus des zones de réaction précédentes. Les premiers résultats (figure 6.13) ont permis d'obtenir une cartographie de température proche de celle obtenue au cours de nos

essais (température maximale proche de 1500°C au sein de la flamme et proche de 1200°C à l'entrée de la zone de reburning) et une cartographie de vitesse mettant en évidence la recirculation de l'air de postcombustion dans la zone de reburning (figure 6.14 et 6.15).

	Température	Débit	Vitesse
Charbon principal	25°C	420 kg.h <sup>-1</sup>	15 m.s <sup>-1</sup>
Air I	25°C	711 kg.h <sup>-1</sup>	15 m.s <sup>-1</sup>
Air II	150°C	2836 kg.h <sup>-1</sup>	42 m.s <sup>-1</sup>
Air III	150°C	1358 kg.h <sup>-1</sup>	6,5 m.s <sup>-1</sup>
ST1		0,78	
Stœchiométrie primaire		1,07	

Tableau 6.5 : Températures, débits et vitesses des flux

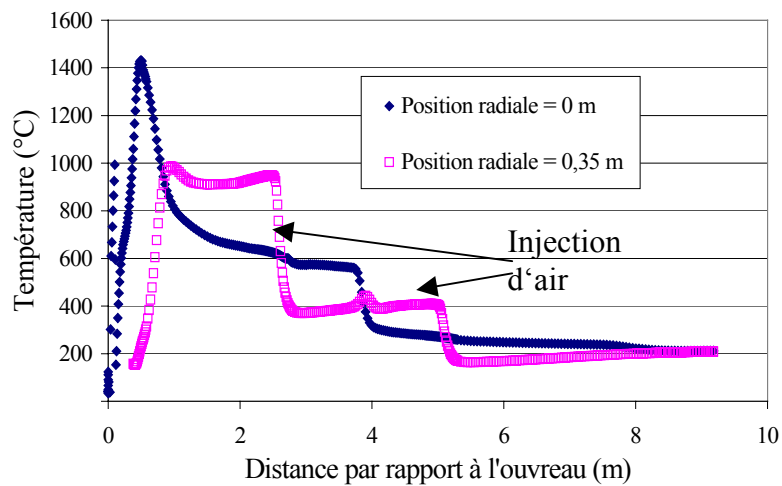
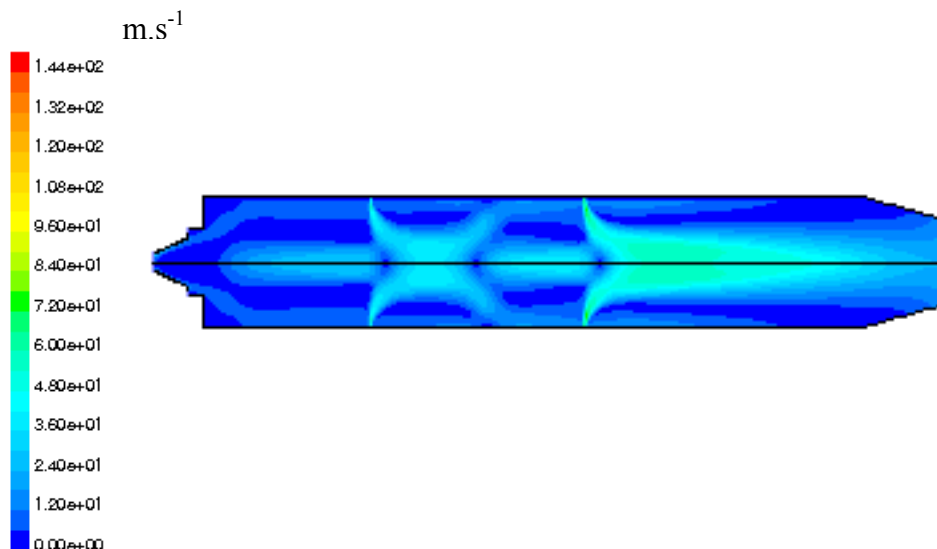


Figure 6.13 : Evolution de la température (°C) avec injection d'air au lieu du combustible de reburning (cas 2)



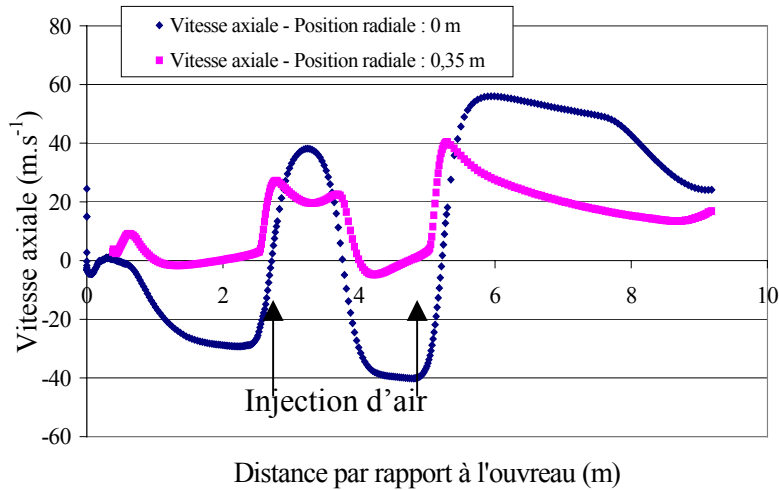


Figure 6.15 : Evolution de la composante axiale de la vitesse ( $m.s^{-1}$ ) des gaz de combustion (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 2)

La composante axiale de la vitesse augmente suite aux injections d'air. On s'aperçoit également d'une valeur négative importante peu avant l'injection d'air de postcombustion. Les figures 6.16 à 6.19 présentent de façon plus détaillée l'écoulement de l'air dans le four et en particulier la re-circulation de l'air de postcombustion dans la zone de reburning.

Ces résultats confirment nos conclusions de l'analyse des cartographies de la température et des concentrations : dans la configuration du four CERCHAR que nous avons utilisée dans nos recherches sur le reburning, l'injection du combustible de reburning (simulée ici par un écoulement d'air) et celle de l'air de postcombustion, entraînent la formation de larges zones de re-circulation des gaz : une zone principale où l'air de postcombustion pénètre dans la zone de reburning mais également une autre, dans la zone primaire. Ces résultats laissent supposer que ces zones de re-circulation influent sur les réactions ayant lieu dans les deux zones et permettent d'entrevoir des améliorations possibles du four en tant qu'outil expérimental.

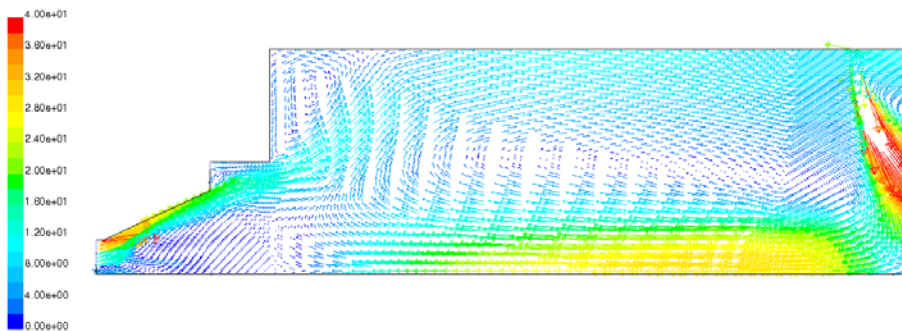


Figure 6.16 : Profil de vitesse dans le brûleur et dans la zone primaire

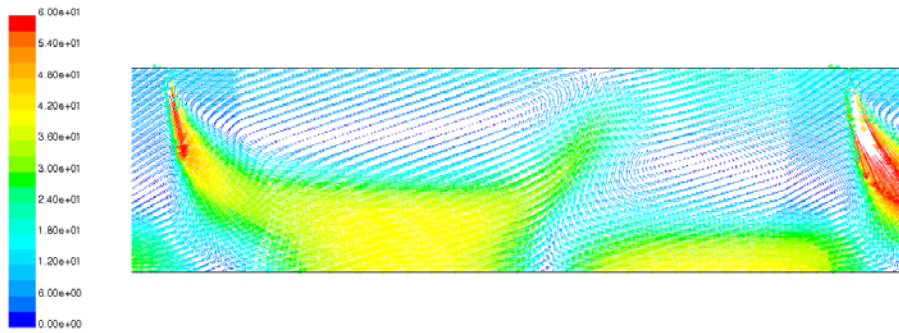


Figure 6.17 : Profil de vitesse dans la zone de reburning

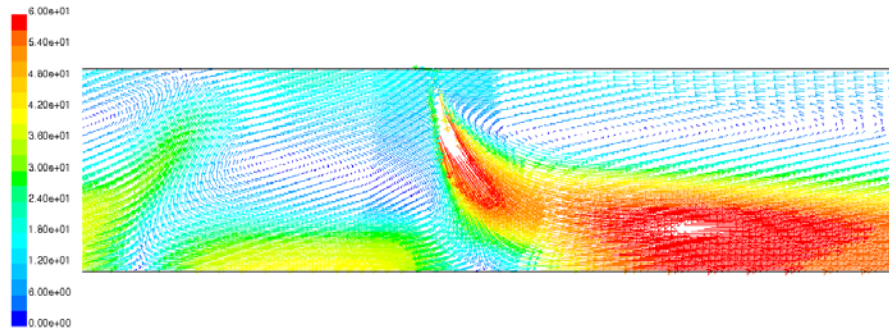


Figure 6.18 : Profil de vitesse à l'entrée de la zone de postcombustion

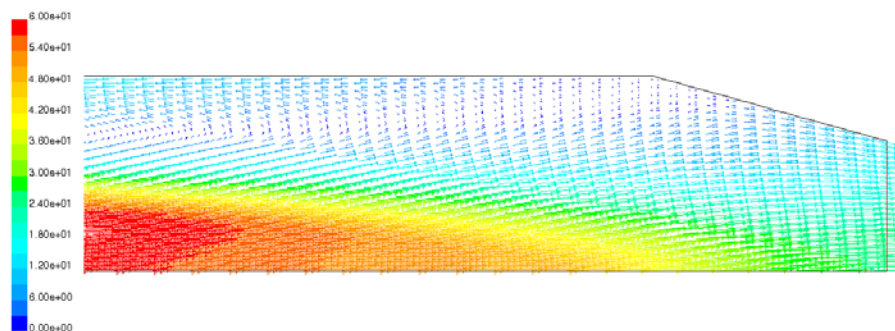


Figure 6.19 : Profil de vitesse dans la zone de postcombustion

### II-2-3 Cas 3 : reburning au charbon

Afin de simuler, avec le logiciel Fluent, la combustion à 5 % d'excès d'air dans le four d'un charbon accompagnée d'un reburning au charbon, nous avons utilisé à nouveau le logiciel prePDF qui permet de définir les caractéristiques d'un charbon (C, H, O, N) et choisir les espèces dont nous tiendrons compte dans la simulation de la combustion du charbon (HCN, NH<sub>i</sub> avec i = 1, 2, 3, OH, O, O<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, CH<sub>j</sub> avec j=1, 2, 3, HNCO). Néanmoins,

nous ne pouvons pas appliquer la méthode avantageuse de deux fractions massiques qu'en nous limitant à un seul charbon. Le même type de charbon sera donc utilisé comme combustible principal et comme combustible de reburning. Comme lors des expérimentations avec le reburning, le combustible principal était du charbon français 2 (tableau 6.3), nous avons simulé le reburning avec le même charbon comme combustible de reburning. Le fichier défini par le logiciel prePDF sera donc utilisé d'une part pour simuler la combustion du charbon principal (zone du brûleur) et d'autre part pour simuler les réactions ayant lieu au point d'injection du combustible de reburning.

#### a-Vitesse d'injection du combustible de reburning

Lors des expérimentations de reburning au gaz naturel, nous avons choisi une vitesse d'injection du combustible de reburning de  $100 \text{ m.s}^{-1}$ . Cette vitesse, que nous avons jugé adéquate, était assez élevée pour permettre selon la littérature (chapitre III, partie 1), un mélange satisfaisant avec les gaz de combustion issus de la zone de combustion primaire. Toutefois, la difficulté de mise en œuvre du reburning au charbon ne nous a pas permis d'atteindre cette vitesse pour l'injection du charbon de reburning. La vitesse du mélange du charbon de reburning et de l'air de transport était de l'ordre de  $30$  à  $40 \text{ m.s}^{-1}$ . Afin de compenser cette perte de vitesse, la canne d'injection du combustible de reburning était insérée de  $30 \text{ cm}$  à l'intérieur du four. Nous avons constaté visuellement que le jet du charbon de reburning atteignait le centre du four.

L'injection radiale du charbon à une vitesse de  $30$  à  $40 \text{ m.s}^{-1}$  à partir des parois du four ne permet pas d'atteindre le centre du four. Les simulations de cette configuration indiquent que le jet de charbon de reburning se trouve en effet localisé près des parois (figure 6.20) peu après son injection. Au contraire, la simulation d'une injection radiale du charbon à une vitesse élevée ( $100 \text{ m.s}^{-1}$ ) à partir des parois du four permet d'injecter le combustible de reburning jusqu'au centre du four (figure 6.21). Pour la suite des simulations, nous avons substitué aux caractéristiques réelles du système d'injection, une injection radiale du combustible de reburning de  $100 \text{ m.s}^{-1}$  au ras des parois, une simplification imposée par le choix de la simulation en 2D (voir « Maillage »).

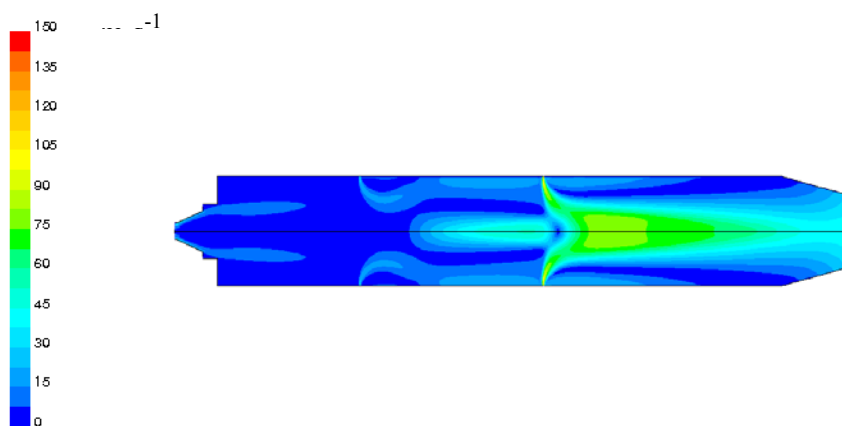


Figure 6.20 : Cartographie de la vitesse ( $\text{m.s}^{-1}$ , vitesse du combustible de reburning =  $40 \text{ m.s}^{-1}$ , cas 3)

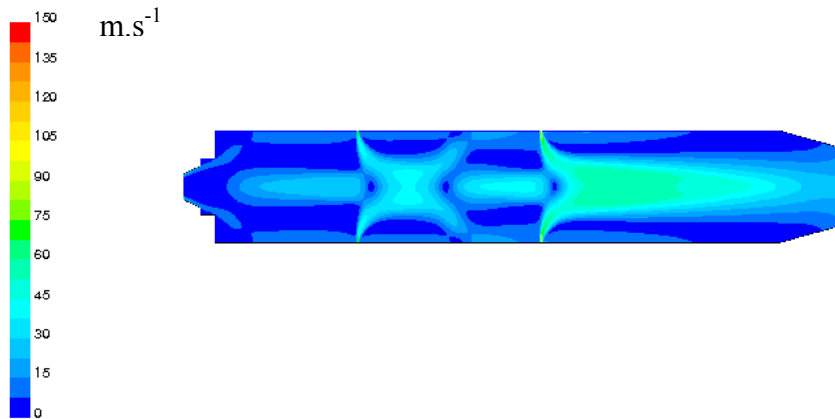


Figure 6.21 : Cartographie de la vitesse ( $m.s^{-1}$ , vitesse du combustible de reburning =  $100 m.s^{-1}$ , cas 3)

L'injection de l'air de postcombustion est simulée, comme dans le cas précédent (cas 2), par des jets orientés radialement, avec une vitesse initiale de  $150 m.s^{-1}$ .

Une comparaison des deux cartographies de vitesse (figures 6.20 et 6.21) montre une différence considérable entre l'importance et l'étendue des zones de re-circulation anticipées par Fluent pour les deux vitesses d'injection du combustible de reburning. Une vitesse de  $100 m.s^{-1}$  qui assure le meilleur compromis entre les simplifications de la géométrie discutées ci-dessus, et la pénétration de ces jets correspondant à la réalité, aboutirait entre autres à une très forte re-circulation dans la zone primaire, qui ne trouve guère confirmation dans les cartographies correspondantes (figures 4.24 et 4.28).

### b-Mesure de la température

La simulation de la combustion du combustible primaire et de celui de reburning, avec les transferts de chaleur par rayonnement simulés par le modèle des ordonnées discrètes, ont permis d'établir une cartographie de la température lors du reburning au charbon (figure 6.22).

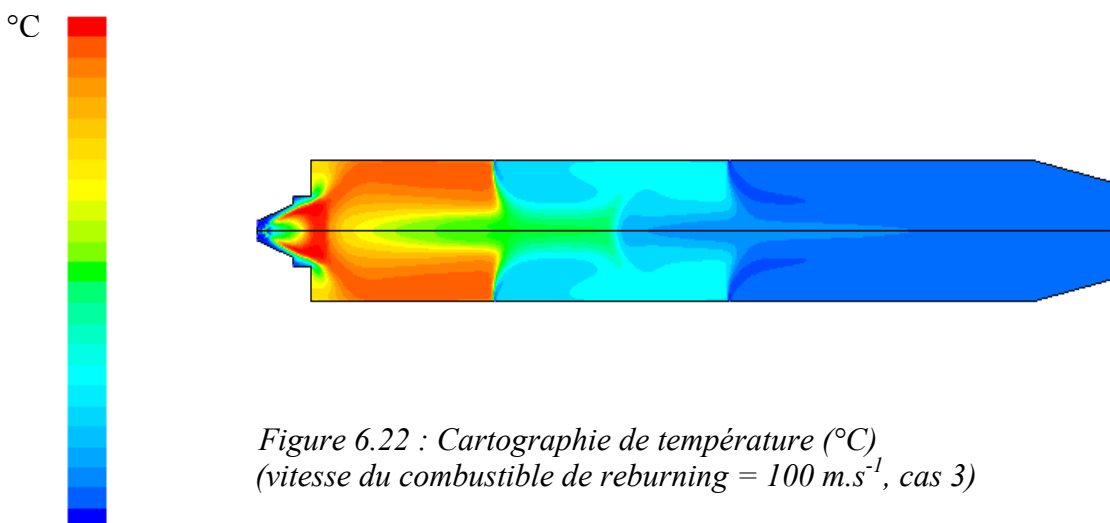


Figure 6.22 : Cartographie de température ( $^{\circ}C$ ) (vitesse du combustible de reburning =  $100 m.s^{-1}$ , cas 3)

La température à l'entrée de la zone de reburning, comprise entre  $1175$  et  $1230^{\circ}C$ , est proche de la valeur attendue de  $1200^{\circ}C$ . A partir de ce point, les températures calculées sont

trop basses. En particulier, la température des gaz en sortie du four est prédite à 200 °C alors que celle mesurée expérimentalement est proche de 600 °C (figure 4.28).

### c- Teneurs des gaz de combustion

L'évolution de la température discutée ci-dessus, et celle de la composition de gaz de combustion (figures 6.23 – 6.26) obtenues avec Fluent pour les conditions de reburning sont très éloignées des résultats expérimentaux. En particulier, la teneur en oxygène est beaucoup trop élevée, et celle en CO<sub>2</sub>, trop basse. Les teneurs en CO calculées par Fluent sont par ailleurs sous-évaluées par rapport aux données expérimentales : la teneur calculée est égale à 40-80 ppm à 9 m du brûleur alors que lors de nos essais, nous avons mesuré une teneur en CO dépassant largement 1000 ppm (figure 6.26).

Les injections du combustible de reburning et de l'air de postcombustion ont été caractérisées au cours de la simulation en respectant les vitesses d'injection : 100 m.s<sup>-1</sup> pour le combustible de reburning et 150 m.s<sup>-1</sup> pour l'air de postcombustion, avec les diamètres d'injecteurs réels, respectivement de 6 et 8 mm. En 2D, ces orifices ont été représentés sous Gambit par des traits (*edges*), de même longueur. Or, à deux dimensions, le calcul suppose une symétrie de rotation, une injection au niveau de la paroi correspond donc à un système d'injection sous la forme d'un anneau. Etant données les vitesses définies, et les dimensions des orifices/trait respectés, les débits d'air de transport du combustible de reburning et d'air de postcombustion sont plus importants, d'où les teneurs en oxygène considérables, à partir du point d'injection du combustible de reburning jusqu'à la sortie du four.

Fluent prédit une teneur finale en NO<sub>x</sub> inférieure à 100 ppm alors que les mesures faites lors des cartographies de concentrations de gaz lors du reburning au charbon indiquent une teneur de 230 ppm (figure 6.26). Par ailleurs, le logiciel prédit une évolution rapide des gaz NH<sub>3</sub> et HCN dans le premier mètre du brûleur, lors de la combustion du charbon principal. Les teneurs de ces gaz sont ensuite proches de 0 le long du four (figure 6.27).

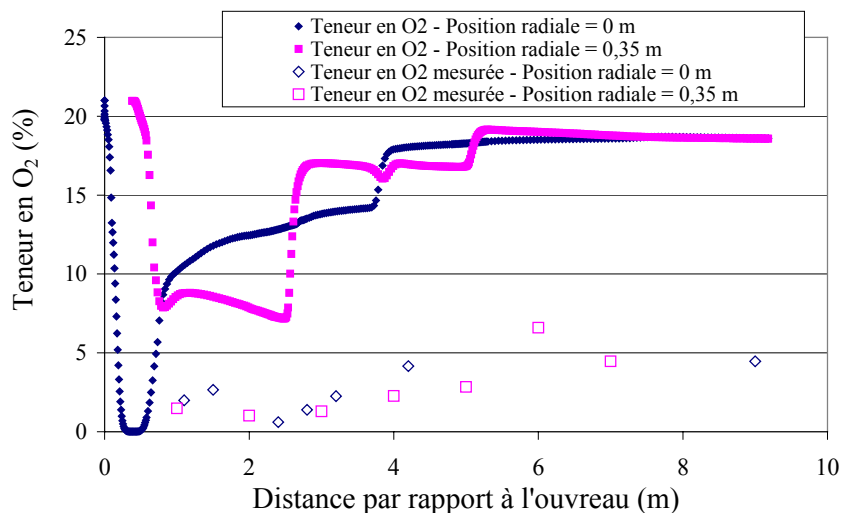


Figure 6.23 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en O<sub>2</sub> dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3)

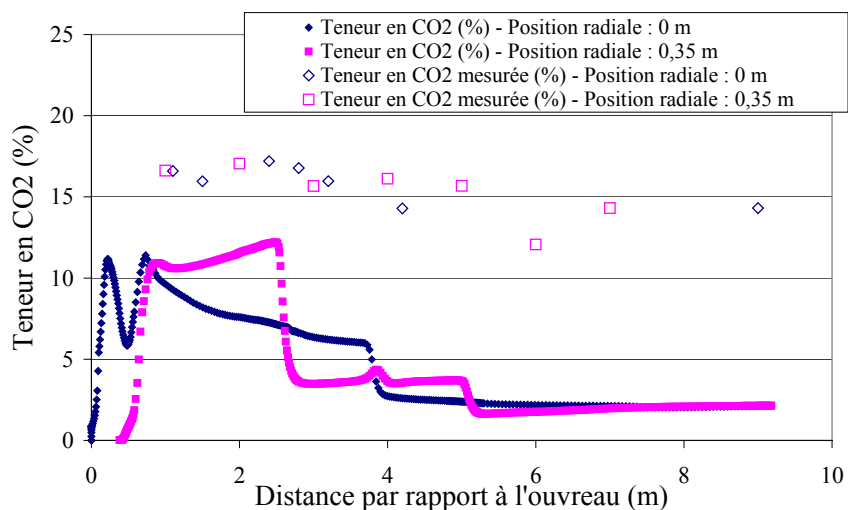


Figure 6.24 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en  $CO_2$  dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3)

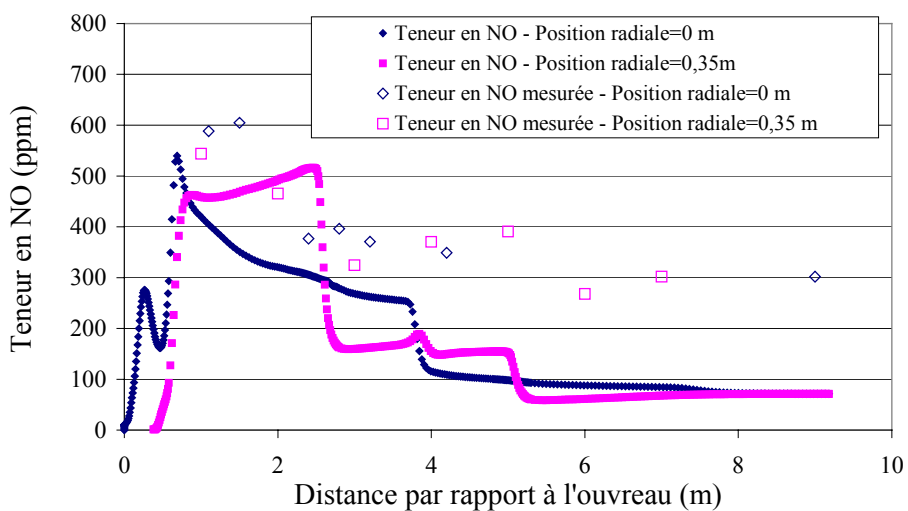
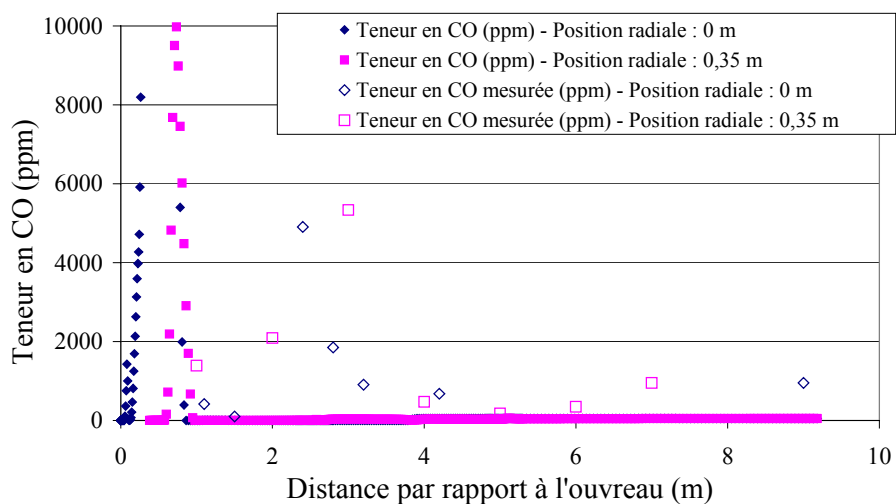


Figure 6.26 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en NO dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3)



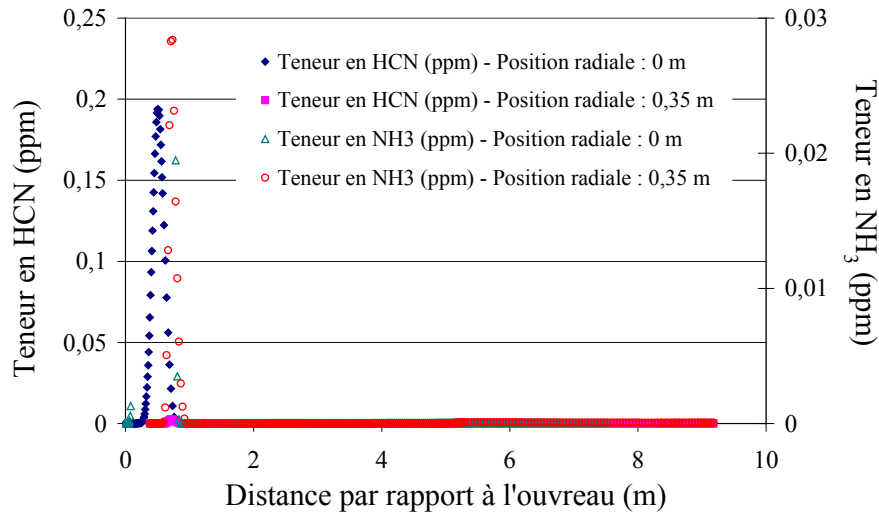


Figure 6.27 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en HCN et NH<sub>3</sub> dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3)

Cette situation, très différente par rapport à la simulation relativement réussie de la combustion simple du charbon peut être attribuée au fait que la modélisation en 2D d'une injection du combustible de reburning par deux lances opposées situées dans le plan horizontal revient à modéliser une injection sous la forme d'un anneau, ce qui modifie l'aérodynamique des gaz de combustion et donc la combustion dans le four.

#### d- Simulation respectant les débits de l'air de transport au combustible de reburning et de l'air de postcombustion

Suite à l'échec de la simulation respectant les vitesses des jets associés au reburning et les dimensions des orifices correspondants, nous avons entrepris une autre tentative, en gardant cette fois les débits réels des airs injectés latéralement et les dimensions des injecteurs. Les figures 6.28 à 6.32 montrent les évolutions de la température et des teneurs de gaz de combustion. Cette fois, la température et les concentrations de O<sub>2</sub> et CO<sub>2</sub> à la sortie du four, et plus généralement à partir de 3 m du brûleur, s'accordent mieux avec l'expérience. Au contraire, dans la zone primaire et à l'entrée dans la zone de reburning, ces résultats sont très éloignés des valeurs expérimentales : la température calculée à environ 2 m du brûleur est plus élevée : on atteint 1400-1500 °C alors que dans le cas précédent, nous avions 1200 °C. En réalité, le respect des débits d'air pour le même diamètre des injecteurs, au passage d'une représentation 3D au 2D entraîne une diminution de la vitesse d'injection, le combustible de reburning et l'air de postcombustion sont projetés près des parois du four. Le processus de mélange de ces injections avec les gaz de combustion est mal reproduit. La cartographie des vitesses ressemble à la figure 6.20.

La teneur en NO calculée par Fluent est plus importante que la teneur mesurée (figure 6.32) et celle de CO très largement sur-prédite (figure 6.31). Les autres teneurs de gaz de combustion sont toutefois plus proches des conditions expérimentales : la teneur en O<sub>2</sub> atteint 4 %, celle en CO<sub>2</sub> atteint 16 % (figure 6.29 et 6.30). Pour respecter à la fois les vitesses et les débits des injections complémentaires en 2D, il faudrait s'écarter largement de la géométrie réelle des injecteurs : nous devrions dessiner et mailler avec Gambit des injecteurs de combustible de reburning et d'air de postcombustion avec des diamètres respectivement de 0,048 et 0,30 mm (géométries respectivement équivalentes à une couronne équipée de 8 injecteurs de 6 mm de diamètre et une autre munie de 28 injecteurs de 8 mm de diamètre).

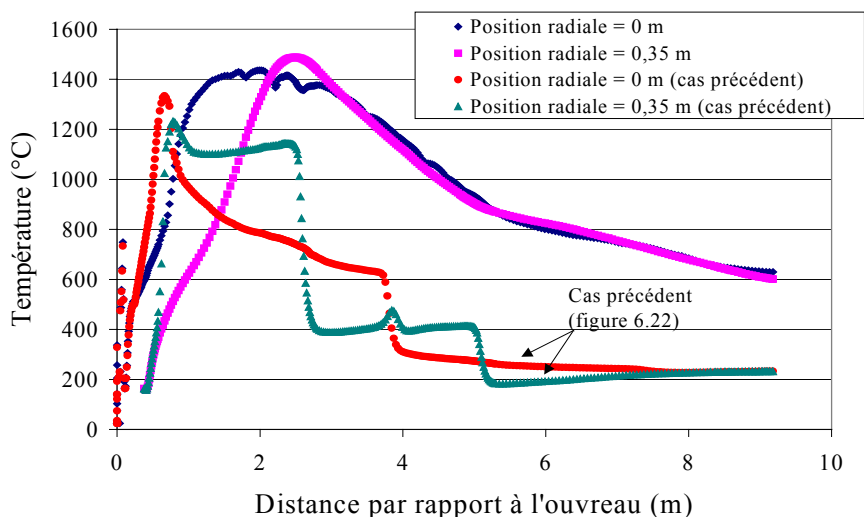


Figure 6.28 : Simulation de l'évolution axiale de la température dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3 modifié)

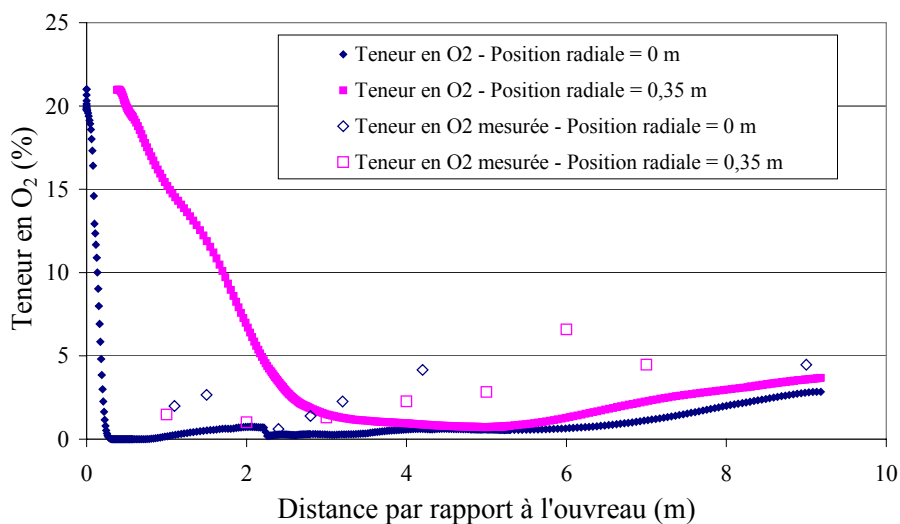


Figure 6.29 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en O<sub>2</sub> dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3 modifié)

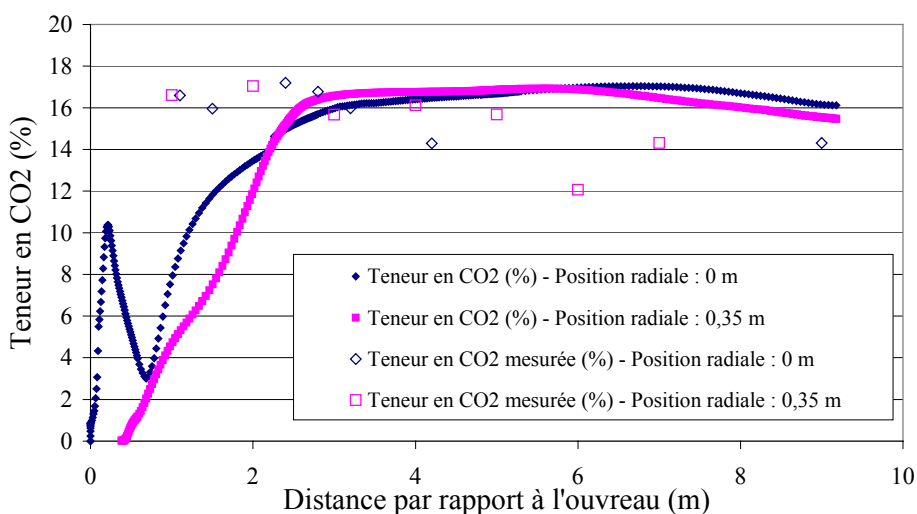


Figure 6.30 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en CO<sub>2</sub> dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3 modifié)

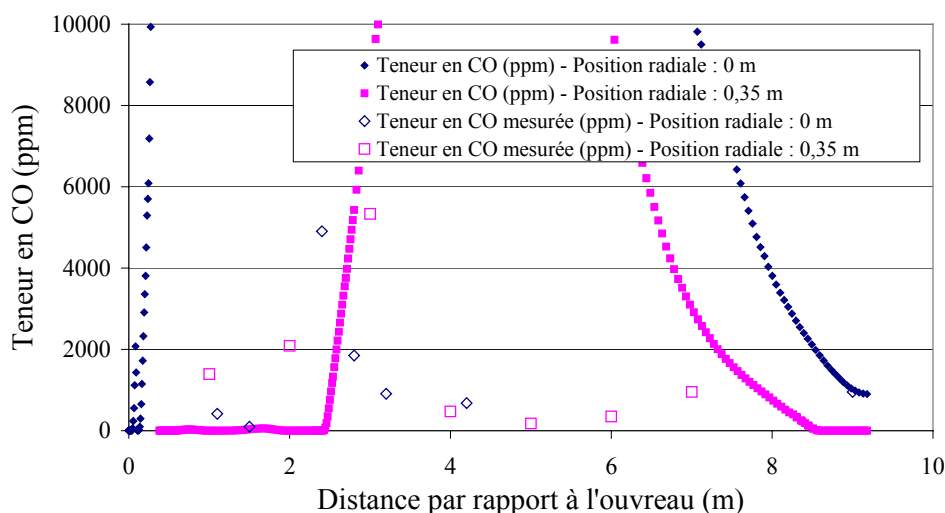


Figure 6.31 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en CO dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3 modifié)

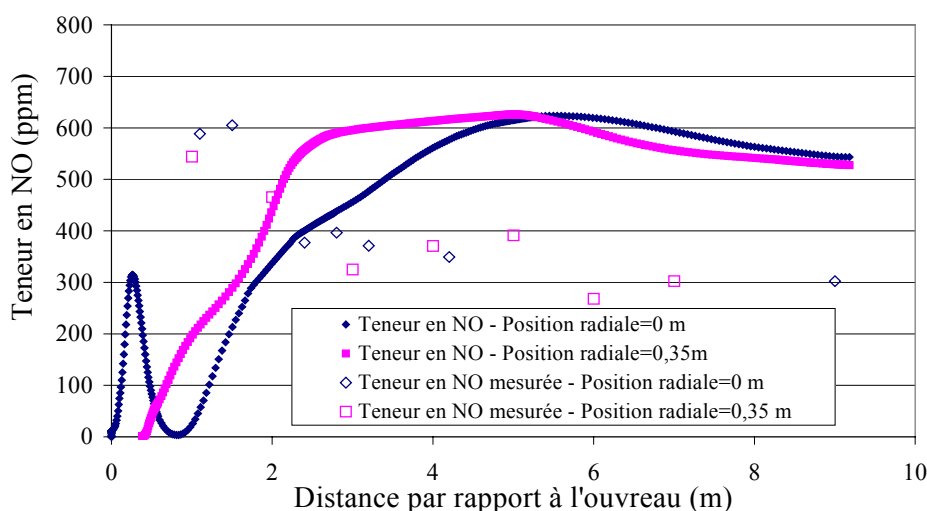


Figure 6.32 : Simulation de l'évolution axiale de la teneur en NO dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3 modifié)

#### II-2-4 Cas 4 : optimisation de l'orientation de l'injection de l'air de postcombustion

Dans les calculs précédents, l'injection de l'air de postcombustion était supposée radiale. Néanmoins, les cartographies relevées lors du reburning au charbon et au gaz naturel ont montré l'existence d'une zone de re-circulation dans la zone de reburning suite à l'injection de l'air de postcombustion, qui a été d'ailleurs confirmée par les simulations. L'influence possible de ce phénomène sur le reburning a été discutée auparavant. Afin de vérifier la possibilité d'améliorer la réduction des émissions de  $\text{NO}_x$ , en supprimant ou diminuant l'importance de la re-circulation de l'air de postcombustion dans la zone de reburning, nous avons simulé par Fluent une configuration où l'air de postcombustion est injecté avec une orientation inclinée de  $25^\circ$  vers l'aval du four. Pour cela, nous avons respecté une vitesse de l'air de postcombustion de  $150 \text{ m.s}^{-1}$  en définissant une composante radiale et axiale de cette vitesse. Les figures 6.33 à 6.35 permettent de voir le profil des vecteurs de vitesse dans les trois zones de combustion.

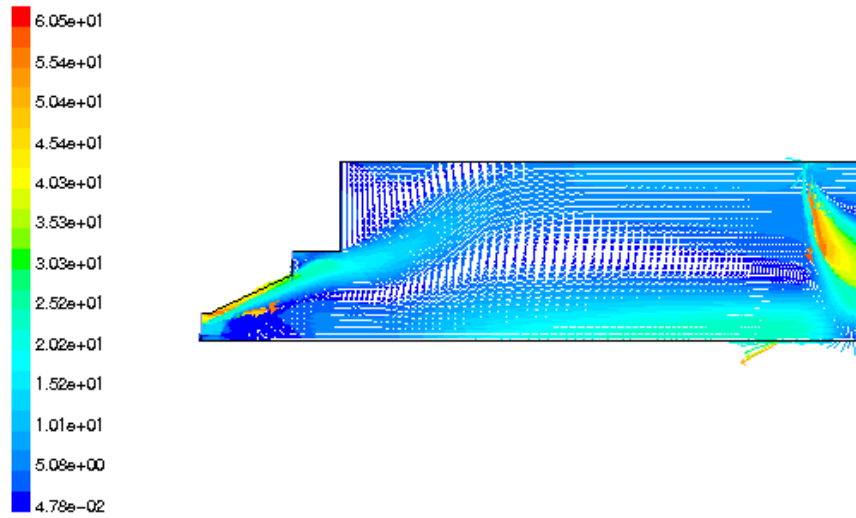


Figure 6.33 : Profil de vitesse dans le brûleur et dans la zone primaire(cas 4)

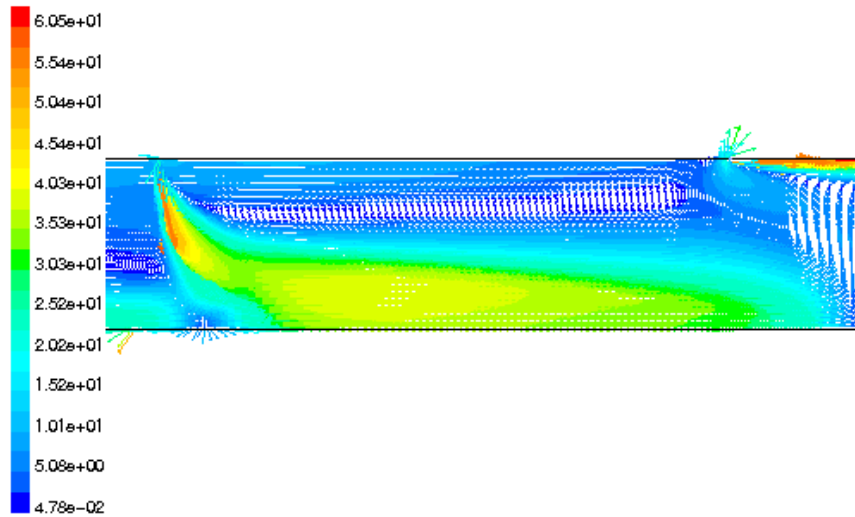


Figure 6.34 : Profil de vitesse dans la zone de reburning (cas 4)

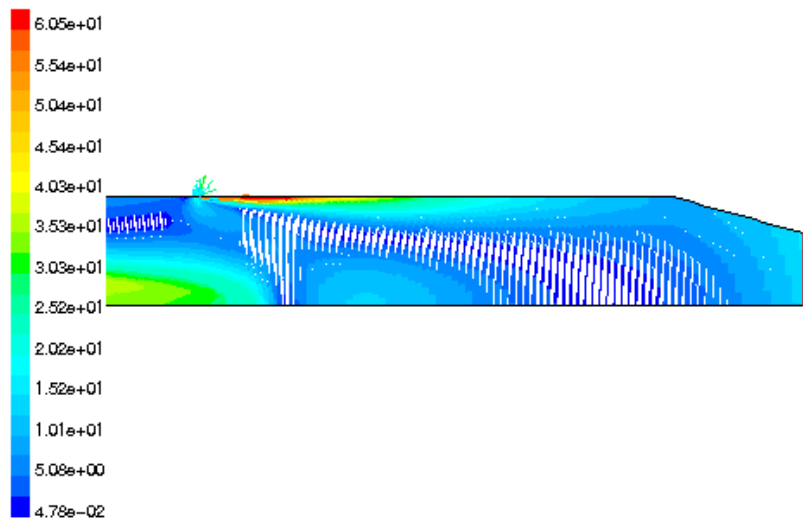


Figure 6.35 : Profil de vitesse dans la zone de postcombustion (cas 4)

En comparant ces cartographies calculées avec les figures 6.16 à 6.18 (cas 2), nous pouvons conclure qu'avec les jets de l'air de postcombustion orientés vers l'aval du four, la zone de re-circulation dans la zone de reburning disparaît complètement et la zone de re-circulation dans la zone primaire devient moins importante.

Bien que ce cas ne permette pas d'obtenir des prédictions fiables de concentrations de gaz ( $\text{CO}$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NO}$ ) en raison de l'échec de la simulation du reburning en 2D, il laisse toutefois entrevoir la possibilité d'obtenir une zone de reburning plus « réactionnelle » qu'auparavant et donc une meilleure réduction des oxydes d'azote au cours du reburning.

# Conclusion

La tentative de simulation à deux dimensions du reburning au charbon sur le four CERCHAR par le logiciel Fluent s'avère être un échec. En effet, le cas 2D est incapable de caractériser un système d'injection du combustible de reburning et de l'air de postcombustion sous la forme de deux lances opposées situées dans le plan horizontal et/ou d'une couronne. La modélisation de ce système doit être faite non seulement à trois dimensions afin de respecter à la fois la vitesse et le débit de ces injections mais également en intégrant l'ensemble du système expérimental.

Avec Fluent, nous avons toutefois obtenu une assez correcte modélisation d'une combustion classique à 5 % d'excès d'air pour un charbon français. Nous avons également pu vérifier que, lors du reburning, les vitesses d'injection de 100 et 150 m.s<sup>-1</sup> pour respectivement le combustible de reburning et l'air de postcombustion entraînent plusieurs zones de re-circulation notamment au sein de la zone de reburning mais aussi dans la zone primaire.

Par ailleurs, nous avons pu voir que l'orientation du jet d'air de postcombustion de 25° dans le sens de l'écoulement des gaz de combustion entraîne la disparition de la zone de re-circulation dans la zone de reburning. Cela confirme bien que l'injection de l'air de postcombustion influence celle du combustible de reburning modifiant la combustion voire les réactions chimiques (réduction des NO<sub>x</sub>) ayant lieu dans les deux premières zones.

Cette étude est cependant une première étape dans la modélisation du reburning. Appliquée au cours de cette étude à un outil semi-industriel représentatif des installations industrielles, elle permet entre autres de distinguer les éventuels problèmes liés à la combustion du charbon et aux injections du combustible de reburning et d'air de postcombustion. Une autre thèse est en cours avec pour objectif la modélisation du reburning sur une chaudière tangentielle de 600 MW.



# CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

## *Contexte et objectifs*

La réglementation, en matière d'émissions d'oxydes d'azote, est de plus en plus sévère ce qui incite les industriels et les exploitants d'installations de combustion à s'intéresser à des techniques permettant de réduire ces émissions. Un des procédés les plus efficaces est le procédé appelé « reburning » qui consiste à étager à la fois le combustible et l'air de combustion. Lorsque ce procédé est mis en place sur une installation brûlant du charbon pulvérisé (CP), la chaudière est divisée en trois zones :

- la zone de combustion primaire dans laquelle la majorité du combustible principal (charbon) est brûlée sous un léger excès d'air et où l'azote contenu dans ce combustible et l'azote de l'air vont donner naissance aux  $\text{NO}_x$  ;
- la zone de « reburning » ou de « sur-combustion » dans laquelle un combustible secondaire (dit « de reburning »), gazeux, liquide ou solide est injecté, créant ainsi un milieu réducteur générateur d'espèces radicalaires carbonées et azotées,  $\text{CH}_i$ ,  $\text{NH}_i$ , propices à la réduction des  $\text{NO}_x$  en azote moléculaire ;
- la zone de postcombustion (ou de « burnout ») dans laquelle de l'air est injecté pour compléter la combustion des espèces carbonées résiduelles.

D'après la plupart des études effectuées aux USA sur des pilotes de démonstration ou sur des installations de combustion de puissances variées (20 à 200 MWe) et de différents types (tangentielle, cyclone, frontale) avec du gaz naturel, du fioul, des pulpes et des charbons de divers rangs, l'intérêt principal du reburning vient de la possibilité d'obtenir des taux de réduction de  $\text{NO}_x$  importants pour des coûts d'investissement et de fonctionnement relativement peu élevés et de la possibilité de le mettre assez facilement en œuvre sur des installations existantes (« retrofitting »). En Europe, le reburning a été testé à l'échelle industrielle sur uniquement deux unités : à Longannet en Ecosse (600 MWe) pour le reburning au gaz naturel (réduction des  $\text{NO}_x$  de 42 à 49% sans détérioration notable de la qualité de la combustion) et à Vado Ligure en Italie (550 MWe) pour le reburning au charbon (réduction des  $\text{NO}_x$  de 35 à 45%).

L'instabilité grandissante du prix du gaz naturel rend de plus en plus attractif le reburning au charbon mais les mécanismes en jeu dans ce procédé sont encore souvent mystérieux ; il est ainsi aujourd'hui impossible de prédire l'efficacité d'un charbon donné à partir de ses caractéristiques. Notre objectif est donc d'étudier le reburning au gaz naturel et au charbon. Cette étude plus industrielle que fondamentale a été réalisée sur le four pilote du CERCHAR afin d'obtenir des informations plus précises concernant l'efficacité des charbons intéressants comme combustible de reburning pour la SNET. Les résultats obtenus avec le gaz naturel ont servi de référence notamment en raison d'absence d'azote réactif dans ce combustible et de sa facilité de transport et d'injection.

Le four pilote du CERCHAR est un outil semi-industriel muni d'un brûleur bas- $\text{NO}_x$ . Il a été construit sur la Plate-forme de Mazingarbe afin d'étudier des flammes au charbon



pulvérisé. Pour les besoins de notre étude, nous avons adapté ce four afin de créer les trois zones caractéristiques du reburning. Le four a donc été équipé des installations permettant de préparer et d'injecter les débits contrôlés des combustibles de reburning (gaz naturel, charbon pulvérisé) et d'air de postcombustion. Les variations dans la teneur initiale en oxydes d'azote ont été obtenues en modifiant les réglages du brûleur bas-NO<sub>x</sub> du four.

### *Etude paramétrique*

Cinq paramètres ont été sélectionnés au travers de la bibliographie afin d'être étudiés lors de ces tests : ce sont la température et la teneur en NO<sub>x</sub> à l'entrée de la zone de reburning, la stœchiométrie et le temps de séjour dans cette même zone ainsi que le type de combustible de reburning (gaz naturel et quatre charbons de différentes provenances). Lors de ces tests paramétriques, les teneurs en NO et en CO dans les fumées et les teneurs en carbone imbrûlé dans les cendres volantes (imbrûlé solide) ont été mesurées.

Le brûleur bas-NO<sub>x</sub> est conçu pour réduire les teneurs en NO<sub>x</sub> grâce aux réglages adéquats des débits d'air ; judicieusement dérégulé, il permet de faire varier ces teneurs dans un large intervalle et d'en étudier plusieurs valeurs à l'entrée de la zone de reburning. L'endroit d'injection du combustible de reburning est déterminé en fonction de la température voulue à l'entrée de la zone de reburning, ce qui influence aussi la longueur de la zone du brûleur (zone primaire). Le point d'injection de l'air de postcombustion est calculé en fonction de la position de l'injection du combustible de reburning et du temps de séjour des gaz désiré dans la zone de reburning. Le débit de combustible de reburning est ajusté en fonction de la stœchiométrie nominale voulue dans la zone de reburning. D'autres paramètres ont été tenus constants ; c'est le cas du débit de charbon principal, de l'excès d'air en sortie du brûleur qui a été fixé à 5 % et de l'excès d'air dans la zone de postcombustion qui a été fixé à 15 %. Le nombre de swirl a toujours été proche de 1 bien que les réglages du brûleur aient entraîné parfois de légères variations de ce nombre.

Globalement, l'application de ce procédé a permis d'obtenir des réductions de teneur en NO<sub>x</sub> dans les fumées comprises entre 50 et 70 % qui s'accompagnent toutefois d'une détérioration de la qualité de la combustion (augmentation de la teneur en CO dans les fumées et du carbone imbrûlé dans les cendres). Les résultats sont sensiblement les mêmes que ceux obtenus dans diverses autres études avec quelques différences dues à la nature des combustibles utilisés et aux caractéristiques des installations sur lesquelles ont eu lieu les expérimentations. Globalement, au cours de ces tests, nous avons vu que la diminution de la stœchiométrie (jusqu'à environ 0,85) et l'augmentation du temps de séjour dans la zone de reburning (jusqu'à 1 seconde) améliore l'efficacité du reburning. Parallèlement, quelque soit le combustible, l'augmentation de la teneur initiale en NO<sub>x</sub> jusqu'à une valeur limite (550 ppm) améliore le pourcentage de réduction des NO<sub>x</sub>. Au-delà, les pourcentages sont constants voire légèrement plus faibles. Cette valeur limite est fonction non seulement de l'installation mais également des caractéristiques du charbon utilisé comme combustible de reburning (teneur en azote fixé ou volatil). L'augmentation de la température à l'entrée de la zone de reburning de 1100 à 1200 °C favorise les réactions de réduction des NO<sub>x</sub> pour les deux combustibles. Contrairement aux autres travaux, la température de 1200°C apparaît comme optimale : l'efficacité de reburning à 1300°C est moins bonne. Ce résultat peut être attribué aux perturbations intervenant dans la zone primaire quand l'injection de combustible de reburning s'approche trop de l'ouverture du brûleur, pour obtenir la température initiale de reburning la plus haute. En particulier, la combustion de carbone solide devient incomplète, ce qui a pour conséquence une augmentation des imbrûlés solides et celle de la teneur en

oxygène dans la zone de reburning. Néanmoins, c'est l'interaction de l'ensemble de ces paramètres qui permet de réduire les  $\text{NO}_x$  lors du reburning. Dans le cas du reburning au charbon, nous avons observé une certaine influence de la teneur en azote fixé et volatil. Bien que nous ayons étudié qu'un nombre limité de charbons et donc un faible intervalle de teneur en azote fixé (et volatil), la littérature nous suggère de considérer ces caractéristiques dans l'interaction des paramètres d'études, afin d'obtenir un reburning au charbon efficace avec des taux de réduction similaires à ceux obtenus lors du reburning au gaz naturel.

### *Cartographies*

Pour approfondir l'analyse des résultats obtenus au cours des essais paramétriques et collecter des informations précises sur l'évolution des concentrations de gaz et des champs de température dans les trois zones de combustion, nous avons élaboré des cartographies du four pour quelques configurations de reburning étudiées auparavant. Les trois zones caractéristiques du reburning sont plus ou moins identifiables, notamment grâce aux concentrations en oxygène. Néanmoins, certains résultats mettent en doute la validité des paramètres introduits au cours de cette étude. Les raisons sont principalement dues à des tourbillons (re-circulations) créés par les flux d'air injectés (air de combustion, swirl, air de transport au charbon, air de postcombustion). Plusieurs zones de re-circulation ont donc été remarquées. L'observation la plus importante, c'est la présence d'oxygène dans la zone de reburning, malgré les stœchiométries nominales inférieures à 1. La raison en est la combustion incomplète du semi-coke dans la zone primaire (production de CO et d'imbrûlés solides). Néanmoins, la teneur en oxygène dans la zone de reburning est relativement faible, inférieure à 1 % au centre de cette zone. Il faut souligner, que la réduction des teneurs en  $\text{NO}_x$  est observée, malgré cette présence d'oxygène. Des observations similaires ont été signalées récemment dans la littérature. On parlera de valeurs nominales des paramètres d'études plutôt que de valeurs réelles.

La complexité des phénomènes chimiques, thermiques et hydrodynamiques mis en jeu dans le reburning nécessite de coupler les résultats expérimentaux obtenus sur notre pilote avec une modélisation tenant compte dans la mesure du possible de ces phénomènes. L'objectif de cet effort de modélisation est double : se servir de four CERCHAR comme d'un stade intermédiaire, pour établir le degré de complexité d'un modèle nécessaire pour traiter le cas d'un foyer industriel, et de proposer des modifications de ce four en tant qu'outil de caractérisation des combustibles de reburning.

### *Les réseaux de neurones*

Une modélisation faite avec des réseaux de neurones permet de corrélérer nos résultats obtenus au cours du reburning au gaz naturel et au charbon avec les paramètres opératoires nominaux de ce procédé. Elle reproduit l'influence de ces paramètres sur les émissions de  $\text{NO}_x$ , de CO et les imbrûlés solides. Un tel outil permettrait de chercher, pour une installation, un compromis entre réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  par le reburning et maintien de son efficacité. Elle peut également mettre en évidence les conditions opératoires optimales en fonction du combustible de reburning. Utilisée en temps réel, cette modélisation permet d'entrevoir une possibilité d'une application comme aide à la décision pour l'opérateur d'une centrale

Cette tentative de modélisation axée sur des corrélations ou des interpolations ne permet pas d'extrapoler sur d'autres installations ou conditions en dehors du domaine étudié.

L'utilisation de la mécanique numérique des fluides doit être capable d'apporter quelques réponses dans ce domaine. Ce type de modélisation a été appliqué au reburning au charbon sur le four pilote du CERCHAR.

### ***Modélisation par la mécanique numérique des fluides***

Nos objectifs étaient de vérifier les hypothèses concernant les anomalies constatées lors des expérimentations du reburning, de compléter les résultats obtenus lors des cartographies voire de guider les modifications du four pilote du CERCHAR afin d'améliorer ses capacités en tant qu'outil d'études du reburning.

Pour réduire les temps de calculs, nous avons retenu une configuration du four à 2 dimensions (2D). Le nombre de mailles retenu (22.000 mailles) permettait d'obtenir des résultats après un à deux jours de calculs. Une telle modélisation d'une combustion classique sans reburning a permis d'obtenir des résultats relatifs aux concentrations de gaz et de température en bon accord avec ce qui a été obtenu expérimentalement dans les mêmes conditions opératoires, avec une exception notable, le CO, qui est attribuée à une combustion plus lente et incomplète du carbone solide alors que Fluent évalue les teneurs en CO à l'équilibre par rapport au CO<sub>2</sub> et à l'O<sub>2</sub>. Bien que notre modélisation en 2D d'une combustion de charbon accompagnée du reburning au charbon soit intéressante au point de vue du temps de calcul, elle restreint toutefois l'hydrodynamique de l'injection et du mélange du combustible de reburning et de l'air de postcombustion avec les gaz de combustion, en partie à cause du mode d'injection du combustible adopté au cours de notre étude. Cependant, cette modélisation a confirmé l'existence de tourbillons (re-circulations) dans la zone primaire et celle de reburning. La réduction de l'importance de la re-circulation de l'air de postcombustion vers la zone de reburning est possible grâce à une inclinaison des jets d'air de postcombustion. La teneur en NO<sub>x</sub> est toutefois légèrement plus importante conformément à ce qu'il a été obtenu lors des cartographies du reburning au charbon. L'exploitation complète des résultats obtenus sur le four CERCHAR avec sa symétrie axiale nécessite un traitement en 3 dimensions. Une telle modélisation par Fluent nécessite des temps de calcul trop longs pour pouvoir s'en servir comme un aide à la conduite, d'où l'intérêt d'utiliser des moyens de modélisation moins fondamentaux donc a priori moins fiables mais plus rapides pour des prévisions en temps réel. Notre travail de modélisation menée avec le logiciel Fluent en collaboration avec l'Ecole des Mines de Douai n'a toutefois pas été terminé lors de cette étude, et est actuellement continuée dans le cadre d'une autre thèse.

### ***Perspectives***

Le reburning est toujours l'objet de recherches intenses, surtout aux USA, et ce, sur des installations de toutes tailles. Depuis quelques années, la recherche s'est orientée vers l'utilisation combinée du reburning et de la Réduction Sélective Non-catalytique des NO<sub>x</sub> (SNCR) permettant d'obtenir des réductions de NO<sub>x</sub> de 50 à 80 %. De plus, le couplage du reburning à la SNCR réduit la quantité de combustible secondaire (typiquement 10 % au lieu de 20 %). La complexité des mécanismes en jeu, la diversité des installations industrielles, le nombre de combinaisons possibles (nature du combustible secondaire, couplage à la SNCR, injection ou non d'agents complémentaires...) obligent à un recours à la modélisation prenant en compte les aspects chimiques, thermiques et hydrodynamiques du procédé ainsi qu'à l'utilisation de pilotes et d'installations industrielles pour la vérification et le "calage" des résultats numériques.

# **ANNEXES**

*ANNEXES*

## **ANNEXE 1**

# **PROPRIETES MOLECULAIRES ET THERMODYNAMIQUES DES OXYDES D'AZOTE**

## I - Le NO [1, 2, 3]

## I-1 Propriétés moléculaires

Energie de liaison	6,50 eV
Longueur de liaison	0,115 nm
Energie d'ionisation	9,25 eV
Affinité électronique	
Moment dipolaire	0,15 D
Moment magnétique	1,835 BM

## I-2 Propriétés physico-chimiques

Masse molaire	30,006
Température de fusion	109,51 K
Température d'ébullition normale	121,38 K
Température critique	180,0 K
Pression critique	64,80 bar
Volume critique	58,00 cm <sup>3</sup> /mol
Facteur acentrique	0,582
$\Delta H^\circ_f(298K)$	90,25 kJ/mol
$\Delta G^\circ_f(298K)$	86,58 kJ/mol

## I-3 Propriétés thermodynamiques (état de gaz parfait) [120]

T	C <sub>p</sub>	S	(H-Ho)/T	(Ho-G)/T	DfH	DfG
[K]		[J.mol <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]			[kJ.mol <sup>-1</sup> ]	
298.15	29.85	210.71	30.84	179.87	90.2	86.5
300	29.84	210.9	30.83	180.06	90.2	86.5
400	29.95	219.48	30.59	188.9	90.3	85.3
500	30.49	226.22	30.51	195.71	90.3	84
600	31.23	231.84	30.57	201.28	90.3	82.8
700	32.01	236.71	30.72	206	90.3	81.5
800	32.75	241.04	30.93	210.11	90.3	80.3
900	33.42	244.94	31.17	213.77	90.3	79
1000	33.99	248.49	31.42	217.07	90.4	77.8
1100	34.48	251.75	31.68	220.07	90.4	76.5
1200	34.89	254.77	31.93	222.84	90.4	75.2
1300	35.23	257.58	32.17	225.4	90.4	74
1400	35.52	260.2	32.4	227.8	90.4	72.7
1500	35.77	262.66	32.62	230.04	90.4	71.4
1600	35.98	264.97	32.82	232.15	90.5	70.2
1700	36.17	267.16	33.01	234.15	90.5	68.9
1800	36.33	269.23	33.19	236.04	90.4	67.6
1900	36.48	271.2	33.36	237.84	90.4	66.4
2000	36.61	273.07	33.52	239.55	90.4	65.1

II - le NO<sub>2</sub> [1, 2, 3]

## II-1 Propriétés moléculaires

Energie de liaison	
Longueur de liaison	0,1197 nm
Angle ONO	134°15'
Energie d'ionisation	11 eV
Affinité électronique	
Moment dipolaire	0,39 D
Moment magnétique	
Susceptibilité magnétique	28,2 <sup>E</sup> -2 unités cgs/g

## II-2 Propriétés physico-chimiques

Masse molaire	46,055
Température de fusion	261,95 K
Température d'ébullition normale	302,22 K
Température critique	431,01 K
Pression critique	101,00 bar
Volume critique	58,00 cm <sup>3</sup> /mol
Facteur acentrique	1,007
$\Delta H_f^\circ(298K)$	9,16 kJ/mol
$\Delta G_f^\circ(298K)$	97,85 kJ/mol

## II-3 Propriétés thermodynamiques (état de gaz parfait) [120]

T	C <sub>p</sub>	S	(H-Ho)/T	(Ho-G)/T	DfH	DfG
[K]		[J.mol <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]			[kJ.mol <sup>-1</sup> ]	
298.15	37.62	240.53	34.45	206.08	33.2	51.2
300	37.68	240.76	34.47	206.29	33.1	51.3
400	41.18	252.08	35.71	216.37	32.7	57.4
500	44.46	261.63	37.14	224.49	32.4	63.6
600	47.38	270	38.61	231.39	32.4	69.9
700	49.87	277.5	40.04	237.45	32.4	76.1
800	51.94	284.29	41.41	242.89	32.6	82.4
900	53.63	290.51	42.67	247.84	32.9	88.6
1000	55	296.24	43.84	252.4	33.3	94.7
1100	56.14	301.53	44.91	256.63	33.7	100.9
1200	57.08	306.46	45.88	260.58	34.1	107
1300	57.89	311.06	46.78	264.28	34.6	113
1400	58.6	315.38	47.6	267.78	35.1	119
1500	59.25	319.44	48.35	271.09	35.6	125
1600	59.84	323.29	49.05	274.23	36.1	130.9
1700	60.4	326.93	49.7	277.23	36.7	136.8
1800	60.95	330.4	50.31	280.09	37.3	142.7
1900	61.48	333.71	50.89	282.82	37.9	148.6
2000	62	336.88	51.43	285.45	38.5	154.4



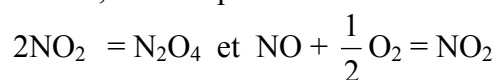
III - Le N<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [1, 2, 3]

## Propriétés thermodynamiques (état de gaz parfait)[120]

T	Cp	S	(H-Ho)/T	(Ho-G)/T	DfH	DfG
[K]		[J.mol <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]			[kJ.mol <sup>-1</sup> ]	
260	76.11	293.68	53.76	239.92	9.5	86.5
270	77.5	296.58	54.62	241.96	9.4	89.5
280	78.82	299.42	55.46	243.96	9.3	92.5
290	80.09	302.21	56.29	245.92	9.2	95.4
300	81.31	304.95	57.1	247.84	9.1	98.4
310	82.48	307.63	57.9	249.73	9.1	101.4
320	83.61	310.27	58.69	251.58	9	104.4
330	84.69	312.86	59.46	253.4	9	107.3
340	85.74	315.4	60.22	255.18	8.9	110.3
350	86.75	317.9	60.96	256.94	8.9	113.3
360	87.73	320.36	61.69	258.67	8.9	116.3
370	88.67	322.77	62.41	260.37	8.9	119.3
380	89.59	325.15	63.11	262.04	8.9	122.2
390	90.48	327.49	63.8	263.69	8.9	125.2
400	91.34	329.79	64.48	265.31	8.9	128.2
410	92.18	332.06	65.14	266.91	9	131.2
420	92.99	334.29	65.8	268.49	9	134.2
430	93.78	336.49	66.44	270.05	9	137.1
440	94.55	338.65	67.07	271.58	9.1	140.1
450	95.3	340.78	67.69	273.1	9.1	143.1
460	96.03	342.89	68.3	274.59	9.1	146.1
470	96.73	344.96	68.89	276.07	9.2	149.1
480	97.42	347	69.48	277.52	9.3	152
490	98.09	349.02	70.06	278.96	9.3	155
500	98.74	351.01	70.63	280.38	9.4	158

## IV – Réactions [1, 2, 3]

Avec l'ensemble de ces données sur le NO, NO<sub>2</sub> et N<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, il est possible de voir comment évoluent en fonction de la température les équilibres de différentes réactions impliquant ces oxydes, l'oxygène et l'azote, dont en particulier :

IV-1 2NO<sub>2</sub> = N<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

Cette réaction est exothermique :  $\Delta H^\circ(298\text{K}) = -57,3 \text{ kJ}$ . Le taux de dimérisation du dioxyde d'azote dépend de la température, de la pression et de la teneur totale en NO<sub>2</sub> et N<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, l'influence de la température étant prédominante. Le dimère devient prépondérant aux basses températures (inférieures à 400 K). Quand la teneur totale diminue, la courbe se déplace encore à gauche (Figure A1.1). Dans les domaines de températures et des concentrations de ce travail, l'équilibre de cette réaction est fortement déplacé en faveur du monomère NO<sub>2</sub>.

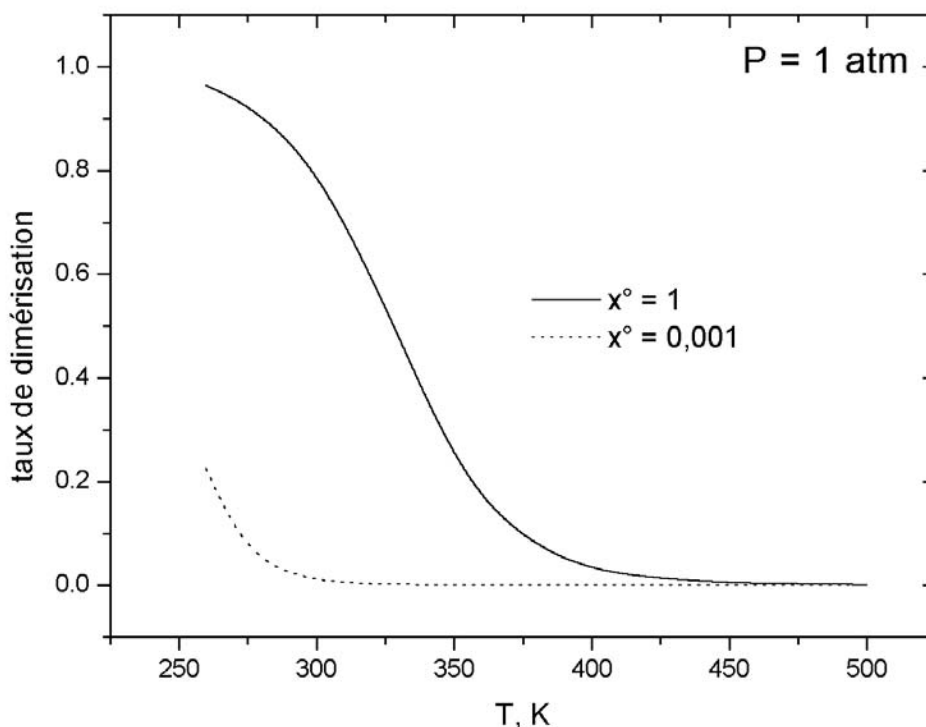
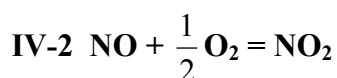


Figure A1.1 : Taux de dimérisation de  $\text{NO}_2$ ,  $x\text{N}_2\text{O}_4/x\text{N}_2\text{O}_4+2x\text{NO}_2$ , en fonction de la température et de la fraction molaire initiale de  $\text{NO}_2$  ;  $P = 1 \text{ atm}$



En présence d'oxygène, le monoxyde d'azote peut s'oxyder en dioxyde. La position de l'équilibre de cette réaction exothermique ( $\Delta H^\circ(298\text{K}) = -57 \text{ kJ}$ ) dépend de la température, de la teneur en oxygène et de la pression totale (Figure A1.2).

Dans les conditions de combustion où la température est élevée ( $> 1400^\circ\text{C}$ ), le NO est majoritaire. Quand la température baisse,  $\text{NO}_2$  devient l'espèce stable, mais la transformation peut être lente pour des raisons cinétiques (voir paragraphe V). Dans les normes, les teneurs des «  $\text{NO}_x$  » sont exprimées habituellement en mg de  $\text{NO}_2$  par  $\text{Nm}^3$ .

Par ailleurs, pour éviter l'ambiguïté associée à une éventuelle dilution des fumées par de l'air, ces teneurs sont re-calculées à 6 % d' $\text{O}_2$ .

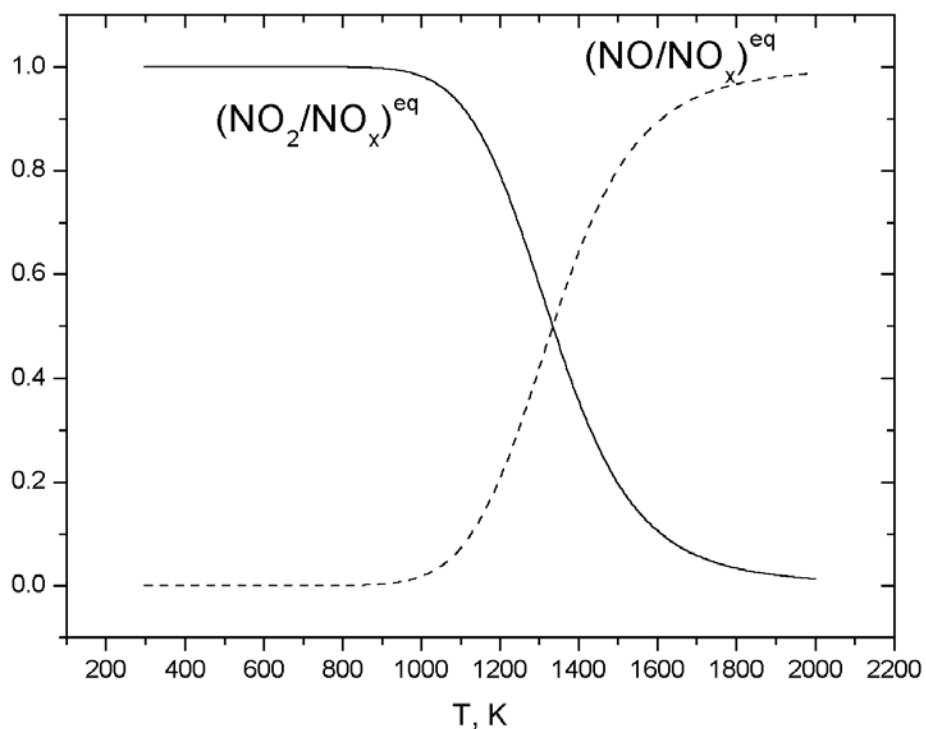


Figure A1.2 : Evolution de NO et de NO<sub>2</sub> en fonction de la température ; 5 % O<sub>2</sub>,  
P = 1 atm

#### IV-3 $N_2 + O_2 = 2NO$ , $N_2 + 2O_2 = 2NO_2$

Aux températures élevées, les corps simples azote et oxygène contenus dans l'air et dans les fumées peuvent se combiner en oxydes d'azote. Les teneurs maximales des  $NO_x = NO + NO_2$  peuvent être déterminées à partir d'équilibres des réactions ci-dessus (Fig. A1.3a). La teneur totale exprimée en mg NO<sub>2</sub> par Nm<sup>3</sup>, recalculée sur 6% d'O<sub>2</sub>, est représentée sur la Figure A1.3b.

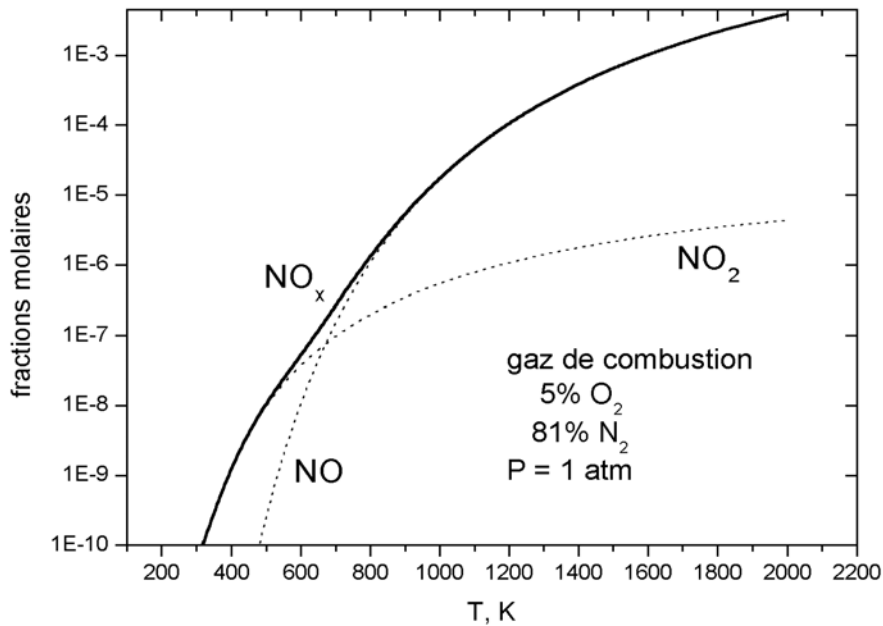


Figure A1.3a : Fractions molaires des NO<sub>x</sub> en fonction de la température, en équilibre des

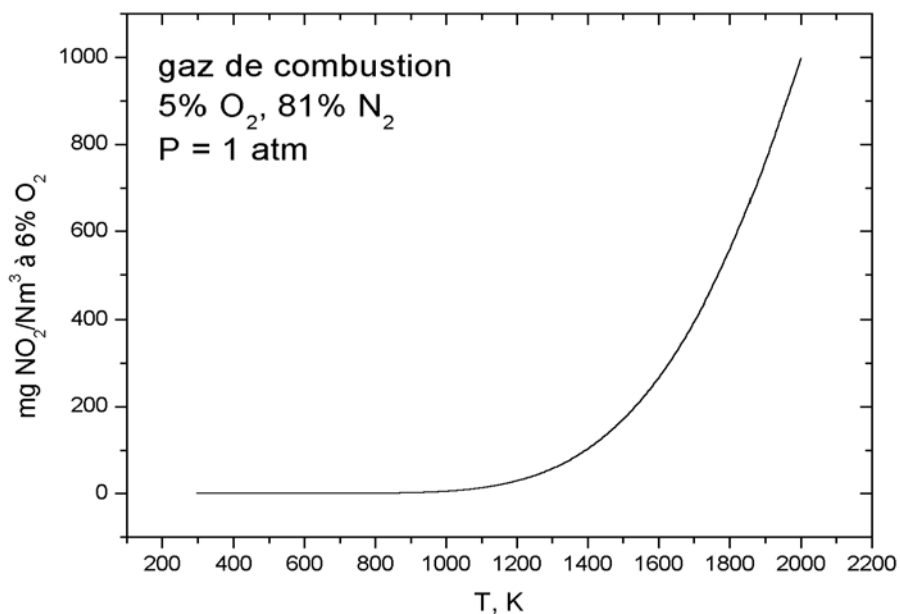
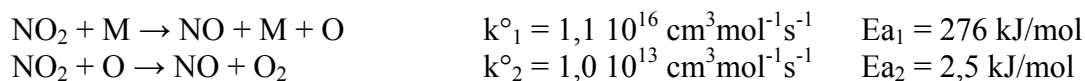


Figure A1.3b : Données de la figure A1.3a exprimées conformément aux normes européennes

### V - Données cinétiques [1, 2, 3]

Les réactions de formation et de disparition des oxydes d'azote pendant la combustion du charbon principal et de reburning sont très nombreuses, étant donné la participation dans ces réactions de diverses espèces existant dans les flammes, sous formes gazeuses, liquides ou solides. Des tableaux des paramètres cinétiques des réactions les plus importantes se trouvent dans les bases de données des logiciels tels que Chemkin [121], et dans les monographies [104, 106].

Si on se limite aux réactions discutées ci-dessus du point de vue de l'équilibre, et aux systèmes les plus simples, contenant uniquement l'azote, ses oxydes et l'oxygène, le mécanisme proposé pour la réaction  $\text{NO}_2 = \text{NO} + \frac{1}{2} \text{O}_2$  est le suivant :



ce qui correspond à l'expression pour la vitesse  $-d[\text{NO}_2]/dt = 2 k_1 [\text{NO}_2][\text{M}]$

La réaction inverse  $\text{NO} + \frac{1}{2} \text{O}_2 = \text{NO}_2$  est d'ordre global 3 :

$$v = k [\text{NO}]^2 [\text{O}_2] \quad k^\circ = 8 \cdot 10^9 \text{ cm}^6 \text{ mol}^{-2} \text{ s}^{-1} \quad E_a \approx 0$$

Les différents mécanismes expliquant cette équation cinétique ont été proposés par Bodenstein [122] et Miller et Bowman [105]

La figure A1.4 illustre ces données par les temps de demi-réaction pour la transformation de  $\text{NO}_2$  en  $\text{NO}$  et  $\text{O}_2$  et pour la réaction inverse, dans un mélange contenant 6% d'oxygène. Pour l'oxydation de  $\text{NO}$  en  $\text{NO}_2$ , la fraction molaire initiale de  $\text{NO}$  a été prise égale à 0,001.

On peut conclure qu'en absence de catalyseurs de cette réaction, l'oxydation de  $\text{NO}$  en  $\text{NO}_2$ , bien que favorisée par la thermodynamique, se trouve retardée pour des raisons cinétiques, ce qui fait de  $\text{NO}$  le composant majoritaire des  $\text{NO}_x$  dans les gaz de combustion, même si les analyses sont faites sur les gaz refroidis. D'autre part, les teneurs en  $\text{NO}_2$  peuvent devenir plus élevées dans certaines flammes [110, 123]. La cinétique de formation des  $\text{NO}_x$  à partir d' $\text{O}_2$  et  $\text{N}_2$  a été discutée en détail dans la partie 6 de la thèse (mécanisme de Zeldovich)

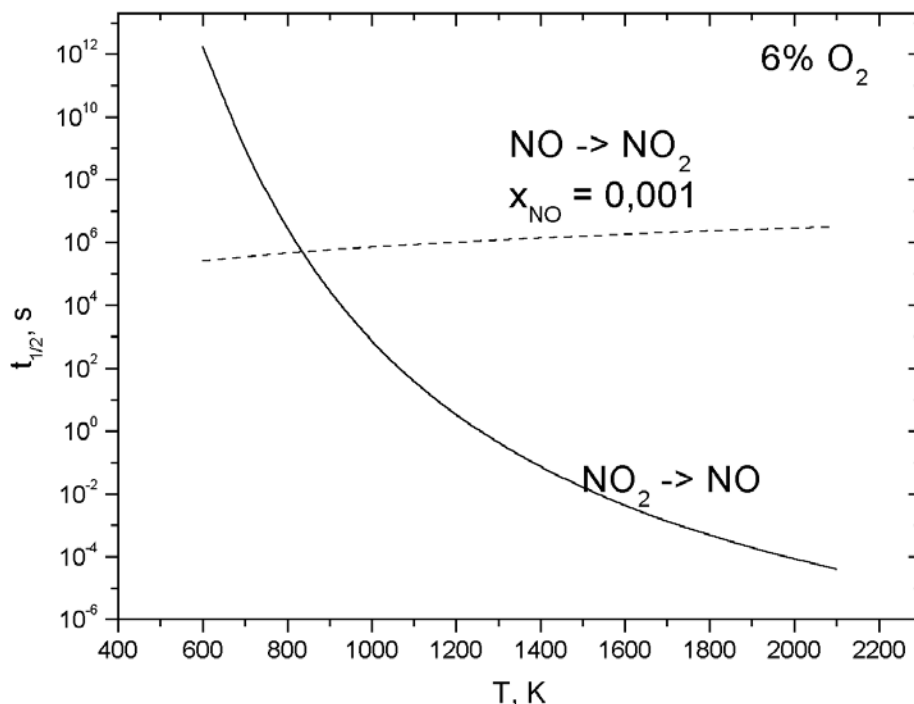


Figure A1.4 : Temps de demi-réaction pour les réactions  $\text{NO}_2 = \text{NO} + \frac{1}{2} \text{O}_2$  et  $\text{NO} + \frac{1}{2} \text{O}_2 = \text{NO}_2$  en fonction de la température

## **ANNEXE 2**

# **MECANISME REACTIONNEL**

ANNEXES

no.	reaction	A	$\beta$	E	ref
1	$H + H + M \rightleftharpoons H_2 + M$	1.0E18 <sup>b</sup>	-1.00	0	c
Enhanced Third-Body Efficiencies: $H_2 = 0, H_2O = 0, CO_2 = 0$					
2	$H + H + H_2 \rightleftharpoons H_2 + H_2$	9.2E16	-0.60	0	c
3	$H + H + H_2O \rightleftharpoons H_2 + H_2O$	6.0E19	-1.25	0	c
4	$H + H + CO_2 \rightleftharpoons H_2 + CO_2$	5.5E20	-2.00	0	c
5	$H + OH + M \rightleftharpoons H_2O + M$	7.5E23	-2.60	0	c
Enhanced Third-Body Efficiencies: $H_2O = 5$					
6	$O + OH \rightleftharpoons H + O_2$	4.5E14	-0.50	60	d
7	$H + O_2 + M \rightleftharpoons HO_2 + M$	7.0E17	-0.80	0	e
Enhanced Third-Body Efficiencies: $H_2O = 18.6, CO_2 = 4.2, H_2 = 2.86, CO = 2.11, N_2 = 1.26$					
8	$O + O + M \rightleftharpoons O_2 + M$	1.9E13	0.00	-1788	d
9	$O + H_2 \rightleftharpoons H + OH$	5.0E4	2.67	6290	f
10	$OH + OH \rightleftharpoons H_2O + O$	2.1E8	1.40	-400	d
11	$OH + H_2 \rightleftharpoons H_2O + H$	6.4E6	2.00	2961	d
12	$H_2 + O_2 \rightleftharpoons OH + OH$	1.7E13	0.00	47780	c
13	$HO_2 + H \rightleftharpoons H_2 + O_2$	2.5E13	0.00	700	c
14	$HO_2 + H \rightleftharpoons OH + OH$	2.5E14	0.00	1900	c
15	$HO_2 + O \rightleftharpoons OH + H_2$	4.8E13	0.00	1000	c
16	$HO_2 + OH \rightleftharpoons H_2O + O_2$	5.0E13	0.00	1000	c
17	$HO_2 + HO_2 \rightleftharpoons H_2O_2 + O_2$	2.0E12	0.00	0	c
18	$H_2O_2 + M \rightleftharpoons OH + OH + M$	1.2E17	0.00	45500	c
19	$H_2O_2 + H \rightleftharpoons HO_2 + H_2$	1.7E12	0.00	3750	c
20	$H_2O_2 + O \rightleftharpoons HO_2 + OH$	9.6E6	2.00	3974	d
21	$H_2O_2 + OH \rightleftharpoons H_2O + HO_2$	1.0E13	0.00	1800	c
22	$CO + O + M \rightleftharpoons CO_2 + M$	6.2E14	0.00	3000	d
23	$CO + OH \rightleftharpoons CO_2 + H$	1.5E7	1.30	-760	c
24	$CO + O_2 \rightleftharpoons CO_2 + O$	2.5E12	0.00	47700	c
25	$CO + HO_2 \rightleftharpoons CO_2 + OH$	5.8E13	0.00	22930	c
26	$CH_4 + M \rightleftharpoons CH_3 + H + M$	4.7E17	0.00	93200	m
Enhanced Third-Body Efficiencies: $H_2O = 5$					
27	$CH_4 + H \rightleftharpoons CH_3 + H_2$	2.2E4	3.00	8750	c
28	$CH_4 + O \rightleftharpoons CH_3 + OH$	1.0E9	1.50	8600	d
29	$CH_4 + OH \rightleftharpoons CH_3 + H_2O$	1.9E5	2.40	2110	d
30	$CH_4 + O_2 \rightleftharpoons CH_3 + HO_2$	4.0E13	0.00	56910	d
31	$CH_4 + HO_2 \rightleftharpoons CH_3 + H_2O_2$	1.8E11	0.00	18700	d
32	$CH_4 + CH_2 \rightleftharpoons CH_3 + CH_3$	4.3E12	0.00	10030	f
33	$CH_4 + {}^1CH_2 \rightleftharpoons CH_3 + CH_3$	4.3E13	0.00	0	d
34	$CH_4 + CH \rightleftharpoons C_2H_4 + H$	6.0E13	0.00	0	c
35	$CH_3 + M \rightleftharpoons CH_2 + H + M$	1.9E16	0.00	91600	c
36	$CH_2 + H_2 \rightleftharpoons CH_3 + H$	5.0E12	0.00	10000	estimd
37	${}^1CH_2 + H_2 \rightleftharpoons CH_3 + H$	7.2E13	0.00	0	d
38	$CH_3 + O \rightleftharpoons CH_2O + H$	8.4E13	0.00	0	f
39	$CH_3 + OH \rightleftharpoons CH_2 + H_2O$	7.5E7	2.00	5000	g
40	$CH_3 + OH \rightleftharpoons {}^1CH_2 + H_2O$	2.0E13	0.00	0	n, estimd
41	$CH_3 + O_2 \rightleftharpoons CH_3O + O$	2.1E18	-1.57	29229	d
42	$CH_3 + HO_2 \rightleftharpoons CH_3O + OH$	2.0E13	0.00	0	d
43	$CH_3 + CH_2O \rightleftharpoons CH_4 + HCO$	5.5E3	2.81	5860	d
44	$CH_3 + HCO \rightleftharpoons CH_4 + CO$	1.2E14	0.00	0	d
45	$CH_3 + CH_2 \rightleftharpoons C_2H_4 + H$	4.2E13	0.00	0	d
46	$CH_3 + CH \rightleftharpoons C_2H_3 + H$	3.0E13	0.00	0	c
47	$CH_3 + C \rightleftharpoons C_2H_2 + H$	5.0E13	0.00	0	c
48	$CH_3O + M \rightleftharpoons CH_2O + H + M$	1.0E14	0.00	25000	c
49	$CH_3O + H \rightleftharpoons CH_2O + H_2$	2.0E13	0.00	0	c
50	$CH_3O + O \rightleftharpoons CH_2O + OH$	1.0E13	0.00	0	c
51	$CH_3O + OH \rightleftharpoons CH_2O + H_2O$	1.0E13	0.00	0	c
52	$CH_3O + O_2 \rightleftharpoons CH_2O + HO_2$	6.3E10	0.00	2600	c
53	$CH_2OH + M \rightleftharpoons CH_2O + H + M$	1.0E14	0.00	25000	e
54	$CH_2OH + H \rightleftharpoons CH_2O + H_2$	3.0E13	0.00	0	e
55	$CH_2OH + O \rightleftharpoons CH_2O + OH$	1.0E13	0.00	0	estimd, same as (50)
56	$CH_2OH + OH \rightleftharpoons CH_2O + H_2O$	1.0E13	0.00	0	estimd, same as (51)
57	$CH_2OH + O_2 \rightleftharpoons CH_2O + HO_2$	1.5E13	0.00	1500	g
58	$CH_2O + M \rightleftharpoons HCO + H + M$	1.0E16	0.00	80270	h
59	$CH_2O + M \rightleftharpoons CO + H_2 + M$	8.3E15	0.00	69550	h
60	$CH_2O + H \rightleftharpoons HCO + H_2$	2.2E8	1.77	3000	c
61	$CH_2O + O \rightleftharpoons HCO + OH$	1.7E6	2.32	1480	i
62	$CH_2O + O \rightleftharpoons CO_2 + H + H$	3.5E5	2.42	1360	i
63	$CH_2O + OH \rightleftharpoons HCO + H_2O$	3.4E9	1.18	-447	c
64	$CH_2O + CH \rightleftharpoons CH_2CO + H$	9.5E13	0.00	-517	f
65	$HCO + M \rightleftharpoons CO + H + M$	2.5E14	0.00	16802	e

Figure A2.1 : Mécanisme réactionnel lors du reburning selon Kilpinen et al. [106]

## ANNEXES

no.	reaction	A	$\beta$	E	ref
Enhanced Third-Body Efficiencies: CH <sub>4</sub> = 2.8, H <sub>2</sub> O = 5.0, CO <sub>2</sub> = 3.0, H <sub>2</sub> = 1.9, CO = 1.9					
66	HCO + H = CO + H <sub>2</sub>	1.2E13	0.25	0	f
67	HCO + O = CO + OH	3.0E13	0.00	0	c
68	HCO + O = CO <sub>2</sub> + H	3.0E13	0.00	0	c
69	HCO + OH = CO + H <sub>2</sub> O	1.1E14	0.00	0	f
70	HCO + O <sub>2</sub> = CO + HO <sub>2</sub>	3.3E13	-0.40	0	c
71	HCO + CH <sub>2</sub> = CH <sub>3</sub> + CO	2.0E13	0.00	0	d
72	CH <sub>2</sub> + H = CH + H <sub>2</sub>	1.0E17	-1.20	0	f, AT <sup>g</sup> -expression
73	CH <sub>2</sub> + O = CO + H + H	1.7E13	0.20	0	f, AT <sup>g</sup> -expression
74	CH <sub>2</sub> + O = CO + H <sub>2</sub>	9.0E12	0.20	0	f, AT <sup>g</sup> -expression
75	CH <sub>2</sub> + OH = CH <sub>2</sub> O + H	3.0E13	0.00	0	c
76	CH <sub>2</sub> + OH = CH + H <sub>2</sub> O	1.1E7	2.00	3000	g
77	CH <sub>2</sub> + O <sub>2</sub> = CH <sub>2</sub> O + O	5.0E13	0.00	9000	c
78	CH <sub>2</sub> + O <sub>2</sub> = CO <sub>2</sub> + H + H	1.6E12	0.00	1000	c
79	CH <sub>2</sub> + O <sub>2</sub> = CO <sub>2</sub> + H <sub>2</sub>	6.9E11	0.00	500	c
80	CH <sub>2</sub> + O <sub>2</sub> = CO + H <sub>2</sub> O	1.9E10	0.00	-1000	c
81	CH <sub>2</sub> + O <sub>2</sub> = CO + OH + H	8.6E10	0.00	-500	c
82	CH <sub>2</sub> + O <sub>2</sub> = HCO + OH	4.3E10	0.00	-500	c
83	CH <sub>2</sub> + CO <sub>2</sub> = CO + CH <sub>2</sub> O	1.1E11	0.00	1000	c
84	CH <sub>2</sub> + CH <sub>2</sub> = C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + 2H	1.0E12	0.60	0	f, AT <sup>g</sup> -expression
85	CH <sub>2</sub> + CH = C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + H	4.0E13	0.00	0	c
86	CH <sub>2</sub> + C = C <sub>2</sub> H + H	5.0E13	0.00	0	c
87	<sup>1</sup> CH <sub>2</sub> + M = CH <sub>2</sub> + M	1.0E13	0.00	0	g
Enhanced Third-Body Efficiencies: H = 0					
88	<sup>1</sup> CH <sub>2</sub> + H = CH <sub>2</sub> + H	2.0E14	0.00	0	g
89	<sup>1</sup> CH <sub>2</sub> + O <sub>2</sub> = CO + OH + H	3.1E13	0.00	0	d
90	CH + H = C + H <sub>2</sub>	1.5E14	0.00	0	c
91	CH + O = CO + H	1.0E13	0.30	0	f, AT <sup>g</sup> -expression
92	CH + OH = HCO + H	5.0E13	0.00	0	g
93	CH + O <sub>2</sub> = HCO + O	3.3E13	0.00	0	c
94	CH + H <sub>2</sub> O = CH <sub>2</sub> O + H	5.7E12	0.00	-755	f
95	CH + CO <sub>2</sub> = HCO + CO	3.4E12	0.00	686	c
96	C + OH = CO + H	5.0E13	0.00	0	c
97	C + O <sub>2</sub> = CO + O	2.0E13	0.00	0	c
98	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> = 2CH <sub>3</sub>	5.8E13	0.00	75000	m
99	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> + H = C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> + H <sub>2</sub>	5.4E2	3.50	5200	c
100	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> + O = C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> + OH	1.2E12	0.60	7310	d
101	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> + OH = C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> + H <sub>2</sub> O	8.7E9	1.05	1810	c
102	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> + CH <sub>3</sub> = C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> + CH <sub>4</sub>	5.5E-1	4.00	8280	c
103	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> + M = C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> + H + M	1.0E17	0.00	31000	m
104	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> + H = CH <sub>3</sub> + CH <sub>3</sub>	2.3E12	0.50	0	f, AT <sup>g</sup> -expression
105	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> + O <sub>2</sub> = C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> + HO <sub>2</sub>	8.4E11	0.00	3875	d
106	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> + M = C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + H <sub>2</sub> + M	1.5E15	0.00	55440	f
107	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> + M = C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + H + M	1.4E16	0.00	81280	f
108	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> + H = C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + H <sub>2</sub>	1.3E6	2.53	12240	d
109	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> + OH = CH <sub>2</sub> O + CH <sub>3</sub>	5.6E12	0.00	1500	f
110	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> + OH = C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + H <sub>2</sub> O	9.0E13	0.00	6860	f
111	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> + CH <sub>3</sub> = C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + CH <sub>4</sub>	6.6E0	3.70	9500	d
112	C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + M = C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + H + M	8.0E14	0.00	31550	m
113	C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + H = C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + H <sub>2</sub>	4.0E13	0.00	0	c
114	C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + O = CH <sub>2</sub> CO + H	3.3E13	0.00	0	c
115	C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + OH = C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + H <sub>2</sub> O	5.0E12	0.00	0	c
116	C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + O <sub>2</sub> = C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + HO <sub>2</sub>	4.0E12	0.00	-250	c
117	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + M = C <sub>2</sub> H + H + M	4.2E16	0.00	107000	c
118	C <sub>2</sub> H + H <sub>2</sub> = C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + H	4.1E5	2.39	860	c
119	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + O = CH <sub>2</sub> + CO	1.7E8	1.60	2210	f
120	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + O = HCCO + H	2.5E8	1.60	2210	f
121	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + OH = CH <sub>2</sub> CO + H	2.2E-4	4.50	-1000	g
122	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + OH = C <sub>2</sub> H + H <sub>2</sub> O	3.4E7	2.00	14000	g
123	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + CH <sub>2</sub> = C <sub>3</sub> H <sub>3</sub> + H	1.2E13	0.00	6600	f
124	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + <sup>1</sup> CH <sub>2</sub> = C <sub>3</sub> H <sub>3</sub> + H	1.7E14	0.00	0	f
125	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + CH = C <sub>3</sub> H <sub>2</sub> + H	8.4E13	0.00	0	f
126	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + C <sub>2</sub> H = C <sub>4</sub> H <sub>2</sub> + H	4.0E13	0.00	0	f
127	CH <sub>2</sub> CO + M = CH <sub>2</sub> + CO + M	1.5E15	0.00	57600	m
128	CH <sub>2</sub> CO + H = CH <sub>3</sub> + CO	1.1E13	0.00	3430	c
129	CH <sub>2</sub> CO + H = HCCO + H <sub>2</sub>	5.0E13	0.00	8000	g
130	CH <sub>2</sub> CO + O = CH <sub>2</sub> O + CO	1.5E12	0.00	1350	f
131	CH <sub>2</sub> CO + O = HCCO + OH	1.0E13	0.00	8000	c
132	CH <sub>2</sub> CO + OH = HCCO + H <sub>2</sub> O	7.5E12	0.00	3000	c
133	HCCO + H = <sup>1</sup> CH <sub>2</sub> + CO	1.4E14	0.00	0	c
134	HCCO + O = CO + CO + H	1.1E14	0.00	0	c
135	HCCO + OH = HCO + CO + H	1.0E13	0.00	0	c
136	HCCO + O <sub>2</sub> = CO + CO + OH	1.6E12	0.00	850	f
137	HCCO + CH <sub>2</sub> = C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + CO	3.0E13	0.00	0	c
138	HCCO + CH = C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + CO	5.0E13	0.00	0	g

Figure A2.1 : Mécanisme réactionnel lors du reburning selon Kilpinen et al. [106](suite)



ANNEXES

no.	reaction	A	$\beta$	E	ref
Enhanced Third-Body Efficiencies: H = 0					
139	HCCO + HCCO $\rightleftharpoons$ C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> + 2CO	1.0E13	0.00	0	c
140	C <sub>2</sub> H + O $\rightleftharpoons$ CH + CO	5.0E13	0.00	0	c
141	C <sub>2</sub> H + OH $\rightleftharpoons$ HCCO + H	2.0E13	0.00	0	c
142	C <sub>2</sub> H + O <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ CO + HCO	5.0E13	0.00	1500	e
143	C <sub>4</sub> H <sub>2</sub> + O $\rightleftharpoons$ C <sub>3</sub> H <sub>2</sub> + CO	2.7E13	0.00	1700	e
144	C <sub>4</sub> H <sub>2</sub> + OH $\rightleftharpoons$ C <sub>3</sub> H <sub>2</sub> + HCO	3.0E13	0.00	0	e
145	C <sub>3</sub> H <sub>3</sub> + O $\rightleftharpoons$ CH <sub>2</sub> O + C <sub>2</sub> H	2.0E13	0.00	0	g
146	C <sub>3</sub> H <sub>3</sub> + OH $\rightleftharpoons$ C <sub>3</sub> H <sub>2</sub> + H <sub>2</sub> O	2.0E13	0.00	0	g
147	C <sub>3</sub> H <sub>3</sub> + O <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ CH <sub>2</sub> CO + HCO	3.0E10	0.00	2868	f
148	C <sub>3</sub> H <sub>2</sub> + O <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ HCCO + HCO	1.0E13	0.00	0	g
149	NH <sub>3</sub> + M $\rightleftharpoons$ NH <sub>2</sub> + H + M	1.4E16	0.00	90600	c
150	NH <sub>3</sub> + H $\rightleftharpoons$ NH <sub>2</sub> + H <sub>2</sub>	6.4E5	2.39	10171	c
151	NH <sub>3</sub> + O $\rightleftharpoons$ NH <sub>2</sub> + OH	2.1E13	0.00	9000	c
152	NH <sub>3</sub> + OH $\rightleftharpoons$ NH <sub>2</sub> + H <sub>2</sub> O	2.0E6	2.04	566	c
153	NH <sub>2</sub> + H $\rightleftharpoons$ NH + H <sub>2</sub>	6.9E13	0.00	3650	c
154	NH <sub>2</sub> + O $\rightleftharpoons$ HNO + H	7.9E14	-0.50	0	c
155	NH <sub>2</sub> + O $\rightleftharpoons$ NH + OH	7.0E12	0.00	0	c
156	NH <sub>2</sub> + OH $\rightleftharpoons$ NH + H <sub>2</sub> O	4.0E6	2.00	1000	g
157	NH + H $\rightleftharpoons$ N + H <sub>2</sub>	1.0E14	0.00	0	g
158	NH + O $\rightleftharpoons$ NO + H	2.0E13	0.00	0	c
159	NH + OH $\rightleftharpoons$ HNO + H	2.0E13	0.00	0	c
160	NH + OH $\rightleftharpoons$ N + H <sub>2</sub> O	5.0E11	0.50	2000	c
161	NH + O <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ HNO + O	1.0E13	0.00	12000	c
162	NH + O <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ NO + OH	7.6E10	0.00	1530	f
163	N + OH $\rightleftharpoons$ NO + H	3.8E13	0.00	0	c
164	N + O <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ NO + O	6.4E9	1.00	6280	c
165	NNH $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> + H	1.0E4	0.00	0	g
166	NNH + H $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> + H <sub>2</sub>	1.0E14	0.00	0	g
167	NNH + O $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> O + H	1.0E14	0.00	0	g
168	NNH + OH $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> + H <sub>2</sub> O	5.0E13	0.00	0	g
169	NO + HO <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ NO <sub>2</sub> + OH	2.1E12	0.00	-480	c
170	NO + NH <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> + H <sub>2</sub> O	6.2E15	-1.25	0	g
171	NO + NH <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ NNH + OH	6.4E15	-1.25	0	g
172	NO + NH $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> O + H	2.4E15	-0.80	0	g
173	NO + N $\rightleftharpoons$ O + N <sub>2</sub>	3.3E12	0.30	0	c
174	NO + NNH $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> + HNO	5.0E13	0.00	0	c
175	HNO + M $\rightleftharpoons$ H + NO + M	1.5E16	0.00	48680	c
Enhanced Third-Body Efficiencies: H <sub>2</sub> O = 10, O <sub>2</sub> = 2, H <sub>2</sub> = 2, N <sub>2</sub> = 2					
176	HNO + H $\rightleftharpoons$ H <sub>2</sub> + NO	5.0E12	0.00	0	c
177	HNO + OH $\rightleftharpoons$ NO + H <sub>2</sub> O	3.6E13	0.00	0	c
178	NO <sub>2</sub> + M $\rightleftharpoons$ NO + O + M	1.1E16	0.00	66000	c
179	NO <sub>2</sub> + H $\rightleftharpoons$ NO + OH	3.5E14	0.00	1500	c
180	NO <sub>2</sub> + O $\rightleftharpoons$ NO + O <sub>2</sub>	1.0E13	0.00	600	c
181	N <sub>2</sub> O + M $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> + O + M	9.3E14	0.00	59300	f
182	N <sub>2</sub> O + H $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> + OH	1.9E6	2.42	13500	f
183	N <sub>2</sub> O + O $\rightleftharpoons$ NO + NO	1.0E14	0.00	28200	c
184	N <sub>2</sub> O + O $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> + O <sub>2</sub>	1.0E14	0.00	28200	c
185	N <sub>2</sub> O + OH $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> + HO <sub>2</sub>	2.0E12	0.00	10000	g
186	CN + H <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ HCN + H	3.0E5	2.45	2237	c
187	HCN + O $\rightleftharpoons$ NCO + H	1.4E4	2.64	4980	c
188	HCN + O $\rightleftharpoons$ NH + CO	3.5E3	2.64	4980	c
189	HCN + O $\rightleftharpoons$ CN + OH	2.7E9	1.58	29200	c
190	HCN + OH $\rightleftharpoons$ CN + H <sub>2</sub> O	1.5E13	0.00	10929	c
191	HCN + OH $\rightleftharpoons$ HOCN + H	5.9E4	2.40	12500	g
192	HCN + OH $\rightleftharpoons$ HNCO + H	2.0E-3	4.00	1000	g
193	HCN + OH $\rightleftharpoons$ NH <sub>2</sub> + CO	7.8E-3	4.00	4000	g
194	CN + O $\rightleftharpoons$ CO + N	1.8E13	0.00	0	c
195	CN + OH $\rightleftharpoons$ NCO + H	6.0E13	0.00	0	c
196	CN + O <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ NCO + O	5.6E12	0.00	0	c
197	NCO + M $\rightleftharpoons$ N + CO + M	3.1E16	-0.50	47700	c
198	NCO + H $\rightleftharpoons$ NH + CO	5.0E13	0.00	0	c
199	NCO + O $\rightleftharpoons$ NO + CO	3.2E13	0.00	0	f
200	NCO + OH $\rightleftharpoons$ NO + CO + H	1.0E13	0.00	0	c
201	NCO + H <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ HNCO + H	8.6E12	0.00	9000	c
202	NCO + N $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> + CO	2.0E13	0.00	0	c
203	NCO + NO $\rightleftharpoons$ N <sub>2</sub> O + CO	1.0E13	0.00	-390	c
204	HCNO + H $\rightleftharpoons$ HCN + OH	1.0E14	0.00	12000	c
205	HOCN + H $\rightleftharpoons$ HNCO + H	1.0E13	0.00	0	c
206	HNCO + H $\rightleftharpoons$ NH <sub>2</sub> + CO	1.1E14	0.00	12720	j
207	HNCO + O $\rightleftharpoons$ NCO + OH	3.2E12	0.00	10300	k
208	HNCO + OH $\rightleftharpoons$ NCO + H <sub>2</sub> O	2.6E12	0.00	5540	k
209	H <sub>2</sub> CN + M $\rightleftharpoons$ HCN + H + M	3.0E14	0.00	22000	g
210	CO <sub>2</sub> + N $\rightleftharpoons$ NO + CO	1.9E11	0.00	3400	c
211	CH <sub>3</sub> + N $\rightleftharpoons$ H <sub>2</sub> CN + H	3.0E13	0.00	0	g

Figure A2.1 : Mécanisme réactionnel lors du reburning selon Kilpinen et al.

## ANNEXES

no.	reaction	A	$\beta$	E	ref
Enhanced Third-Body Efficiencies: H <sub>2</sub> O = 10, O <sub>2</sub> = 2, H <sub>2</sub> = 2, N <sub>2</sub> = 2					
212	CH <sub>3</sub> + NO $\rightleftharpoons$ HCN + H <sub>2</sub> O	5.3E11	0.00	15000	f, g
213	CH <sub>3</sub> + NO $\rightleftharpoons$ H <sub>2</sub> CN + OH	5.3E11	0.00	15000	f, g
214	CH <sub>2</sub> + N $\rightleftharpoons$ HCN + H	5.0E13	0.00	0	c
215	CH <sub>2</sub> + N <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ HCN + NH	1.0E13	0.00	74000	c
216	CH <sub>2</sub> + NO $\rightleftharpoons$ HCNO + H	1.4E12	0.00	-1100	c
217	<sup>1</sup> CH <sub>2</sub> + NO $\rightleftharpoons$ HCN + OH	1.0E14	0.00	0	l
218	CH + N $\rightleftharpoons$ CN + H	1.3E13	0.00	0	c
219	CH + N <sub>2</sub> $\rightleftharpoons$ HCN + N	3.0E11	0.00	13600	c
220	CH + NO $\rightleftharpoons$ HCO + O	1.1E14	0.00	0	c
221	CN + N $\rightleftharpoons$ C + N <sub>2</sub>	1.9E15	-0.60	0	f, AT <sup>g</sup> -expression
222	C + NO $\rightleftharpoons$ CN + O	3.7E13	0.00	0	f
223	C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + N $\rightleftharpoons$ HCN + CH <sub>2</sub>	2.0E13	0.00	0	c
224	HCCO + N $\rightleftharpoons$ HCN + CO	5.0E13	0.00	0	c
225	HCCO + NO $\rightleftharpoons$ HCNO + CO	2.0E13	0.00	0	g

<sup>a</sup> Rate constants given in form  $k_+ = AT^{\beta} \exp(-E/RT)$ . Units: moles, cubic centimeters, seconds (A), kelvin (T), and calories/mole (E).  
<sup>b</sup> 1.0E18 is read as  $1.0 \times 10^{18}$ . <sup>c</sup> Glarborg et al. (1986). <sup>d</sup> Tsang and Hampson (1986). <sup>e</sup> Warnatz (1984). <sup>f</sup> Westley et al. (1991). <sup>g</sup> Miller and Bowman (1989). <sup>h</sup> Rimpel and Just (1980). <sup>i</sup> Hsu et al. (1983). <sup>j</sup> Tully et al. (1988). <sup>k</sup> Mertens et al. (1988). <sup>l</sup> Langford et al. (1983).  
<sup>m</sup> Glarborg (1987). <sup>n</sup> Hack et al. (1988).

Figure A2.1 : Mécanisme réactionnel lors du reburning selon Kilpinen et al. [106](fin)

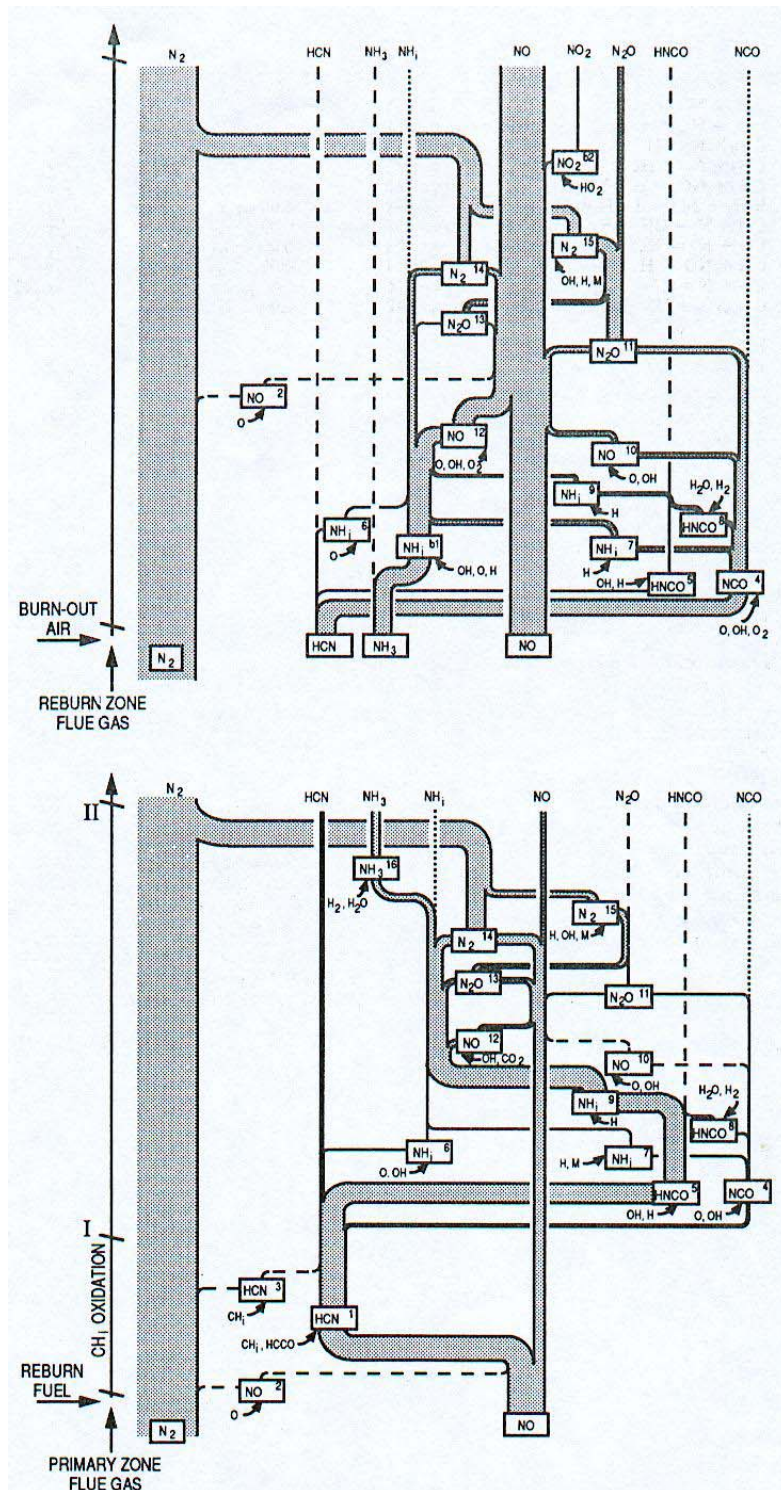


Figure A2.2 : Réactions du NO dans la zone de reburning avec du méthane et des espèces azotées (NO, HCN,  $\text{NH}_i$ ) dans la zone de postcombustion (les réactions sont effectuées pour un écoulement piston) pour le  $\text{NH}_i$ ,  $i = 0, 1$  et  $2$  ; pour le  $\text{CH}_i$ ,  $i = 0, 1, 2$  ou  $3$ .

Conditions : Stœchiométrie de la zone primaire = 1,05 (le combustible principal est du charbon) ; teneur initiale en  $\text{NO}_x = 660$  ppm ; stœchiométrie de la zone de reburning = 0,9 – 0,95 ; température à l'entrée de la zone de reburning = 1500-1400°C ; stœchiométrie de la zone de postcombustion = 1,2 ; temps de séjour de la zone de reburning = 0,5 s

## **ANNEXE 3**

# **PROCEDURES D'ANALYSE DU CHARBON**

## I - Analyse élémentaire

La teneur en soufre est mesurée en brûlant à haute température (1400 °C) un échantillon broyé à 200 µm et sec à l'air (norme référence ASTM D 5106). Le SO<sub>2</sub> formé est mesuré et est comparé avec un étalon de référence. Les mesures sont traitées statistiquement (Etendue de mesures : 0.001 à 4 %).

Les teneurs en carbone, hydrogène et azote sont mesurées en brûlant à haute température (900 °C) un échantillon broyé à 200 µm et sec à l'air dans un courant d'oxygène (norme référence ASTM D 5373). Le CO<sub>2</sub> et le H<sub>2</sub>O (éléments oxydés du carbone et de l'hydrogène) sont mesurés par spectrométrie infrarouge et comparés avec un étalon de référence. Le NO<sub>2</sub> formé par conductibilité thermique est mesuré et comparé avec un étalon de référence.

La teneur en oxygène est déterminée comme le complément à 100 % de la somme des teneurs en carbone, hydrogène, azote, soufre et cumule donc toutes les incertitudes de la détermination.

## II - Analyse immédiate

- Mesure de l'humidité (Normes références : ASTM D 5142, conforme à NF M 0-037)

L'humidité est déterminée par la mesure de la perte de masse après que l'échantillon (charbon, coke, cendres...), broyé à 200 µm, ait subi une montée en température jusque 105 °C.

- Mesure du taux de cendres (Normes références : ASTM D 5142, conforme à NF M 03-003)

La teneur en cendres d'un échantillon est déterminée par mesure de la perte de masse après que l'échantillon broyé à 200 µm ait subi une montée en température jusque 815 °C sous atmosphère oxydante.

Des prélèvements de solides dans les fumées peuvent être effectués afin de déterminer leur teneur en cendres. La teneur en imbrûlés des prélèvements solides se calcule comme la différence à 100 % de la teneur en cendres d'un échantillon sec. D'après l'analyse des cendres, un taux de combustion peut être calculé comme le rapport de la perte de masse de combustible total à la masse de combustion dans le charbon. A partir de la teneur en imbrûlés  $I_m$  et du taux de cendres dans le charbon %Cendres, on calcule le taux de combustion  $T_x$  par la formule :

$$T_x = 1 - \left\{ \frac{I_m}{1 - I_m} \cdot \frac{\%Cendres}{100 - \%Cendres} \right\} \quad (A3.1)$$

- Mesure de l'indice de matières volatiles (Normes références : ASTM D 5142, conforme à NF M 03-004)

Les matières volatiles sont la fraction de masse de l'échantillon qui est libérée sous forme gazeuse sous l'action d'une quantité de chaleur fournie. Le taux de carbone fixe

(rapportée au charbon brut) qui ne fait pas l'objet d'une mesure directe peut être calculé comme la différence à 100 % de la somme des teneurs sur brut de matières volatiles, de cendres et d'humidité. L'indice de matières volatiles est déterminé par mesure de la perte de masse après que l'échantillon broyé à 200 µm ait subi une montée en température jusqu'à 900 °C sous gaz inerte.

### III - Le pouvoir calorifique (Norme NF M 03-005)

Le pouvoir calorifique supérieure est déterminé après combustion, en présence d'oxygène, dans une bombe calorimétrique d'un échantillon sec à l'air et broyé à 200 µm. Il se calcule à volume constant à partir de l'élévation de température, compte tenu des réactions chimiques secondaires et éventuellement des pertes thermiques. Le pouvoir calorifique inférieur est déterminé par calcul.

### IV - Granulométrie du charbon

La mesure de la granulométrie du charbon pulvérisé est effectuée par diffraction. Cela consiste à faire traverser l'échantillon par un faisceau de lumière monochromatique, à mesurer la répartition de la lumière diffractée (mesure des signaux fournis par un détecteur électronique) et à calculer, au moyen d'un algorithme approprié, la distribution granulométrique (distribution de ROSIN-RAMMLER-BENNETT-SPERLING). La méthode s'applique aux échantillons contenant des particules de forme pratiquement sphérique, et pouvant être mises en suspension dans un liquide. Le faisceau de lumière crée en effet un motif de diffraction en illuminant une particule sphérique, chaque motif de diffraction est donc généré par un intervalle de taille de la gamme (1-1.5-2-3-4-6-8-12-16-24-32-48-64-96-128-192 µm) en fonction de sa taille moyenne, avec une intensité fonction du nombre de particules présentes. Le choix du liquide porteur se fait à l'aide de la norme NF X 11-693. Sachant que celui-ci doit :

- ✓ Etre optiquement transparent à la longueur d'onde utilisée (632.8 nm).
- ✓ Mouiller convenablement les particules afin de les séparer, sinon adjonction d'un dispersant.
- ✓ Etre choisi en fonction du produit à analyser, vis-à-vis duquel il doit être absolument neutre chimiquement et qu'il ne doit pas dissoudre.
- ✓ Avoir un indice de réfraction différent de celui de l'échantillon pour avoir un signal.

Les résultats sont donnés en :

- ✓ Pourcentage en poids cumulés « passants » ou « refus ».
- ✓ Histogramme.
- ✓ Diamètre médian à 50% qui est le diamètre correspondant à 50% du pourcentage en poids cumulés « passants » qui divise le graphique en deux parties de même aire.
- ✓ Surface spécifique.
- ✓ Point tamis.
- ✓ Poids total.

## ANNEXES

La distribution de Rosin-Rammler est une distribution en masse à deux paramètres très utilisée en granulométrie de poudres, en particuliers pour le charbon broyé. Elle s'écrit sous la forme :

$$F(d) = \exp. \left\{ -\left(\frac{d}{d_{po}}\right)^n \right\} \quad (A3.2)$$

F : fréquence relative cumulée

$d_{po}$  : diamètre moyen de ROSIN-RAMMLER (valeur pour laquelle la fréquence est maximale).

d : diamètre d'aire projetée ( $d_p, d_a$ )\* ou diamètre périmétrique  $d_{pr}$  \* .

n : indice de dispersion de la distribution.

$d_p$  : diamètre d'un cercle ayant la même surface que l'aire projetée de la particule, celle-ci ayant une orientation aléatoire.

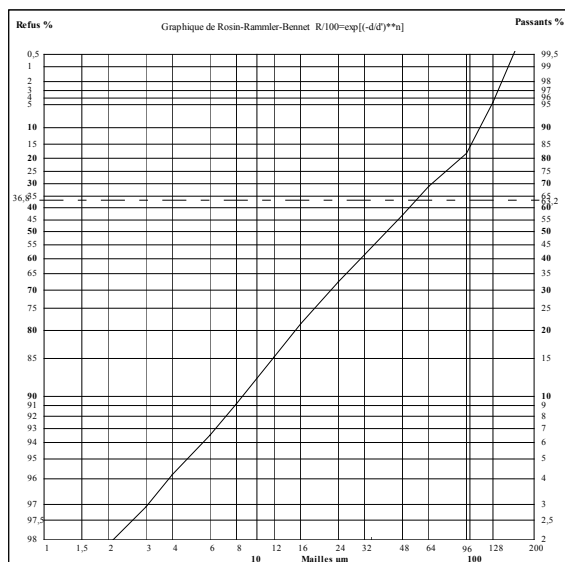
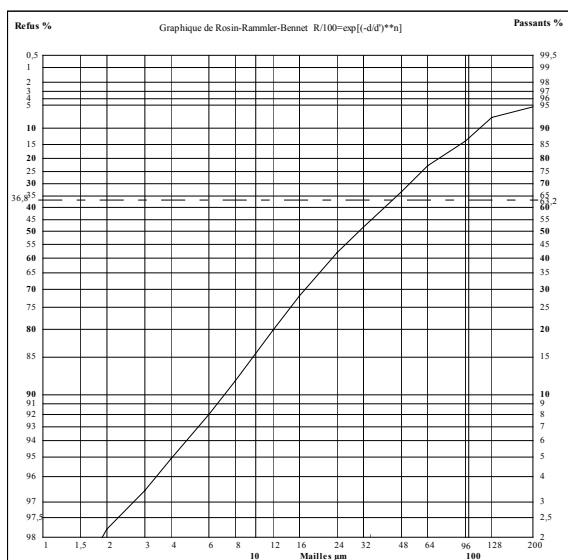
$d_a$  : diamètre d'un cercle ayant la même surface que l'aire projetée de la particule, celle-ci étant en position stable.

$d_{pr}$  : diamètre d'un cercle ayant le même périmètre que la projection du contour de la particule.

La courbe de fréquence est obtenue par différentiation :

$$\text{Log} \{ \log(1/F(d)) \} = n \log d - n \log d_{po} \quad (A3.3)$$

La distribution granulométrique d'un charbon français (Freyming) est donnée sur la figure A3.1. Les réglages du broyeur restent identiques pour tous les combustibles. Les broyats sont donc de qualité comparable, caractérisés en moyenne par 70-77 % de passant à 64  $\mu\text{m}$  et 81-86 % de passant à 90  $\mu\text{m}$ .



*Figure A3.1 : Deux exemples de distribution granulométrique d'un charbon français (Freyming) (gauche : année 2000, droite : année 1999)*

## **ANNEXE 4**

# **LE REBURNING AU GAZ NATUREL**



## I - Modification de l'outil expérimental

### I-1 Modification et adaptation de l'outil expérimental au reburning au gaz naturel

#### I-1-1 L'injection

Le bon mélange du combustible de reburning et de l'air de postcombustion avec les fumées issues des zones en amont (zone primaire et de reburning) est un facteur essentiel dans la réduction des émissions des oxydes d'azote [32]. Un système d'injection radiale du gaz naturel et de l'air de postcombustion sous la forme de deux couronnes (figure A4.1), perpendiculaires à l'axe du four et munies de plusieurs injecteurs, a donc été retenu.

Pour optimiser ces injections et favoriser un mélange rapide et de qualité avec les fumées, la forme du jet et les injecteurs doivent être adaptés (vitesse, pression, diamètre).

L'écoulement d'un gaz au travers d'un orifice (injecteur) se fait sous l'effet d'une différence de pression entre l'amont et l'aval de cet orifice. Dans notre cas, cette différence de pression est l'écart entre la pression  $P_1$  régnant au sein de la couronne de gaz naturel et la pression  $P_2$  à l'intérieur du four. Ainsi, la vitesse  $v$  du jet obtenu est fonction de la différence de pression :  $v = f(P_1 - P_2)$ . Jusqu'à une certaine valeur de  $P_1/P_2$ , la vitesse se calcule comme  $v = a \cdot \sqrt{(P_1 - P_2)}$  où  $a$  est une constante. Au-delà, la vitesse demeure constante [81].

Un débit volumique est, en règle générale, égal au produit de la vitesse par la section de l'orifice. Néanmoins, il faut apporter une correction à cette égalité lorsque l'on calcule le débit volumique d'un jet. En effet, l'écoulement d'un gaz au travers d'un orifice s'accompagne d'une contraction caractérisée par un facteur multiplicatif appelé coefficient de débit ou de contraction déterminé expérimentalement. Ce coefficient fait intervenir la différence entre la section de l'orifice et la section réelle du jet. Le débit volumique  $q_v$  se calcule donc par la formule :  $q_v = v \cdot S_c \cdot C$  où  $C$  est inférieur à l'unité (il est en pratique compris dans l'intervalle 0,6-0,95),  $v$  la vitesse du jet et  $S_c$  la section de l'orifice. Le débit volumique est exprimé dans les conditions normales de référence (température de 0°C et pression absolue de 1,013 bar) [81].

Le jet à la sortie de l'injecteur peut avoir un régime soit subsonique soit sonique. Nous nous limitons pour l'étude à un régime subsonique. Pour cela, il est nécessaire que le jet n'atteigne pas une pression amont critique  $P_1$ . Au-delà, le jet sera en un régime sonique. Cette valeur critique se détermine en fonction du rapport  $\gamma = \frac{C_p}{C_v}$  des chaleurs massiques à pression et volume constant et de la pression en aval de l'orifice  $P_2$ . Dans notre cas, si le four est à pression atmosphérique ( $P_2 = 1,013$  bar) et comme  $\gamma = 1,31$  (gaz naturel de Groningue dont les caractéristiques sont présentées au chapitre II, partie 2), la pression absolue critique en amont de l'orifice sera de 1,865 bar (0,852 bar de pression relative), pression au-delà de laquelle le jet aurait un régime sonique ou hypersonique [81].

Il est possible de calculer le diamètre des buses connaissant le débit volumique et la pression en amont de l'injecteur, grâce à la formule simplifiée «très basse pression». Elle suppose le gaz incompressible et donne une légère erreur par excès sur la valeur du débit volumique par rapport à la formule complète qui fait intervenir la détente du gaz. Cette erreur est négligeable aux faibles pressions (0,5 % par excès pour 50 mbar et 5 % pour une pression proche de la valeur critique).

Cette formule est donc [81] :

$$q_v = 0,182 \times C \times D^2 \times \sqrt{\frac{h}{\delta \cdot (273+T)}} \quad (\text{A4.1})$$

avec :

$q_v$  = débit volumique (en  $\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ ),

$C$  = coefficient de débit ; nous pouvons prendre la valeur de 0,8 correspondant à un orifice en paroi épaisse, c'est-à-dire d'épaisseur égale au diamètre et raccordé à la conduite amont par un cône d'angle au sommet compris entre 60 et 120°. Néanmoins, lors de nos essais, le calcul de ce coefficient a donné une valeur comprise dans l'intervalle [0,68, 0,78].

$D$  = diamètre de l'injecteur (en mm),

$h$  = pression effective du gaz à l'injecteur exprimé en mm de hauteur d'eau,

$\delta$  = densité du gaz (0,64 pour le gaz naturel),

$T$  = température du gaz immédiatement à l'amont de l'injecteur (en °C).

### I-1-2 Injection du gaz naturel

Nous avons choisi un système d'injection du gaz naturel sous la forme d'une couronne munie de 8 buses d'injection. Ce système, qui est alimenté par deux arrivées de gaz, peut être facilement installé dans le four tout en étant maintenu stable par des béquilles de maintien. Cette injection qui se fait en 8 points, diamétralement opposés deux à deux, permet d'entourer les gaz de combustion issus de la zone primaire. La couronne qui est soumise à de fortes températures, est munie d'une double enveloppe en acier ordinaire, permettant une circulation, extérieure à la couronne de gaz, d'une eau de refroidissement (figure A4.1). Le diamètre de la conduite de gaz est de 15 mm afin de limiter les pertes de charge

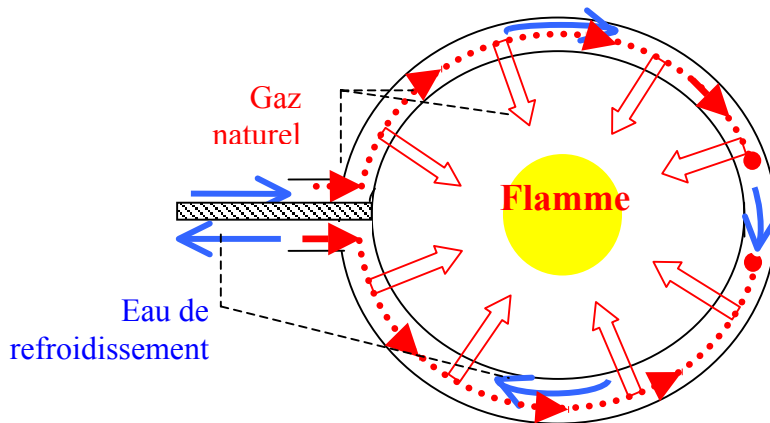


Figure A4.1 : Couronne d'injection  
(vue selon l'axe du brûleur)

Les figures A4.2, A4.3 et A4.4 représentent les vitesses et les pressions d'injection d'un jet de gaz naturel dans une enceinte se trouvant à pression atmosphérique pour des injecteurs de diamètre respectif de 4, 5 et 6 mm (équation 3.1). Ces graphes nous indiquent que, pour un débit de  $80 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  (débit maximal prévu dans notre étude), la vitesse du jet devient importante notamment lorsque les injecteurs ont un diamètre de 4 et 5 mm. En effet, elle est de l'ordre respectivement de 220 et de  $140 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ . Pour ces diamètres, la pression en amont du jet doit être respectivement de près de 300 et 140 mbar effectif. Un injecteur avec un diamètre de 6 mm permet d'obtenir, pour le même débit, un jet de gaz d'une vitesse de  $100 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  environ avec une pression en amont inférieure à 100 mbar effectif. Pour un débit de

$50 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  (débit de combustible de reburning minimal prévu dans notre étude et délivrant 10 % environ de la charge thermique totale du four), la vitesse du jet est de  $60 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ . Nous avons estimé qu'une vitesse aussi faible ne permettrait pas un mélange correct du combustible de reburning avec les fumées et réduirait donc l'efficacité du reburning.

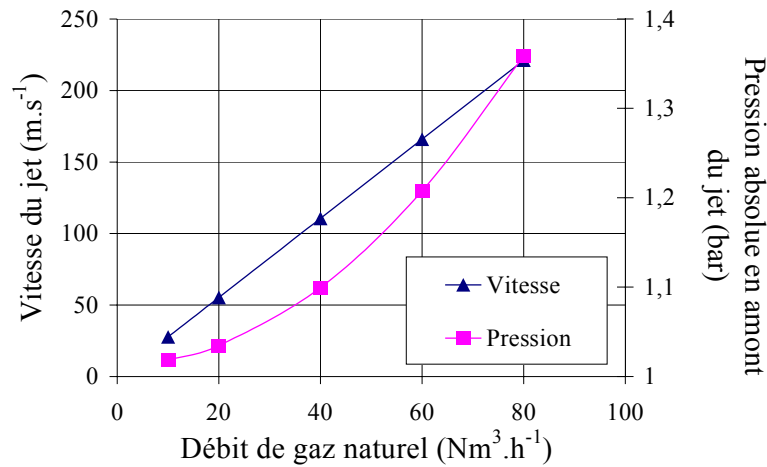


Figure A4.2 : Vitesse et pression pour un diamètre d'injecteurs de 4 mm

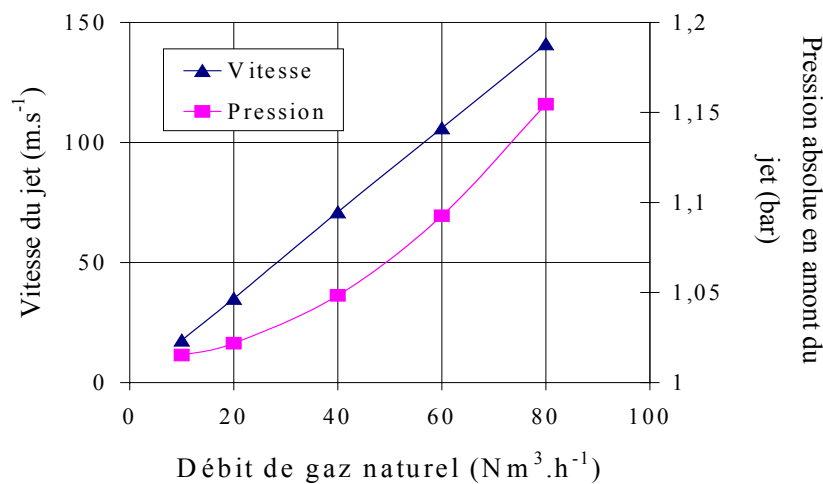


Figure A4.3 : Vitesse et pression pour un diamètre d'injecteurs de 5 mm

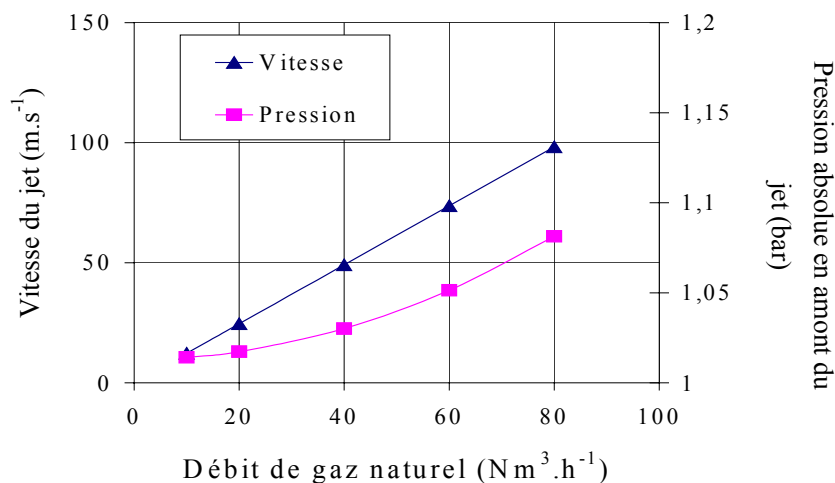


Figure A4.4 : Vitesse et pression pour un diamètre d'injecteurs de 6 mm

Pour permettre un mélange rapide et efficace du gaz naturel avec les fumées, nous avons fixé une vitesse minimale d'injection du gaz naturel de l'ordre de  $80 \text{ m.s}^{-1}$ . Pour cela, le diamètre des buses d'injection doit être de 5 mm (figure A4.3). Avec un tel diamètre, la vitesse d'injection peut atteindre environ  $130 \text{ m.s}^{-1}$  pour le débit maximal de  $75 \text{ Nm}^3.\text{h}^{-1}$  et  $85 \text{ m.s}^{-1}$  pour le débit minimal de  $50 \text{ Nm}^3.\text{h}^{-1}$ . La vitesse du jet avec un diamètre de 4 mm serait trop importante lorsque le débit de gaz est maximal et inversement, avec un diamètre de 6 mm, la vitesse serait trop faible pour un débit de gaz minimal.

### I-1-3 Injection de l'air de postcombustion

Nous avons également élaboré un système d'injection pour l'air de postcombustion sur la base d'une couronne munie de plusieurs buses d'injection. Les points d'injection sont diamétralement opposés deux à deux et permettent d'entourer les gaz de combustion sortant des zones en amont (zone primaire et de reburning). Néanmoins, leur nombre est fonction des limites de l'installation d'injection d'air. La couronne peut être facilement installée dans le four et est équipée de béquilles de maintien afin de la maintenir stable. Contrairement à la couronne de gaz, la couronne d'air est soumise à des températures plus faibles (environ  $900 \text{ }^\circ\text{C}$ ) et n'est pas refroidie avec une circulation extérieure d'eau de refroidissement. La circulation de l'air de postcombustion a été jugée suffisante pour refroidir le système d'injection.

Pour un débit de charbon principal de  $400 \text{ kg.h}^{-1}$ , un débit de gaz naturel de  $75 \text{ Nm}^3.\text{h}^{-1}$  (combustible de reburning) et un excès d'air dans la zone de burnout à 15 %, le débit d'air de postcombustion dans cette dernière zone doit être égal à  $920 \text{ Nm}^3.\text{h}^{-1}$ . Avec le même excès d'air et un débit de gaz naturel de  $50 \text{ Nm}^3.\text{h}^{-1}$ , le débit d'air requis est réduit à  $770 \text{ Nm}^3.\text{h}^{-1}$ . La figure A4.5 représente le nombre de buses d'injection requis en fonction de leur diamètre pour avoir un débit d'air minimal de  $770 \text{ Nm}^3.\text{h}^{-1}$  et une vitesse d'injection de  $150 \text{ m.s}^{-1}$  (équation 3.1). Cette vitesse supérieure à celle du gaz naturel a été choisie afin d'assurer un meilleur mélange air-fumées issues des zones précédentes.

Un diamètre de buse d'injection supérieur ou égal à 10 mm est selon nous un diamètre trop grand : la vitesse d'injection de l'air serait trop faible et par ailleurs l'écoulement de l'air dans la couronne subirait trop de pertes de pression, la vitesse des jets ne serait pas homogène. Un diamètre de buse de 6 mm serait trop faible car le nombre de buses d'injection sur la couronne d'air deviendrait important (figure A4.5). Nous avons donc choisi une couronne d'air équipée de 28 buses de 8 mm de diamètre. La figure A4.6 représente l'évolution de la vitesse et de la pression en fonction du débit d'air de postcombustion pour cette configuration. Pour un débit d'air de  $920 \text{ Nm}^3.\text{h}^{-1}$ , la vitesse d'injection est de  $180 \text{ m.s}^{-1}$ . Pour ce débit, la pression à atteindre en amont de la buse d'injection est de 370 mbar environ, pression facile à obtenir avec notre système d'alimentation.

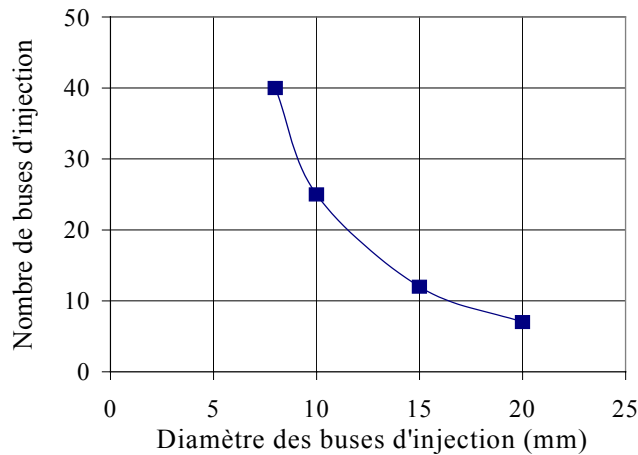


Figure A4.5 : Nombre de buses d'injection en fonction de leur diamètre

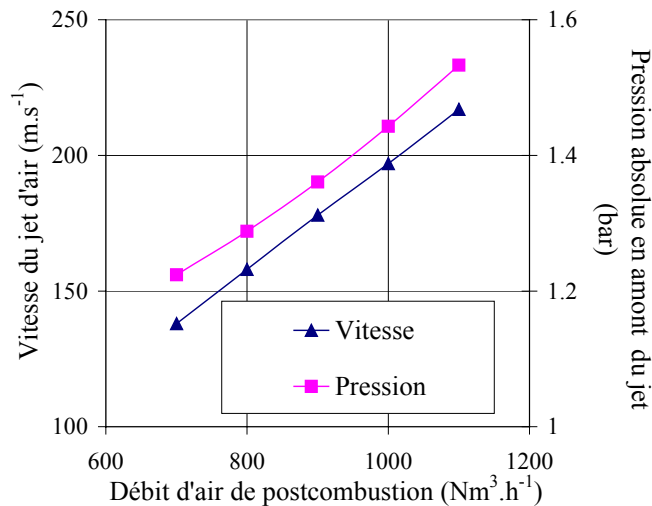


Figure A4.6 : Vitesse et pression absolue pour un diamètre d'injecteurs de 8 mm et 28 buses d'injection

#### I-1-4 Alimentation en gaz naturel et en air sec

L'alimentation du système d'injection de gaz se fait à partir du réseau de Gaz De France. Le gaz naturel utilisé comme combustible de reburning est du gaz naturel en provenance de Groningue aux Pays-Bas. La pression du réseau est de 1 bar effectif. Le débit maximal délivré par ce réseau est de l'ordre de 130 Nm<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>. Une panoplie regroupant plusieurs vannes et électrovannes de sécurité ainsi qu'un détendeur permet de réguler en toute sécurité l'injection du gaz naturel (voir figure A4.7). Par sécurité, elle est raccordée au système d'injection d'air de postcombustion pour permettre le balayage du gaz naturel résiduel. Le refroidissement du système d'injection de gaz naturel est indépendant du procédé de fonctionnement du four et est mis en route avant allumage du brûleur.

L'alimentation du système d'injection d'air de postcombustion se fait par des compresseurs Crépelle. Ces derniers délivrent de l'air sec sous une pression de 6 à 6,5 bars. L'air est détendu par un régulateur de détente muni d'une commande pilote avant stockage

dans un ballon (voir figure A4.7). Ce dernier équipé de deux manostats de sécurité (un manostat B pour limiter la pression maximale à 6 bars et un autre A pour assurer la pression minimale de 500 mbar) et d'une vanne de liquidation de purge C permet de réguler l'alimentation en air. Cette régulation est indépendante du procédé de fonctionnement du four et est mise en route avant allumage du brûleur. Les manostats A et B conditionnent par ailleurs l'injection du gaz naturel.

L'injection du gaz se fait après mise en route du brûleur. Avant cette injection, l'air sec des compresseurs alimente non seulement la couronne d'air mais également la couronne de gaz naturel. Cela permet non seulement de refroidir les buses d'injection mais aussi d'éviter le dépôt d'imbrûlés solides et donc l'obstruction des buses. Plusieurs organes de sécurité conditionnent l'injection du gaz notamment la détection de la présence d'une flamme au charbon pulvérisé par une cellule infrarouge et d'une température en amont du système d'injection du gaz supérieure à 700 °C par un thermocouple. La mise en route du reburning entraîne l'ouverture de deux électrovannes A et B de la panoplie de gaz, la fermeture de l'électrovanne d'évent C et de l'électrovanne D de balayage en air sec. L'électrovanne A de gaz est temporisée à l'ouverture : la pression du gaz naturel doit être au minimum de 50 mbar. Le cas contraire entraîne l'arrêt de l'injection du gaz par la fermeture des deux électrovannes A et B, l'ouverture de l'électrovanne C d'évent et de l'électrovanne D de balayage en air sec.

La température de l'eau à l'entrée et à la sortie de la couronne de gaz, la température du gaz et de l'air à l'entrée des deux couronnes sont également mesurées par des thermocouples. Par ailleurs, des manomètres permettent de connaître la pression du gaz et de l'air à l'entrée des deux couronnes d'injection.

L'arrêt des essais de reburning entraîne l'arrêt de l'injection de gaz et donc la fermeture des électrovannes A et B de gaz. Parallèlement, cela entraîne l'ouverture des électrovannes C et D (évent et balayage en air sec).

### I-1-5 Limites de l'installation

Bien que nous disposions d'un débit maximum de gaz naturel de  $130 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ , à une pression de 1 bar assuré par le réseau de G.D.F., la panoplie de gaz et les pertes de charge accumulées par les tuyauteries limitent la pression du gaz à l'entrée du système d'injection. Nous pouvons au maximum injecter le gaz naturel à une pression de 130 mbar. D'après l'équation (A4.1), cette pression équivaut à un débit de  $75 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  de gaz naturel pour un diamètre de buses d'injection de 5 mm.

Pour un débit de charbon principal de  $400 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$  (charbon lorrain avec un P.C.I. humide du charbon de  $32000 \text{ kJ} \cdot \text{kg}^{-1}$ ), la puissance totale délivrée par le brûleur est de 3,5 MWth. L'ajout de  $75 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  de gaz naturel (combustible de reburning avec un P.C.I. de  $33000 \text{ kJ} \cdot \text{Nm}^{-3}$ ) augmente cette puissance de 0,69 kWth, le four délivre alors une puissance totale supérieure à 4 MWth. Pour les essais de reburning au gaz naturel, nous sommes limités à un débit de gaz naturel maximum représentant environ 16 % de la charge thermique totale du four.

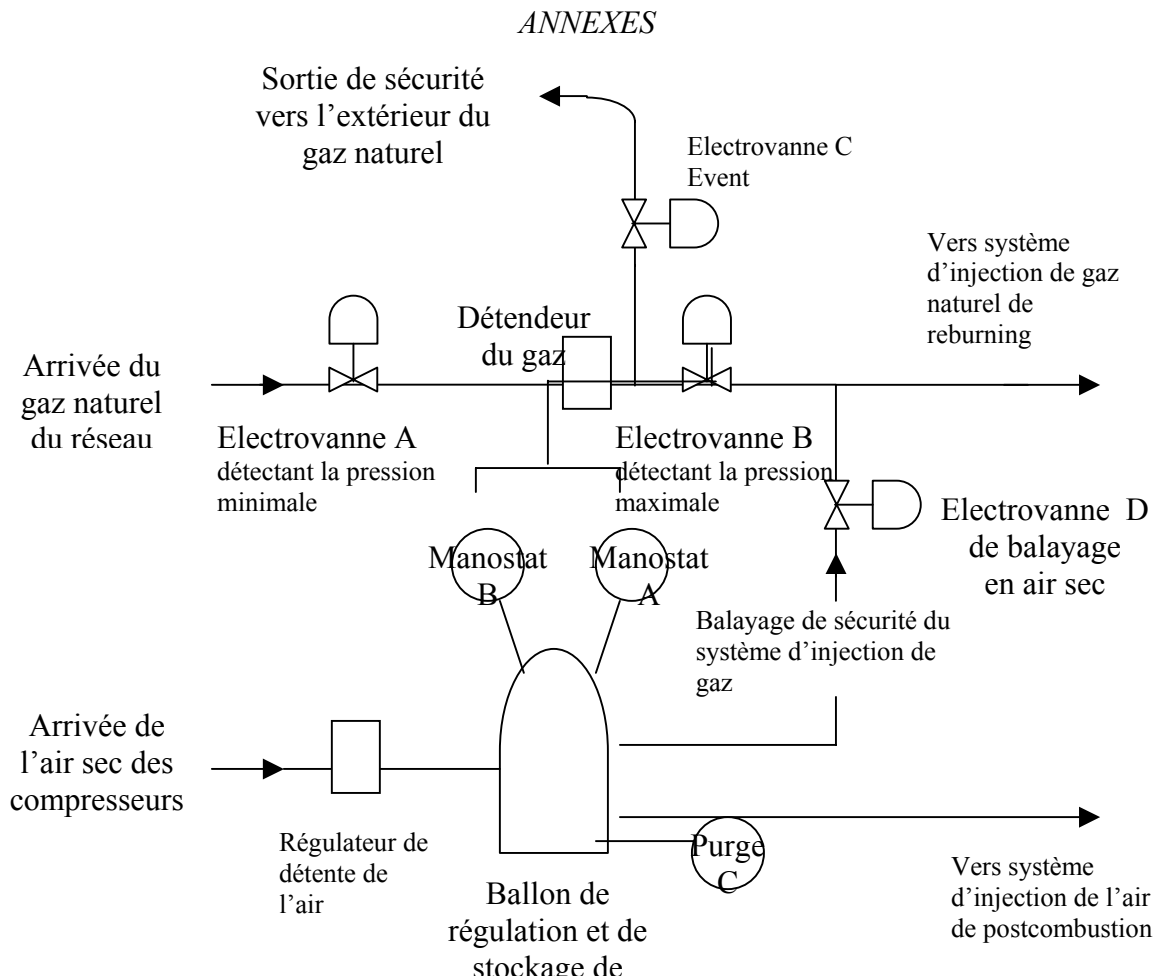


Figure A4.7 : Régulation du débit de gaz naturel et d'air

### I-1-6 Caractéristiques du mélange

La longueur de mélange (distance à partir des buses d'injection pour avoir un mélange complet entre le gaz naturel et les gaz de combustion issus de la zone précédente), le temps de mélange (temps pour avoir un mélange complet) et la pénétration du jet de gaz naturel dans les fumées de combustion d'une vitesse de  $2 \text{ m.s}^{-1}$  ont été évalués à partir des équations proposées par Kolb *et al.* [48] (équations 1.46, 1.47 et 1.48, chapitre III, partie 1).

Pour un débit de gaz naturel de  $80 \text{ Nm}^3.\text{h}^{-1}$ , la longueur de mélange calculée est de  $0,87 \text{ m}$  (pour 8 injecteurs de  $5 \text{ mm}$  de diamètre chacun). Cette longueur est comparable au rayon du four ( $0,75 \text{ m}$ ). Le jet de gaz naturel atteint donc le centre du four. Pour un débit plus faible ( $50 \text{ Nm}^3.\text{h}^{-1}$ ), la longueur de mélange est de  $1,29 \text{ m}$ . Le jet de gaz naturel dépasse donc largement le centre du four. Dans les deux cas, les jets diamétralement opposés de gaz naturel atteignent le centre du four, on peut alors supposer que le mélange du combustible avec les gaz de combustion issus de la zone précédente est efficace. Si la longueur de mélange était très inférieure à  $0,75 \text{ m}$  (rayon du four), le bon mélange du gaz naturel avec les gaz issus de la zone primaire aurait été localisé seulement à proximité des parois.

### I-2 Essais de validation du matériel et essais préliminaires de reburning au gaz naturel

Ces essais ont eu pour but de tester et de mettre à l'épreuve l'installation de reburning au gaz naturel (tests des sécurités, vérification des pressions...). Nous avons vérifié par ailleurs la tenue en température des deux systèmes d'injection (refroidissement à l'eau pour la

couronne de gaz et à l'air pour la couronne d'air de postcombustion). Nous avons également obtenu des résultats préliminaires de réduction des oxydes d'azote ( $\text{NO}_x$ ) avec du gaz naturel comme combustible de reburning et combustible principal.

### I-2-1 Détensionnement du métal des deux couronnes

Avant de les utiliser lors des essais de reburning, nous avons effectué un détensionnement du métal des deux couronnes, à haute température, en faisant varier le débit de charbon principal dans le four du CERCHAR.

Les couronnes d'injection étaient situées à environ 2 m de l'ouvrage du brûleur, l'une derrière l'autre. Les températures ont été mesurées au moyen de thermocouples situé au centre du foyer et à proximité des couronnes.

Cette cuisson (figure A4.8) s'est déroulée de la façon suivante :

- une montée en température progressive de 150 °C/heure jusque 650 °C,
- une stabilisation de la température à 650 °C pendant deux heures,
- une baisse progressive de la température de 150 °C/heure jusqu'à 300 °C.

Globalement, les couronnes de gaz naturel et d'air de postcombustion ont bien résisté aux températures et à l'attaque de la flamme. Les courbes de températures théoriques ont été respectées et le détensionnement a été effectué avec succès.

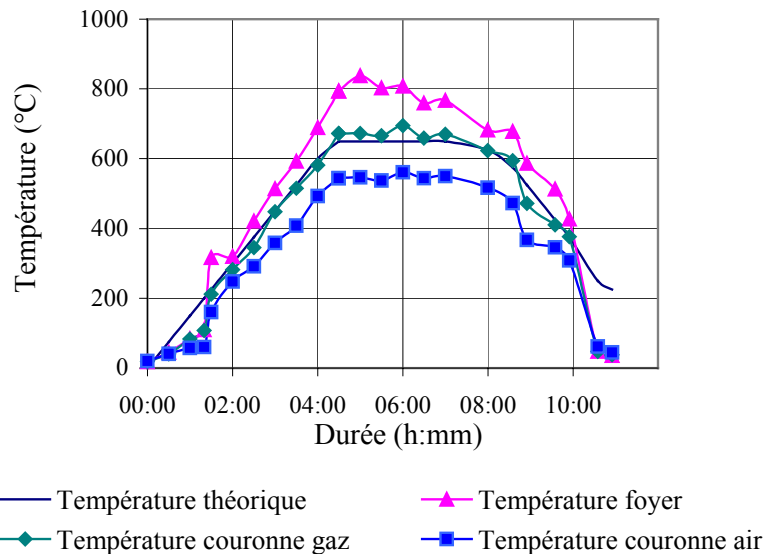


Figure A4.8 : Détensionnement du métal des couronnes

### I-2-2 Tenue en température des couronnes

La sécurité mise en place pour arrêter l'injection du gaz naturel en cas d'arrêt brutal du brûleur a été testée. Le refroidissement des systèmes d'injection a été vérifié (contrôle des températures).

Il en a résulté que :

- le refroidissement des deux couronnes était correct : l'augmentation de la température de l'eau de refroidissement de la couronne de gaz naturel est



de 10 à 15 °C. Par ailleurs, la température du métal de la couronne d'air reste constante à 30°C environ.

- les diverses sécurités (fermeture automatique des vannes, injection d'air...) ont été mises à l'épreuve.

### I-2-3 Essais préliminaires de reburning au gaz naturel

Des essais préliminaires de reburning au gaz naturel ont été effectués. Le combustible principal était du gaz naturel (débit de  $290 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  délivrant 2,6 MW). L'excès d'air en sortie du brûleur était de 10 % et le nombre de *swirl* de 1,64. Nous avons injecté une fraction de 16 % de combustible de reburning (stœchiométrie de reburning égale à 0,93-0,94). Les temps de séjour dans les zones primaire et de reburning étaient tous les deux de 600 ms.

Sans reburning, la teneur en  $\text{NO}_x$  dans les fumées était de 51 ppm ( $96 \text{ mgNO}_2 \cdot \text{Nm}^{-3}$  à 6 % d' $\text{O}_2$ ). Après injection du combustible de reburning, cette teneur a diminué jusqu'à une concentration de 41 ppm ( $72 \text{ mgNO}_2 \cdot \text{Nm}^{-3}$  à 6 % d' $\text{O}_2$ , figure A4.9). Nous obtenions donc une réduction de 25 % des  $\text{NO}_x$ . Néanmoins, cette réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  s'accompagnait d'une augmentation de la concentration en CO : elle était passée de 194 à 430 ppm ( $225$  à  $425 \text{ mg} \cdot \text{Nm}^{-3}$  à 6 % d' $\text{O}_2$ ).

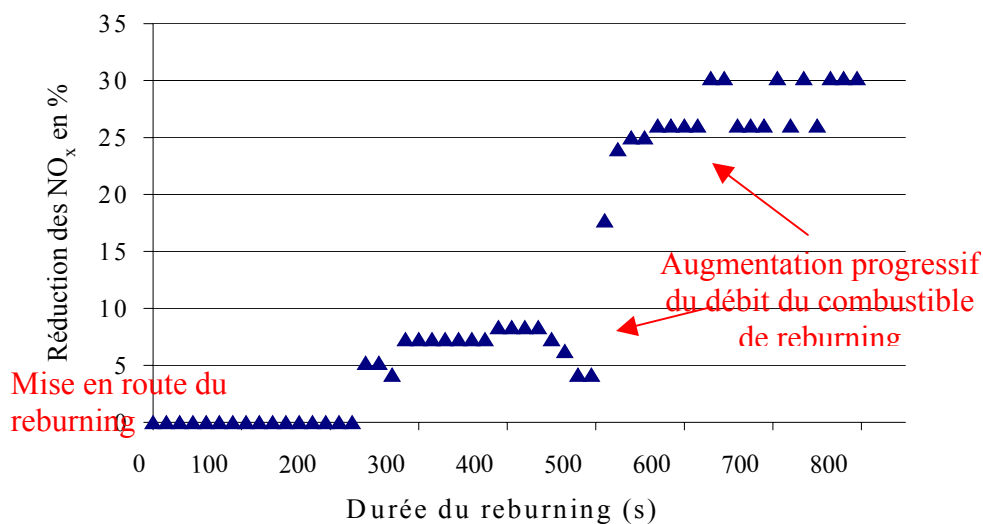


Figure A4.9 : Réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  (combustible primaire et de reburning : gaz naturel)

### I-2-4 Comparaison avec des données issues de la bibliographie

Nos résultats peuvent être comparés à ceux obtenus par Lanier *et al.* [28] qui ont également étudié le reburning avec du gaz naturel comme combustible principal et combustible de reburning sur un pilote de 0,59 MW (tableau A4.1).

Ces essais ont été menés en variant le taux de  $\text{NO}_x$  primaires de 50 à 500 ppm et la stœchiométrie de la zone de reburning de 0,75 à 1,0. Les injecteurs du combustible de reburning ont été élaborés de telle sorte qu'il y ait un rapide mélange entre ce combustible et les gaz issus de la zone primaire.

En diminuant la stœchiométrie de la zone de reburning, Lanier *et al.* [28] ont observé une augmentation de la température et de la teneur en carbone imbrûlé (plus de 1 %). La

concentration en  $N_2O$  était de moins de 1 ppm. Pour une stœchiométrie de 0,86, 45 % de réduction des émissions de  $NO_x$  a été obtenu (figure A4.10).

Bien que la taille du pilote et le temps de séjour dans la zone de reburning diffèrent entre les deux essais, il est intéressant de comparer les résultats obtenus. Pour la même stœchiométrie, Lanier *et al.* ont obtenu 25 % de réduction avec une teneur en  $NO_x$  primaires de 112 ppm. Nous obtenons 25 à 30 % de réduction des émissions de  $NO_x$  pour une teneur en  $NO_x$  primaires de 95 ppm.

	Essais de Lanier	Essais préliminaires
Puissance de l'installation	0.59 MW	2.7 MW
Diamètre intérieur	0.6 m	1.5 m
Longueur	3 m	8 m
Excès d'air de la flamme primaire	7 %	10 %
Position de l'injection de gaz	1.02 m	2 m
Position de l'injection d'air	1.62 m	4 m
Température au lieu d'injection du gaz	1127°C (centre) 877°C (paroi)	1000°C (entre paroi et centre)
Temps de séjour (zone de reburning)	50-75 ms	600 ms

Tableau A4.1 : Comparaison des résultats

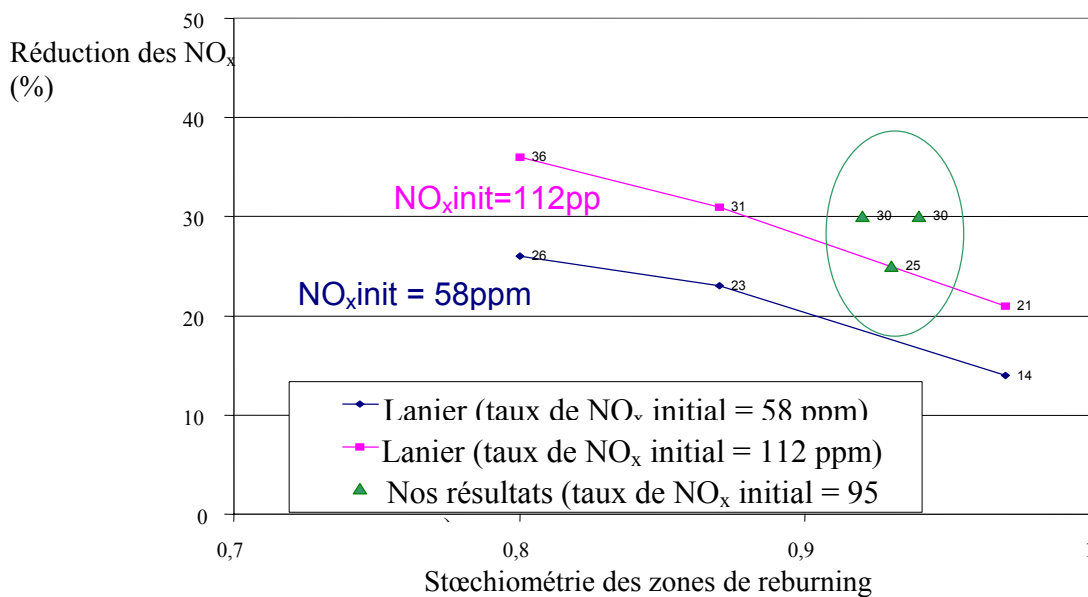


Figure A4.10 : Comparaison des réductions des émissions de  $NO_x$  en fonction de la stœchiométrie de la zone de reburning et de la teneur en  $NO_x$  initial ( $NO_x$  init)

## II - Résultats pour une température de 1300°C à l'entrée de la zone de reburning

Réglage du brûleur	Réglage 6			Réglage 7			Réglage 8		
Débit de gaz naturel de reburning ( $\text{kg.h}^{-1}$ )	34	41	54	34	41	54	34	41	54
Vitesse d'injection du gaz naturel ( $\text{m.s}^{-1}$ )	72,5	87,4	115,1	72,5	87,4	115,1	72,5	87,4	115,1
Pression entrée couronne de gaz naturel (bar)	0,052	0,068	0,125	0,052	0,068	0,125	0,052	0,068	0,125
Stœchiométrie de reburning	0,935	0,921	0,881	0,942	0,925	0,887	0,936	0,933	0,886
Temps de séjour zone de reburning (ms)	159	159	158	159	159	158	159	159	158
Temps de mélange du gaz naturel (ms) *	373	213	94	373	213	94	373	213	94
Longueur de mélange du gaz naturel (m) *	1,383	1,149	0,876	1,383	1,149	0,876	1,383	1,149	0,876
Pénétration du jet du gaz naturel (m) *	0,152	0,183	0,241	0,152	0,183	0,241	0,152	0,183	0,241
Débit d'air de postcombustion ( $\text{kg.h}^{-1}$ )	798	1054	1241	808	1073	1226	795	1063	1226
Stœchiométrie de la zone de postcombustion	1,111	1,143	1,139	1,113	1,147	1,136	1,11	1,145	1,136
Pression entrée couronne d'air (bar)	0,161	0,281	0,39	0,165	0,291	0,38	0,16	0,286	0,38
Vitesse d'injection de l'air de postcombustion ( $\text{m.s}^{-1}$ )	122	161	189	123	164	187	121	162	187
Teneur en $\text{NO}_x$ (ppm)	279	297	268	384	384	342	468	452	402
Teneur en $\text{NO}_x$ ( $\text{mg.Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	487	533	487	655	680	607	782	801	702
Teneur en CO (ppm)	299	274	324	199	224	224	175	224	225
Teneur en CO ( $\text{mg.Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	318	300	358	207	242	242	178	242	239
Teneur en $\text{O}_2$ (%)	3,36	3,86	4,02	2,95	3,61	3,62	2,57	3,61	3,35
Teneur en $\text{CO}_2$ (%)	14,80	14,00	13,60	15,30	14,30	14,10	15,60	14,40	14,40
Réduction des $\text{NO}_x$ par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	21	14	21	16	12	22	16	14	24
Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	50	42	69	20	40	40	34	82	80
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% absolu)	3,95	11,37	8,77	7,19	8,4	13,36	9,15	14,28	11,29
Taux de combustion (%) **	87,1	81,27	83,68	88,14	87,47	84,08	89,01	86,1	87,9

Tableau A4.2 : Temps de séjour de la zone de reburning de 160 ms

\* voir relation (1.46), (1.47) et (1.48), chapitre III, partie I

\*\* voir relation (A3.1), annexe 3

ANNEXES

Réglage du brûleur	Réglage 6			Réglage 7			Réglage 8		
Débit de gaz naturel de reburning ( $\text{kg.h}^{-1}$ )	34	42	59	34	42	59	34	42	59
Vitesse d'injection du gaz naturel ( $\text{m.s}^{-1}$ )	72,5	89,53	126	72,5	89,53	126	72,5	89,53	126
Pression entrée couronne de gaz naturel (bar)	0,05	0,067	0,125	0,05	0,067	0,125	0,05	0,067	0,125
Stœchiométrie de reburning	0,941	0,916	0,879	0,948	0,918	0,873	0,941	0,92	0,874
Temps de séjour zone de reburning (ms)	477	476	473	477	476	473	477	476	473
Temps de mélange du gaz naturel (ms)	373	199	72	373	199	72	373	199	72
Longueur de mélange du gaz naturel (m)	1,383	1,122	0,803	1,383	1,122	0,803	1,383	1,122	0,803
Pénétration du jet du gaz naturel (m)	0,152	0,187	0,263	0,152	0,187	0,263	0,152	0,187	0,263
Débit d'air de postcombustion ( $\text{kg.h}^{-1}$ )	821	1033	1235	828	1041	1257	834	1041	1223
Stœchiométrie de la zone de postcombustion	1,121	1,143	1,127	1,123	1,142	1,131	1,124	1,142	1,124
Pression entrée couronne d'air (bar)	0,171	0,27	0,386	0,173	0,274	0,4	0,176	0,274	0,378
Vitesse d'injection de l'air de postcombustion ( $\text{m.s}^{-1}$ )	126	158	188	126	159	191	127	159	187
Teneur en $\text{NO}_x$ (ppm)	250 +/- 8	236 +/- 6	202 +/- 5	343 +/- 1	312 +/- 4	258 +/- 5	401 +/- 6	375 +/- 6	297 +/- 8
Teneur en $\text{NO}_x$ ( $\text{mg.Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	447 +/- 12	437 +/- 9	385 +/- 7	605 +/- 1	562 +/- 6	467 +/- 7	701 +/- 9	670 +/- 9	529 +/- 12
Teneur en CO (ppm)	314 +/- 41	347 +/- 43	457 +/- 57	141 +/- 28	161 +/- 11	184 +/- 22	143 +/- 9	134 +/- 12	142 +/- 9
Teneur en CO ( $\text{mg.Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	342 +/- 37	390 +/- 38	529 +/- 51	152 +/- 25	176 +/- 10	202 +/- 20	152 +/- 8	146 +/- 11	154 +/- 8
Teneur en $\text{O}_2$ (%)	3,76 +/- 0,1	4,34 +/- 0,1	4,81 +/- 0,1	3,56 +/- 0,1	3,9 +/- 0,1	3,96 +/- 0,1	3,37 +/- 0,1	3,77 +/- 0,1	3,71 +/- 0,1
Teneur en $\text{CO}_2$ (%)	14,30	13,60	12,80	14,60	14,10	13,90	14,70	14,20	14,00
Réduction des $\text{NO}_x$ par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	28	29	38	22	28	40	24	28	43
Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	61	84	150	-12	2	17	14	10	16
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% absolu)	9,36	12,47	13,52	6,49	13,45	14,35	15,78	13,39	16,45
Taux de combustion (%)	83,18	80,08	78,84	88,5	84,01	83,26	85,05	86,67	84,54

Tableau A4.3 : Temps de séjour de la zone de reburning de 475 ms

ANNEXES

Réglage du brûleur	Réglage 6			Réglage 7			Réglage 8		
Débit de gaz naturel de reburning ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	36	43	60	36	43	60	36	43	60
Vitesse d'injection du gaz naturel ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	76,74	91,66	127,9	76,74	91,66	127,9	76,74	91,66	127,9
Pression entrée couronne de gaz naturel (bar)	0,052	0,068	0,126	0,052	0,068	0,126	0,052	0,068	0,126
Stœchiométrie de reburning	0,931	0,919	0,874	0,942	0,914	0,876	0,93	0,909	0,87
Temps de séjour zone de reburning (ms)	795	793	789	795	793	789	795	793	789
Temps de mélange du gaz naturel (ms)	314	185	69	314	185	69	314	185	69
Longueur de mélange du gaz naturel (m)	1,307	1,096	0,79	1,307	1,096	0,79	1,307	1,096	0,79
Pénétration du jet du gaz naturel (m)	0,161	0,192	0,268	0,161	0,192	0,268	0,161	0,192	0,268
Débit d'air de postcombustion ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	831	1033	1249	843	1041	1226	831	1051	1218
Stœchiométrie de la zone de postcombustion	1,112	1,133	1,122	1,115	1,134	1,118	1,112	1,136	1,116
Pression entrée couronne d'air (bar)	0,175	0,27	0,395	0,18	0,274	0,38	0,175	0,28	0,375
Vitesse d'injection de l'air de postcombustion ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	127	158	191	129	159	187	127	160	186
Teneur en $\text{NO}_x$ (ppm)	237 +/- 7	222 +/- 3	170 +/- 7	324 +/- 12	290 +/- 6	214 +/- 10	337 +/- 14	322 +/- 12	233 +/- 6
Teneur en $\text{NO}_x$ ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	433 +/- 11	402 +/- 4	312 +/- 10	578 +/- 18	519 +/- 9	391 +/- 14	592 +/- 21	580 +/- 18	420 +/- 9
Teneur en CO (ppm)	406 +/- 49	354 +/- 28	642 +/- 103	170 +/- 15	167 +/- 13	242 +/- 21	232 +/- 37	181 +/- 44	271 +/- 37
Teneur en CO ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	451 +/- 44	390 +/- 25	718 +/- 92	185 +/- 13	182 +/- 12	270 +/- 19	248 +/- 33	198 +/- 39	298 +/- 33
Teneur en $\text{O}_2$ (%)	3,73 +/- 0,1	3,74 +/- 0,1	4,84 +/- 0,4	3,67 +/- 0,1	3,80 +/- 0,1	4,02 +/- 0,1	3,56 +/- 0,1	3,97 +/- 0,1	4,06 +/- 0,1
Teneur en $\text{CO}_2$ (%)	14,60	14,30	12,90	14,20	14,30	13,90	14,60	14,00	13,70
Réduction des $\text{NO}_x$ par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	30	35	50	26	33	50	36	37	55
Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	113	84	239	7	5	56	86	49	124
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% absolu)	12,3	12,78	12,58	13,92	15,79	15,92	17,1	20,33	16,17
Taux de combustion (%)	80,27	79,73	79,96	83,62	81,93	81,8	84,03	81,05	84,76

Tableau A4.4 : Temps de séjour de la zone de reburning de 795 ms

## III - Résultats pour une température de 1200°C à l'entrée de la zone de reburning

Réglage de la flamme du brûleur	Réglage 6			Réglage 7			Réglage 8		
Débit de gaz naturel de reburning ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	35,5	43,2	59,5	35,5	43,2	59,5	35,5	43,2	59,5
Vitesse d'injection du gaz naturel ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	75,67	92,08	127	75,67	92,08	127	75,67	92,08	127
Pression entrée couronne de gaz naturel (bar)	0,05	0,071	0,125	0,05	0,071	0,125	0,05	0,069	0,125
Stœchiométrie de reburning	0,934	0,916	0,876	0,948	0,915	0,868	0,932	0,907	0,87
Temps de séjour zone de reburning (ms)	170	169	168	170	169	168	170	169	168
Temps de mélange du gaz naturel (ms)	297	166	64	297	166	64	297	166	64
Longueur de mélange du gaz naturel (m)	1,282	1,056	0,771	1,282	1,056	0,771	1,282	1,056	0,771
Pénétration du jet du gaz naturel (m)	0,175	0,213	0,293	0,175	0,213	0,293	0,175	0,213	0,293
Débit d'air de postcombustion ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	831	1071	1241	831	1051	1241	831	1042	1249
Stœchiométrie de la zone de postcombustion	1,116	1,142	1,124	1,116	1,137	1,124	1,116	1,135	1,126
Pression entrée couronne d'air (bar)	0,175	0,29	0,39	0,175	0,28	0,39	0,175	0,275	0,395
Vitesse d'injection de l'air de postcombustion ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	127	163	189	127	160	189	127	159	191
Teneur en $\text{NO}_x$ (ppm)	268 $\pm$ 6	259 $\pm$ 6	242 $\pm$ 3	369 $\pm$ 4	341 $\pm$ 5	311 $\pm$ 4	419 $\pm$ 3	403 $\pm$ 5	361 $\pm$ 3
Teneur en $\text{NO}_x$ ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	492 $\pm$ 9	493 $\pm$ 9	459 $\pm$ 5	644 $\pm$ 6	640 $\pm$ 7	579 $\pm$ 6	725 $\pm$ 4	714 $\pm$ 7	660 $\pm$ 5
Teneur en CO (ppm)	146 $\pm$ 19	179 $\pm$ 13	222 $\pm$ 19	97 $\pm$ 6	110 $\pm$ 8	135 $\pm$ 7	94 $\pm$ 8	98 $\pm$ 4	113 $\pm$ 8
Teneur en CO ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	163 $\pm$ 17	208 $\pm$ 12	257 $\pm$ 17	103 $\pm$ 5	126 $\pm$ 7	153 $\pm$ 6	99 $\pm$ 7	106 $\pm$ 4	126 $\pm$ 7
Teneur en $\text{O}_2$ (%)	4,2 $\pm$ 0,3	4,82 $\pm$ 0,1	4,78 $\pm$ 0,1	3,36 $\pm$ 0,1	4,6 $\pm$ 0,5	4,46 $\pm$ 0,1	3,2 $\pm$ 0,1	3,62 $\pm$ 0,1	4,16 $\pm$ 0,1
Teneur en $\text{CO}_2$ (%)	14,14 $\pm$ 0,4	13,49 $\pm$ 0,1	13,24 $\pm$ 0,1	15,19 $\pm$ 0,1	13,86 $\pm$ 0,4	13,64 $\pm$ 0,1	15,29 $\pm$ 0,1	14,8 $\pm$ 0,1	13,99 $\pm$ 0,1
Réduction des $\text{NO}_x$ par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	20	20	26	17	18	25	22	23	29
Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	-23	-2	21	-40	-27	-12	-26	-20	-5
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% absolu)	4,71	10,74	8,96	5,32	7,86	12,56	5,55	7,90	13,00
Taux de combustion (%)	86,63	81,90	83,52	89,08	87,77	84,71	90,59	89,59	86,91

Tableau A4.5 : Temps de séjour de la zone de reburning de 170 ms

ANNEXES

Réglage de la flamme du brûleur	Réglage 6			Réglage 7			Réglage 8		
Débit de gaz naturel de reburning ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	36,1	43,2	58,5	36,1	43,2	58,5	36,1	43,2	58,5
Vitesse d'injection du gaz naturel ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	76,95	92,09	124,7	76,95	92,09	124,7	76,95	92,09	124,7
Pression entrée couronne de gaz naturel (bar)	0,05	0,069	0,122	0,05	0,069	0,122	0,05	0,069	0,122
Stoéchiométrie de reburning	0,943	0,91	0,872	0,93	0,907	0,879	0,935	0,92	0,879
Temps de séjour zone de reburning (ms)	509	508	506	509	508	506	509	508	506
Temps de mélange du gaz naturel (ms)	282	166	67	282	166	67	273	166	67
Longueur de mélange du gaz naturel (m)	1,261	1,056	0,784	1,261	1,056	0,784	1,247	1,056	0,784
Pénétration du jet du gaz naturel (m)	0,178	0,213	0,288	0,178	0,213	0,288	0,18	0,213	0,288
Débit d'air de postcombustion ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	831	1051	1209	866	1042	1267	831	1051	1183
Stoéchiométrie de la zone de postcombustion	1,124	1,148	1,131	1,132	1,146	1,132	1,123	1,148	1,125
Pression entrée couronne d'air (bar)	0,175	0,28	0,37	0,19	0,275	0,375	0,175	0,28	0,354
Vitesse d'injection de l'air de postcombustion ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	127	160	185	132	159	186	127	160	181
Teneur en $\text{NO}_x$ (ppm)	237 +/- 5	217 +/- 3	187 +/- 4	307 +/- 5	290 +/- 4	243 +/- 5	310 +/- 8	310 +/- 5	269 +/- 7
Teneur en $\text{NO}_x$ ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	438 +/- 8	402 +/- 4	344 +/- 6	558 +/- 8	522 +/- 6	437 +/- 7	553 +/- 12	551 +/- 7	483 +/- 10
Teneur en CO (ppm)	172 +/- 20	262 +/- 16	469 +/- 46	100 +/- 8	140 +/- 15	233 +/- 24	134 +/- 20	175 +/- 11	268 +/- 62
Teneur en CO ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	193 +/- 18	295 +/- 14	526 +/- 41	111 +/- 7	154 +/- 13	255 +/- 21	145 +/- 18	189 +/- 10	293 +/- 55
Teneur en $\text{O}_2$ (%)	4,32 +/- 0,1	4,37 +/- 0,1	4,28 +/- 0,1	4,04 +/- 0,1	3,9 +/- 0,1	3,89 +/- 0,1	3,71 +/- 0,2	3,66 +/- 0,1	3,84 +/- 0,1
Teneur en $\text{CO}_2$ (%)	14,08 +/- 0,1	13,64 +/- 0,1	14,2 +/- 0,1	14,37 +/- 0,1	14,14 +/- 0,1	14,61 +/- 0,1	14,61 +/- 0,2	14,19 +/- 0,1	14,8 +/- 0,1
Réduction des $\text{NO}_x$ par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	29	35	44	28	33	44	40	41	48
Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	-9	39	148	-36	-11	47	9	42	120
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% absolu)	1,48	6,35	8	3,46	7,97	7,75	5,04	8,28	10,94
Taux de combustion (%)	88,47	85,54	84,31	89,93	87,71	87,83	90,79	89,42	88,09

Tableau A4.6 : Temps de séjour de la zone de reburning de 510 ms

ANNEXES

Réglage de la flamme du brûleur	Réglage 6			Réglage 7			Réglage 8		
Débit de gaz naturel de reburning ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	37	44	59,5	37	44	59,5	37	44	59,5
Vitesse d'injection du gaz naturel ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	78,9	93,8	126,8	78,9	93,8	126,8	78,9	93,8	126,8
Pression entrée couronne de gaz naturel (bar)	0,05	0,069	0,12	0,05	0,069	0,12	0,05	0,069	0,12
Stoichiométrie de reburning	0,937	0,911	0,875	0,932	0,91	0,867	0,925	0,915	0,871
Temps de séjour zone de reburning (ms)	849	847	842	849	847	842	849	847	842
Temps de mélange du gaz naturel (ms)	263	157	64	263	157	64	263	157	64
Longueur de mélange du gaz naturel (m)	1,231	1,037	0,771	1,231	1,037	0,771	1,231	1,037	0,771
Pénétration du jet du gaz naturel (m)	0,182	0,217	0,293	0,182	0,217	0,293	0,182	0,217	0,293
Débit d'air de postcombustion ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	831	1042	1209	831	1042	1234	832	1060	1217
Stoichiométrie de burnout	1,118	1,14	1,125	1,118	1,14	1,13	1,118	1,144	1,126
Pression entrée couronne (bar)	0,175	0,275	0,37	0,175	0,275	0,385	0,175	0,284	0,375
Vitesse d'injection ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	127	159	185	127	159	188	127	162	185
Teneur en $\text{NO}_x$ (ppm)	169 +/- 8	161 +/- 5	141 +/- 5	208 +/- 4	181 +/- 4	157 +/- 6	205 +/- 4	201 +/- 3	181 +/- 4
Teneur en $\text{NO}_x$ ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	309 +/- 12	291 +/- 8	259 +/- 8	371 +/- 6	324 +/- 6	287 +/- 9	361 +/- 6	362 +/- 5	326 +/- 6
Teneur en CO (ppm)	286 +/- 54	380 +/- 71	674 +/- 115	339 +/- 174	373 +/- 43	683 +/- 115	765 +/- 71	542 +/- 46	1247 +/- 102
Teneur en CO ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	318 +/- 48	419 +/- 63	754 +/- 103	369 +/- 155	406 +/- 38	761 +/- 103	819 +/- 63	594 +/- 41	1371 +/- 91
Teneur en $\text{O}_2$ (%)	4,12 +/- 0,1	3,99 +/- 0,2	4,24 +/- 0,3	3,75 +/- 0,2	3,76 +/- 0,1	4,16 +/- 0,2	3,48 +/- 0,1	3,9 +/- 0,1	3,94 +/- 0,1
Teneur en $\text{CO}_2$ (%)	14,20 +/- 0,1	14,28 +/- 0,2	13,79 +/- 0,3	14,61 +/- 0,2	14,51 +/- 0,2	13,82 +/- 0,2	14,80 +/- 0,1	14,39 +/- 0,1	14,06 +/- 0,1
Réduction des $\text{NO}_x$ par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	50	53	58	52	58	63	61	61	65
Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	50	98	256	113	135	340	516	347	931
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% absolu)	4,12	5,94	4,13	5,84	4,98	8,08	11,57	2,82	5,57
Taux de combustion (%)	86,99	85,82	86,99	88,83	89,25	87,65	87,75	91,60	90,58

Tableau A4.7 : Temps de séjour de la zone de reburning de 850 ms



## IV - Résultats pour une température de 1100°C à l'entrée de la zone de reburning

Réglage du brûleur	Réglage 6			Réglage 7			Réglage 8		
Débit de gaz naturel de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	37,5	44,5	59,5	37,5	44,5	59,5	37,5	44,5	59,5
Vitesse d'injection du gaz naturel (m.s <sup>-1</sup> )	79,9	94,9	126,8	79,9	94,9	126,8	79,9	94,9	126,8
Pression entrée couronne de gaz naturel (bar)	0,05	0,068	0,121	0,05	0,068	0,121	0,05	0,068	0,121
Stoéchiométrie de reburning	0,93	0,908	0,873	0,937	0,911	0,869	0,938	0,912	0,88
Temps de séjour zone de reburning (ms)	182	182	181	182	182	181	182	182	181
Temps de mélange du gaz naturel (ms)	227	136	58	227	136	58	227	136	58
Longueur de mélange du gaz naturel (m)	1,172	0,99	0,744	1,172	0,99	0,744	1,172	0,99	0,744
Pénétration du jet du gaz naturel (m)	0,205	0,243	0,325	0,205	0,243	0,325	0,205	0,243	0,325
Débit d'air de postcombustion (kg.h <sup>-1</sup> )	840	1054	1241	840	1054	1241	840	1042	1228
Stoéchiométrie de burnout	1,113	1,113	1,113	1,136	1,136	1,133	1,126	1,126	1,123
Pression entrée couronne d'air (bar)	0,18	0,28	0,39	0,18	0,28	0,39	0,18	0,28	0,382
Vitesse d'injection de l'air de postcombustion (m.s <sup>-1</sup> )	129	161	190	129	161	190	129	159	188
Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	278 +/- 3	257 +/- 3	251 +/- 3	376 +/- 5	353 +/- 5	336 +/- 6	423 +/- 2	408 +/- 3	375 +/- 3
Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	500 +/- 5	490 +/- 5	464 +/- 4	663 +/- 7	652 +/- 8	606 +/- 9	743 +/- 3	735 +/- 5	674 +/- 4
Teneur en CO (ppm)	200 +/- 34	1187 +/- 259	2243 +/- 116	117 +/- 19	381 +/- 72	934 +/- 179	151 +/- 10	551 +/- 146	1098 +/- 97
Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	219 +/- 30	1375 +/- 231	2526 +/- 104	126 +/- 17	428 +/- 64	1027 +/- 160	161 +/- 9	604 +/- 130	1200 +/- 87
Teneur en O <sub>2</sub> (%)	3,86 +/- 0,1	4,82 +/- 0,1	4,35 +/- 0,1	3,55 +/- 0,1	4,3 +/- 0,1	3,94 +/- 0,1	3,47 +/- 0,1	3,91 +/- 0,1	3,85 +/- 0,1
Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,26 +/- 0,1	12,88 +/- 0,2	13,1 +/- 0,1	14,67 +/- 0,1	13,56 +/- 0,1	13,65 +/- 0,1	14,62 +/- 0,1	14 +/- 0,1	13,72 +/- 0,1
Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	19	21	25	15	16	22	20	21	27
Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	3	549	1092	-27	147	494	21	354	802
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% absolu)	4,44	6,13	7,36	4,09	6,13	8,87	7,01	8,02	10,37
Taux de combustion (%)	86,8	85,69	84,8	89,65	88,69	87,19	89,98	89,54	88,40

Tableau A4.8 : Temps de séjour de la zone de reburning de 180 ms

ANNEXES

Régages du brûleur	Réglage 6			Réglage 7			Réglage 8		
Débit de gaz naturel de reburning ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	35,5	45	59,5	35,5	45	59,5	35,5	45	59,5
Vitesse d'injection ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	75,7	95,9	126,8	75,7	95,9	126,8	75,7	95,9	126,8
Pression entrée couronne (bar)	0,05	0,069	0,119	0,05	0,069	0,119	0,05	0,069	0,119
Stoichiométrie de reburning	0,94	0,909	0,866	0,932	0,907	0,877	0,935	0,908	0,875
Temps de séjour zone de reburning (ms)	547	545	542	547	545	542	547	545	542
Temps de mélange (ms)	267	132	58	267	132	58	267	132	58
Longueur de mélange (m)	1,238	0,979	0,744	1,238	0,979	0,744	1,238	0,979	0,744
Pénétration du jet (m)	0,194	0,246	0,325	0,194	0,246	0,325	0,194	0,246	0,325
Débit d'air de postcombustion ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	840	1034	1224	866	1054	1215	866	1054	1202
Stoichiométrie de burnout	1,124	1,129	1,129	1,134	1,138	1,138	1,126	1,124	1,122
Pression entrée couronne (bar)	0,179	0,271	0,379	0,19	0,281	0,371	0,19	0,281	0,366
Vitesse d'injection ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	128	158	187	132	161	185	132	161	184
Teneur en $\text{NO}_x$ (ppm)	227 +/- 3	215 +/- 5	191 +/- 3	304 +/- 3	295 +/- 3	256 +/- 5	378 +/- 4	355 +/- 3	305 +/- 5
Teneur en $\text{NO}_x$ ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6% d' $\text{O}_2$ )	412 +/- 4	398 +/- 7	349 +/- 4	540 +/- 4	536 +/- 4	459 +/- 7	668 +/- 6	643 +/- 4	552 +/- 7
Teneur en CO (ppm)	484 +/- 85	706 +/- 112	1165 +/- 94	539 +/- 88	570 +/- 43	1171 +/- 205	694 +/- 90	872 +/- 83	1429 +/- 112
Teneur en CO ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6% d' $\text{O}_2$ )	534 +/- 76	796 +/- 100	1297 +/- 84	584 +/- 79	630 +/- 38	1276 +/- 183	747 +/- 80	962 +/- 74	1574 +/- 100
Teneur en $\text{O}_2$ (%)	4,01 +/- 0,1	4,37 +/- 0,1	4,16 +/- 0,1	3,68 +/- 0,1	4,03 +/- 0,1	3,8 +/- 0,1	3,59 +/- 0,1	4 +/- 0,1	3,98 +/- 0,1
Teneur en $\text{CO}_2$ (%)	14,08 +/- 0,1	13,79 +/- 0,1	13,7 +/- 0,1	14,52 +/- 0,1	14,07 +/- 0,1	14,16 +/- 0,1	14,57 +/- 0,2	14,07 +/- 0,1	13,94 +/- 0,1
Réduction des $\text{NO}_x$ par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	33	36	44	30	31	41	28	31	40
Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	152	275	512	238	264	638	462	623	1083
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% absolu)	5,68	5,91	7,13	8,05	10,56	4,97	7,98	9,68	9,61
Taux de combustion (%)	86	85,84	84,97	87,67	86,13	89,25	89,55	88,75	88,78

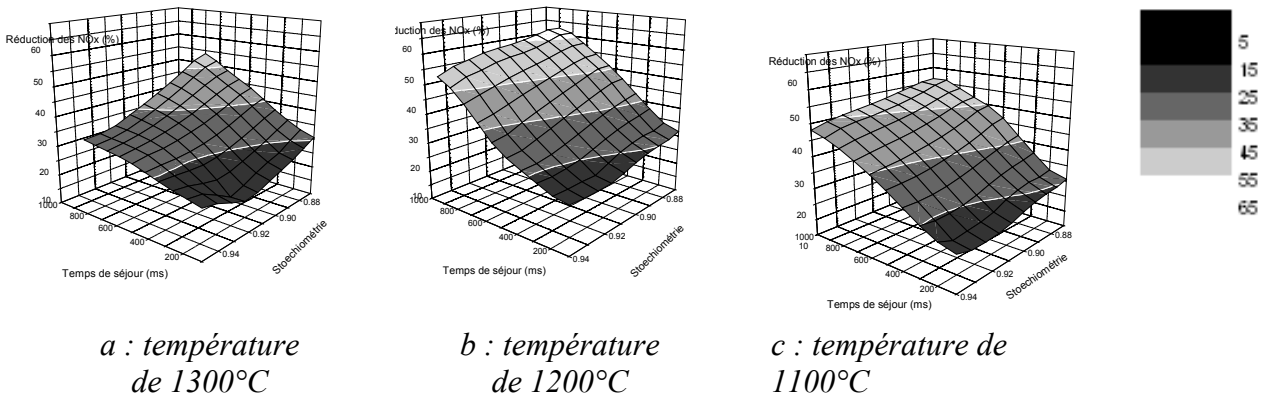
Tableau A4.9 : Temps de séjour de la zone de reburning de 545 ms

ANNEXES

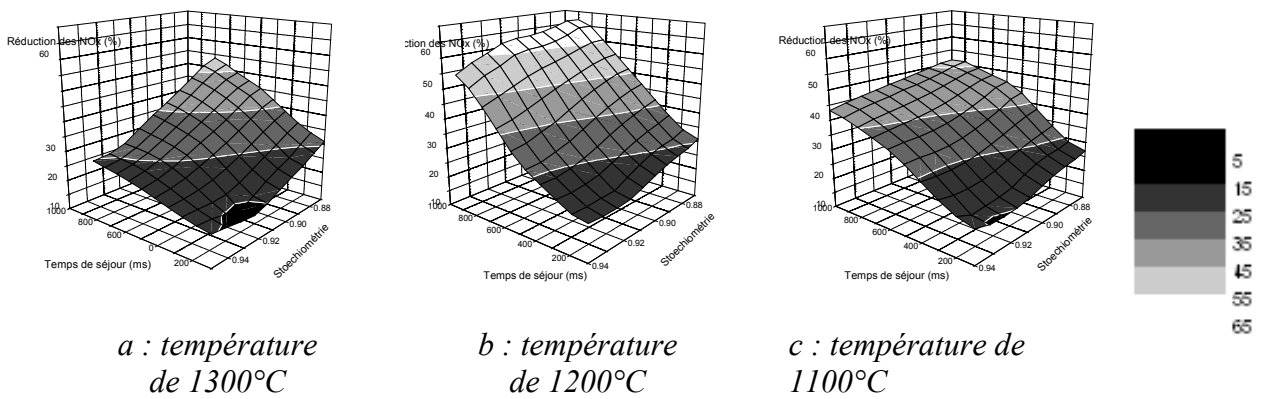
Réglage du brûleur	Réglage 6			Réglage 7			Réglage 8		
Débit de gaz naturel de reburning ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	38	45,5	60	38	45,5	60	38	45,5	60
Vitesse d'injection du gaz naturel ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	81	97	128	81	97	128	81	97	128
Pression entrée couronne de gaz naturel (bar)	0,05	0,069	0,119	0,05	0,069	0,119	0,05	0,069	0,119
Stoéchiométrie de reburning	0,93	0,909	0,872	0,922	0,908	0,87	0,926	0,904	0,866
Temps de séjour zone de reburning (ms)	910	908	903	910	908	903	910	908	903
Temps de mélange du gaz naturel (ms)	218	128	56	218	128	56	218	128	56
Longueur de mélange du gaz naturel (m)	1,157	0,969	0,738	1,157	0,969	0,738	1,157	0,969	0,738
Pénétration du jet du gaz naturel (m)	0,208	0,249	0,328	0,208	0,249	0,328	0,208	0,249	0,328
Débit d'air de postcombustion ( $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ )	866	1060	1215	840	1073	1241	853	1060	1215
Stoéchiométrie de burnout	1,118	1,135	1,12	1,113	1,138	1,126	1,116	1,135	1,12
Pression entrée couronne d'air (bar)	0,19	0,284	0,374	0,179	0,291	0,39	0,184	0,284	0,374
Vitesse d'injection de l'air de postcombustion ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	132	162	186	128	164	190	130	162	186
Teneur en $\text{NO}_x$ (ppm)	188 +/- 6,1	178 +/- 3,4	159 +/- 6,8	258 +/- 2,7	246 +/- 4,1	223 +/- 3,4	312 +/- 11	295 +/- 5,4	276 +/- 3,4
Teneur en $\text{NO}_x$ ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	345 +/- 9	337 +/- 5	300 +/- 10	471 +/- 4	455 +/- 6	414 +/- 5	572 +/- 16	552 +/- 8	517 +/- 5
Teneur en CO (ppm)	668 +/- 140	792 +/- 80	1759 +/- 191	845 +/- 107	1110 +/- 114	1968 +/- 194	1161 +/- 311	1344 +/- 154	2331 +/- 211
Teneur en CO ( $\text{mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 6 % d' $\text{O}_2$ )	748 +/- 126	913 +/- 72	2021 +/- 171	938 +/- 96	1251 +/- 102	2227 +/- 174	1297 +/- 280	1529 +/- 138	2659 +/- 188
Teneur en $\text{O}_2$ (%)	4,25 +/- 0,1	4,73 +/- 0,1	4,68 +/- 0,1	4,1 +/- 0,1	4,37 +/- 0,1	4,43 +/- 0,1	4,21 +/- 0,2	4,52 +/- 0,1	4,56 +/- 0,1
Teneur en $\text{CO}_2$ (%)	13,89 +/- 0,1	13,32 +/- 0,1	12,91 +/- 0,1	14,08 +/- 0,1	13,68 +/- 0,1	13,22 +/- 0,1	13,91 +/- 0,1	13,51 +/- 0,1	13,17 +/- 0,1
Réduction des $\text{NO}_x$ par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	44	45	51	39	41	47	38	40	44
Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	253	331	853	442	623	1187	875	1050	1899
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% absolu)	9,42	7,72	8,31	8,50	-2,8	7,13	11,82	2,86	3,81
Taux de combustion (%)	83,13	84,53	84,06	87,41	92,24	88,17	87,61	91,59	91,25

Tableau A4.10 : Temps de séjour de la zone de reburning de 910 ms

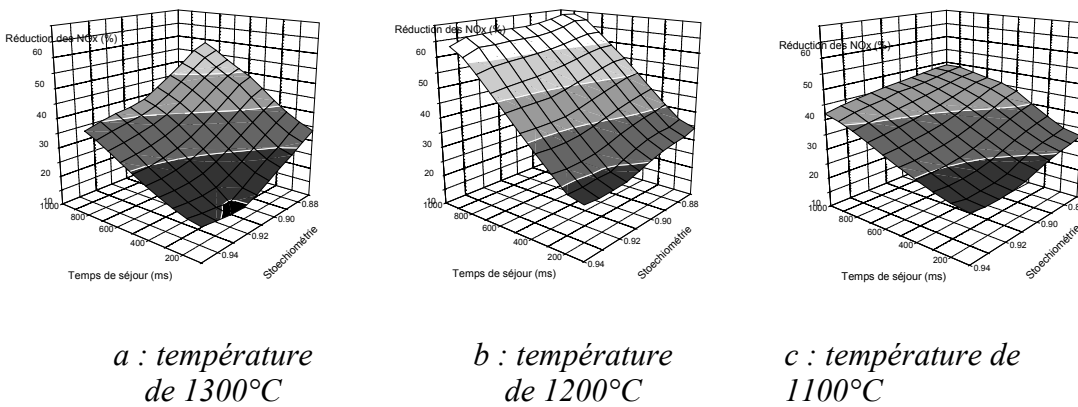
**V - Réduction des émissions de NO<sub>x</sub> par rapport à une flamme de référence à 20 % d'excès d'air**



*Figure A4.11 : Réduction des émissions de NO<sub>x</sub> (%) pour un ST<sub>1</sub> de 0,6 (teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 332 ppm)*

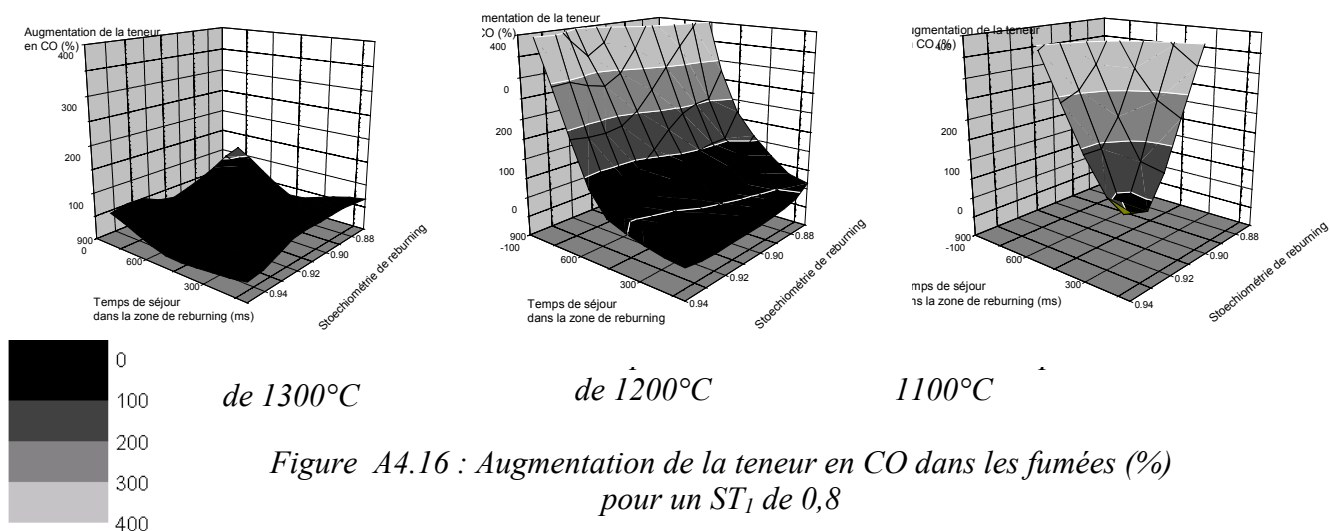
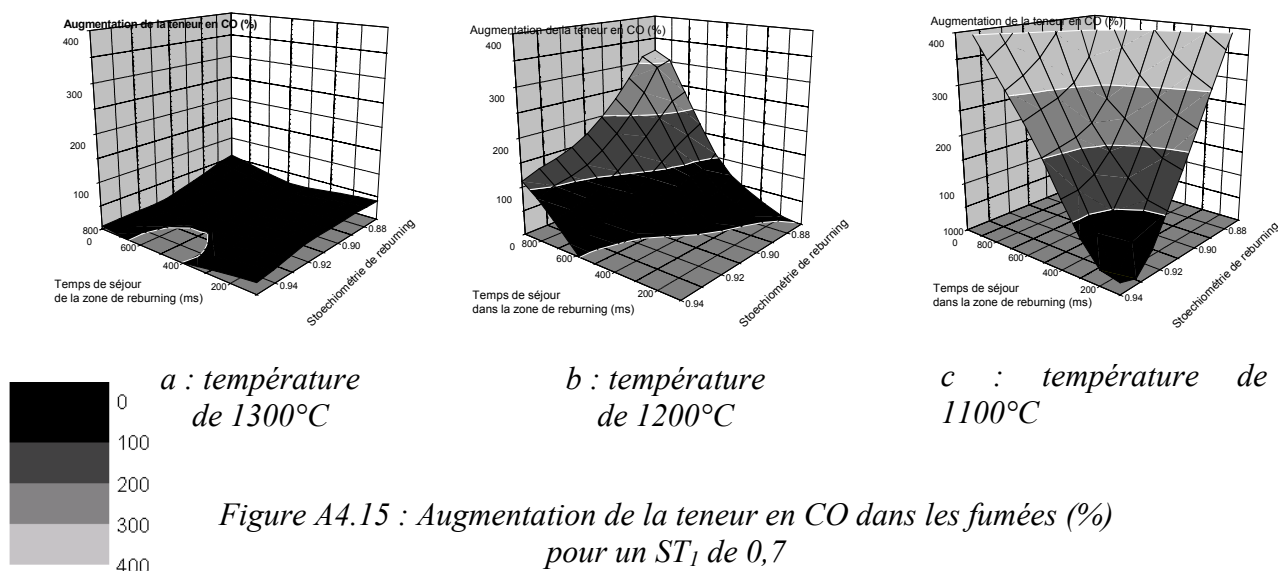
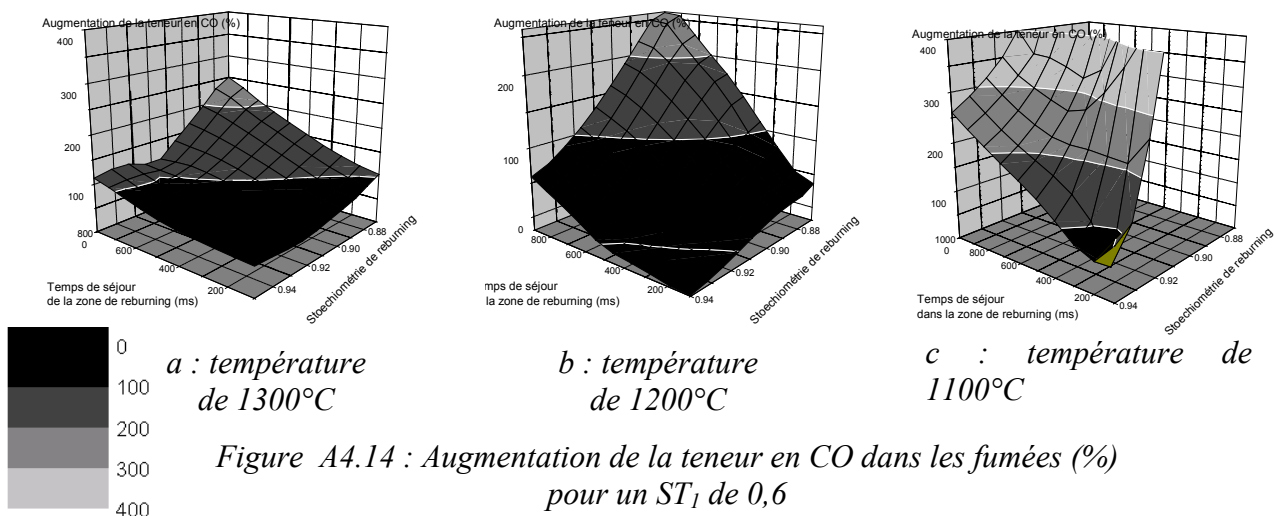


*Figure A4.12 : Réduction des émissions de NO<sub>x</sub> (%) pour un ST<sub>1</sub> de 0,7 (teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 488 ppm)*

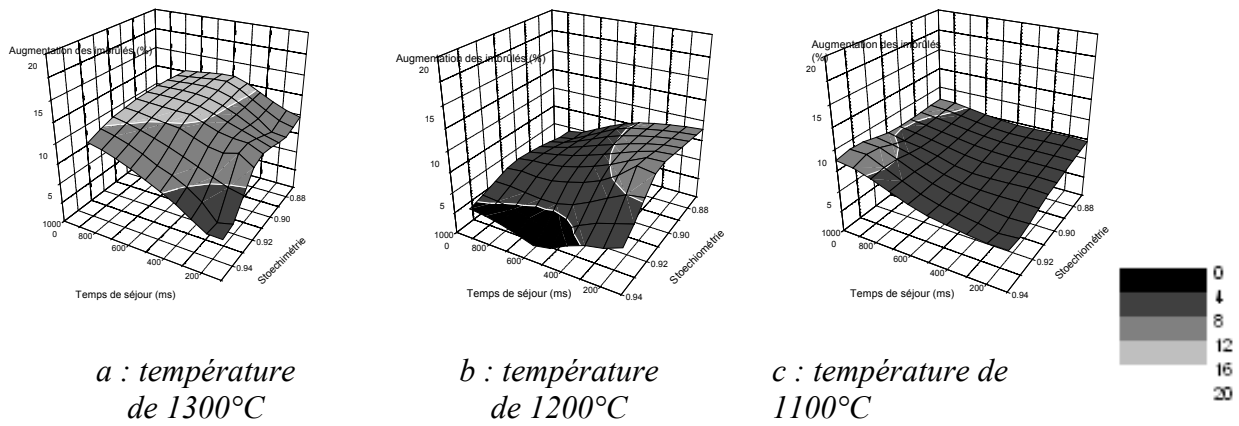


*Figure A4.13 : Réduction des émissions de NO<sub>x</sub> (%) pour un ST<sub>1</sub> de 0,8 (teneur initiale en NO<sub>x</sub> de 551 ppm)*

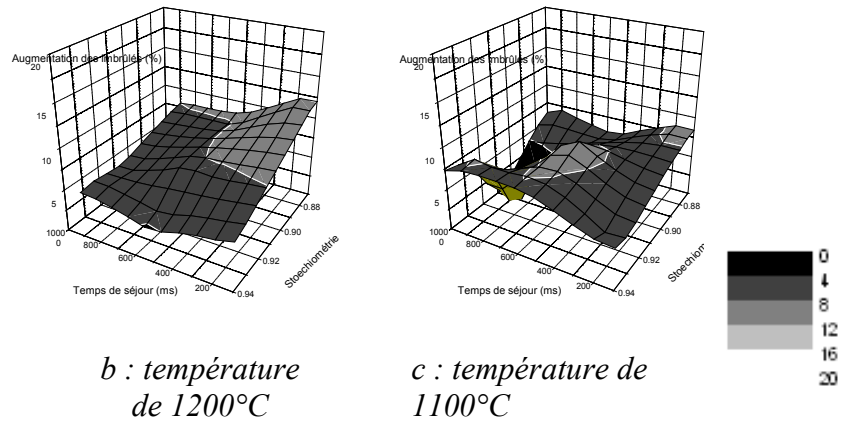
**VI – Augmentation de la teneur en CO par rapport à une flamme de référence à 20 % d'excès d'air**



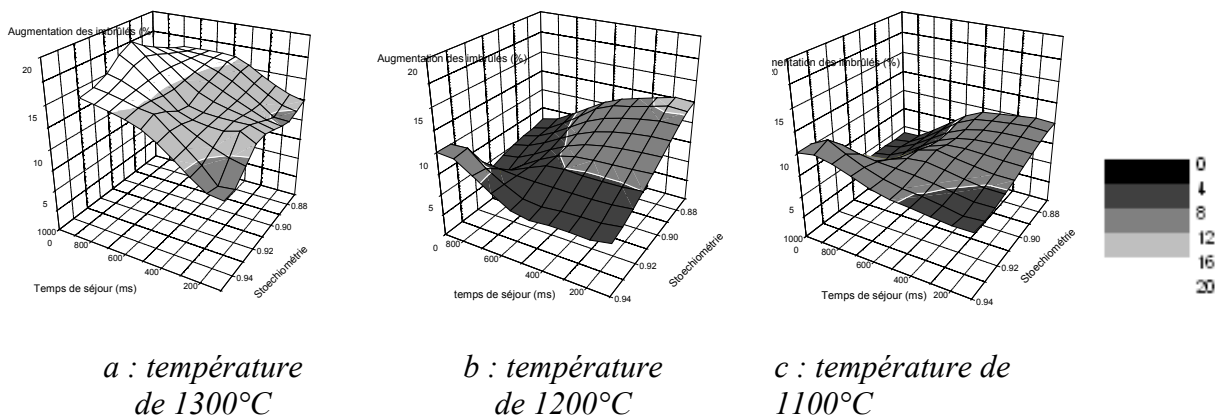
**VII – Augmentation de la teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes par rapport à une flamme de référence à 20 % d’excès d’air**



*Figure A4.17 : Augmentation de la teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes (% abs) pour un  $ST_1$  de 0,6*



*Figure A4.18 : Augmentation de la teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes (% abs) pour un  $ST_1$  de 0,7*



*Figure A4.19 : Augmentation de la teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes (% abs) pour un  $ST_1$  de 0,8*

*ANNEXES*

## **ANNEXE 5**

# **LE REBURNING AU CHARBON**



## I - Modification de l'outil expérimental

### I-1 Description des modifications

#### I-1-1 Broyage et distribution granulométrique du charbon de reburning

Comme nous l'avons montré lors de notre étude bibliographique (chapitre III, partie 1), la granulométrie du charbon utilisé comme combustible de reburning a une influence sur le rendement de dénitrification. Nous nous sommes fixés comme but d'obtenir au cours du broyage de ce charbon au moins 80 % de particules de taille inférieure à 60  $\mu\text{m}$  (en masse). Pour y parvenir, nous avons remplacé le diaphragme actuel situé en sortie de broyeur (diamètre de 250 mm utilisé pour préparer le charbon principal) par un autre de diamètre plus petit (160 mm) permettant d'augmenter le temps de séjour dans le broyeur. Le tableau A5.1 montre les résultats obtenus avec le charbon de Freyming (dont l'humidité variait entre 0 et 2 %). On constate qu'environ 90 % des particules de charbon ainsi broyées possèdent un diamètre inférieur à 64  $\mu\text{m}$ , ce qui va au-delà de notre objectif initial. Nous avons donc obtenu un charbon finement broyé.

Une fois broyé, le charbon est transporté pneumatiquement jusqu'à une trémie de stockage. A titre indicatif, le charbon est broyé à un débit de 200  $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$  et pénètre dans le silo à une vitesse de 20-22  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  (débit d'air de 600-700  $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$ ). Dans le but de séparer le charbon et l'air de transport, nous avons élaboré une arrivée dans la trémie, tangentielle et munie de multiples séparateurs.

Mailles ( $\mu\text{m}$ )	1	1,5	2	3	4	6	8	12	16	24	32	48	64	96	128	192
Passants cumulés (%)	1,1	1,4	2,4	3,7	5	8	11	18	25	41	54	77	89	97	100	100

Tableau A5.1 : Distribution granulométrique d'un charbon de reburning (Freyming)

#### I-1-2 Silo de stockage du charbon de reburning

Le charbon de reburning broyé est stocké dans un silo de 1200-1300 kg de capacité (figure A5.1), muni d'un filtre de dépoussiérage.

Le filtre est équipé d'un système de décolmatage mécanique par vibreur électrique qui permet aux fines particules retenues de tomber dans le silo. Ce dernier est également muni d'un capteur de CO et de plusieurs thermocouples afin de contrôler l'atmosphère et la température du milieu intérieur. Un dispositif d'inertage au  $\text{CO}_2$  automatique permet de mettre l'installation en sécurité en cas d'augmentation anormale de la teneur en CO et/ou d'échauffement. De plus, le silo est également équipé d'un détecteur à lames qui repère et indique par un signal sonore et visuel le niveau haut du silo.

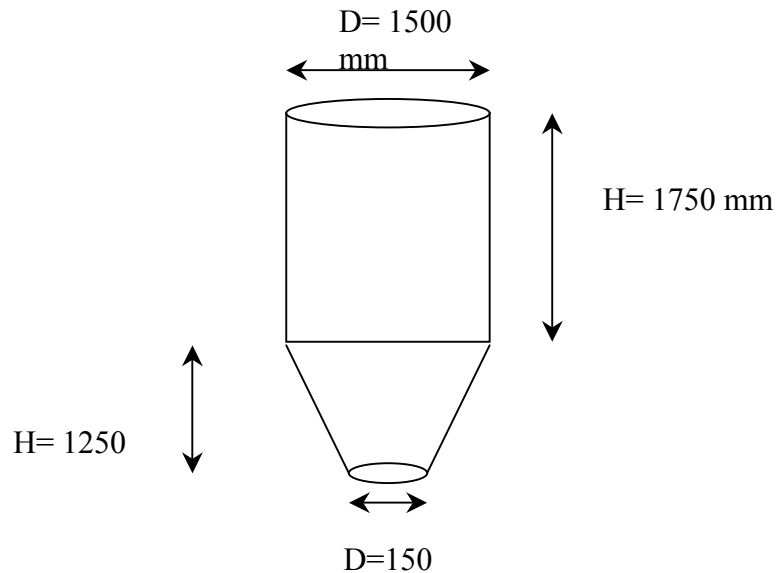


Figure A5.1 : Dimensions du silo de stockage

### I-1-3 Trémies tampons

Le charbon de reburning est injecté dans le four au moyen de deux cannes (figure A5.3), chacune étant équipée de son propre système d'alimentation. Pour cela, un système de deux trémies (fabrication SOVAPAM), équipées chacune de pesons et de vis d'alimentation, est utilisé afin de réguler et de contrôler le débit de charbon de reburning de chaque canne. Ce système est placé en dessous du silo de stockage. Le remplissage de ces deux trémies à partir du silo de stockage se fait par l'intermédiaire d'un sas alvéolaire en dessous duquel un clapet directionnel permet de remplir alternativement les deux trémies. Le débit du sas alvéolaire est de l'ordre de 120 à 150 kg.h<sup>-1</sup>. Chaque trémie tampon peut contenir environ 80 kg de charbon de reburning.

Les deux vis des trémies tampons sont commandées individuellement par des potentiomètres gradués de 0 à 10 : elles ont été étalonnées selon le débit de charbon à injecter (tableau A5.2).

	Graduation du potentiomètre	Débit de charbon (kg.h <sup>-1</sup> )
Vis 1	4,05	20
	5,85	30
	7,45	40
Vis 2	4	20
	5,8	30
	7,5	40

Tableau A5.2 : Etalonnage des vis d'alimentation des deux trémies tampons

### I-1-4 Transport pneumatique du combustible de reburning

Le charbon de reburning débité par chaque vis est transporté jusqu'au four par transport pneumatique. Ce système comprend des éjecteurs (figure A5.2) permettant

d'augmenter la vitesse de l'air et assurant l'aspiration du charbon. Le diamètre de l'éjecteur retenu est de 5,5 mm (un diamètre plus petit accentue la vitesse de l'air mais en restreint le débit et entraîne des problèmes de transport du charbon).

Deux alimentations distinctes en charbon de reburning ont été obtenues grâce à ce système. Le transport pneumatique du charbon, des trémies tampons jusqu'aux cannes d'injection équipant le four, se fait dans des tuyauteries de 33 mm de diamètre. Un diamètre plus important diminue la vitesse de l'air, le charbon n'est plus transporté et s'accumule le long de la tuyauterie. Un diamètre plus petit provoque des pertes de charge excessives en raison de la vitesse élevée de l'air à la sortie de l'éjecteur et le charbon n'est pas transporté, il s'accumule au niveau de l'éjecteur.

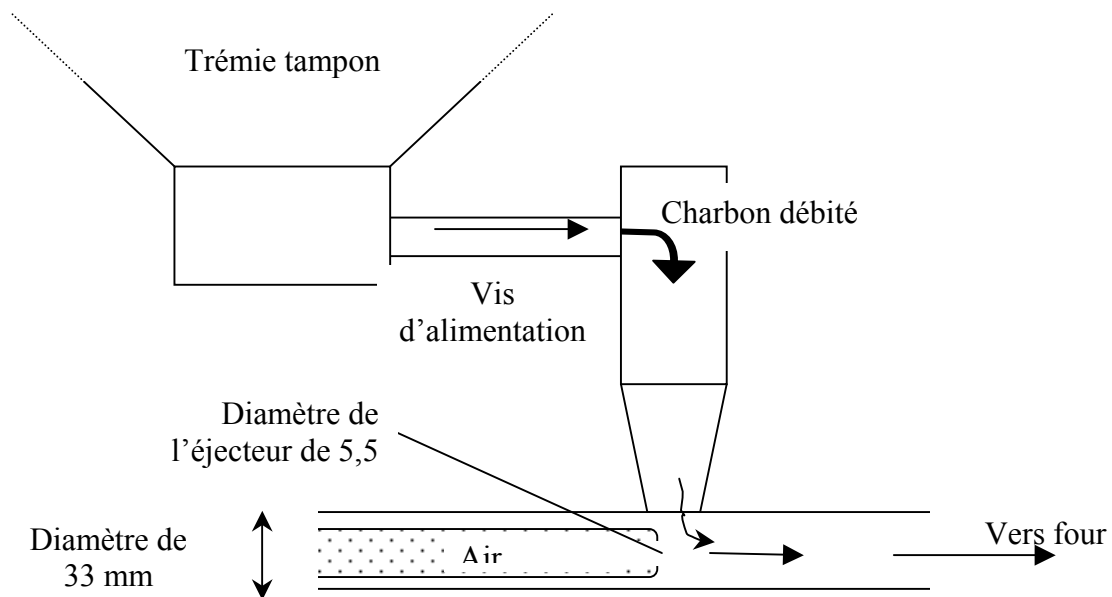


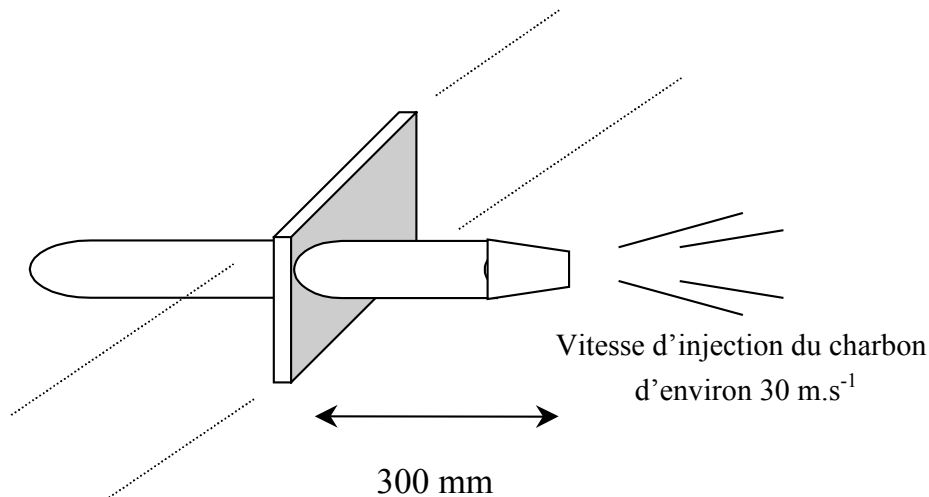
Figure A5.2 : Schéma d'un éjecteur

Il faut noter que le transport pneumatique du charbon à partir des éjecteurs est difficile à mettre en œuvre et reste très sensible aux pertes de charge qui s'accumulent le long des tuyauteries (coude, longueurs...). Il est important également de rendre étanche le point d'aspiration du charbon afin d'éviter toute accumulation de charbon en cet endroit. Nous avons ainsi été confrontés à des problèmes de bouchage de tuyauteries à maintes reprises au cours de nos expériences.

### I-1-5 Injection du charbon dans le four

Le charbon de reburning est injecté radialement dans le four en deux points diamétralement opposés et situés dans le plan horizontal passant par l'axe du four. Les deux injections sont effectuées grâce à deux cannes d'injection équipées d'un cône de rétrécissement en sortie (figure A5.3) et munies d'une plaque en acier de protection et de fixation.

Le diamètre du rétrécissement étant de 22 mm, la vitesse d'injection du charbon est de l'ordre de  $30 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Afin de compenser cette vitesse relativement faible, nous avons inséré une partie de la canne d'injection dans le four. La partie insérée est de l'ordre de 30 cm, permettant ainsi au charbon de mieux se mélanger avec les gaz de combustion issus de la zone primaire.



**Figure A5.3 : Schéma d'une canne d'injection du charbon**

#### I-1-6 Dispositifs de sécurité de l'installation

Le stockage de longue durée du charbon pulvérisé peut entraîner une oxydation lente du combustible et un dégagement de CO. Des mesures en continu de CO et une injection automatique de CO<sub>2</sub> en cas d'augmentation anormale de cette teneur permettent d'inertiser le contenu du silo. Ce dernier est de plus muni de trois sondes de température (PT 100) réparties sur trois niveaux, afin de repérer une augmentation éventuelle de la température. En cas de problème, une injection manuelle de CO<sub>2</sub> est également possible. Deux niveaux d'alarmes sont programmés pour le détecteur de CO : un seuil de 400 ppm qui déclenche l'injection automatique de CO<sub>2</sub> et un seuil de 200 ppm qui la stoppe. Durant la période de nos essais, les teneurs en CO sont constamment restées inférieures à 10 ppm et les températures à l'intérieur du silo étaient en dessous de 27 °C (tableau A5.3). Le système de sécurité ne s'est donc jamais déclenché.

CO (ppm)	Température en bas de trémie (°C)	Température en milieu de trémie (°C)	Température en haut de trémie (°C)
3	25,9	25,1	11,4
4	26,6	26,2	8,6
2	20,8	20,5	7,1
10	17,3	17,3	7,4
9	16,3	16,3	7,1
6	15,5	15,5	8,6
7	12,4	12,1	7,2

**Tableau A5.3 : Exemple des mesures de teneur en CO et de température à l'intérieur de la trémie**

Nous avons également équipé le silo de stockage d'une membrane d'explosion (avec une sortie vers l'extérieur des bâtiments), dimensionnée en fonction de la capacité de stockage du silo (figure A5.4).

Afin d'éviter tout rejet de poussières à l'intérieur des bâtiments, la sortie du filtre de dé poussiérage débouche vers l'extérieur. Le silo de stockage et les deux trémies tampons sont par ailleurs reliés par une tuyauterie afin d'équilibrer les pressions lors des remplissages et des vidanges.

L'injection du charbon de reburning dans le four ne peut se faire qu'en présence de la flamme primaire. De plus, lors de l'arrêt du brûleur ou de l'injection du charbon de reburning, une circulation continue de l'air dans les cannes d'injection permet de refroidir le métal et d'éviter toute accumulation de cendres volantes au niveau des cônes.

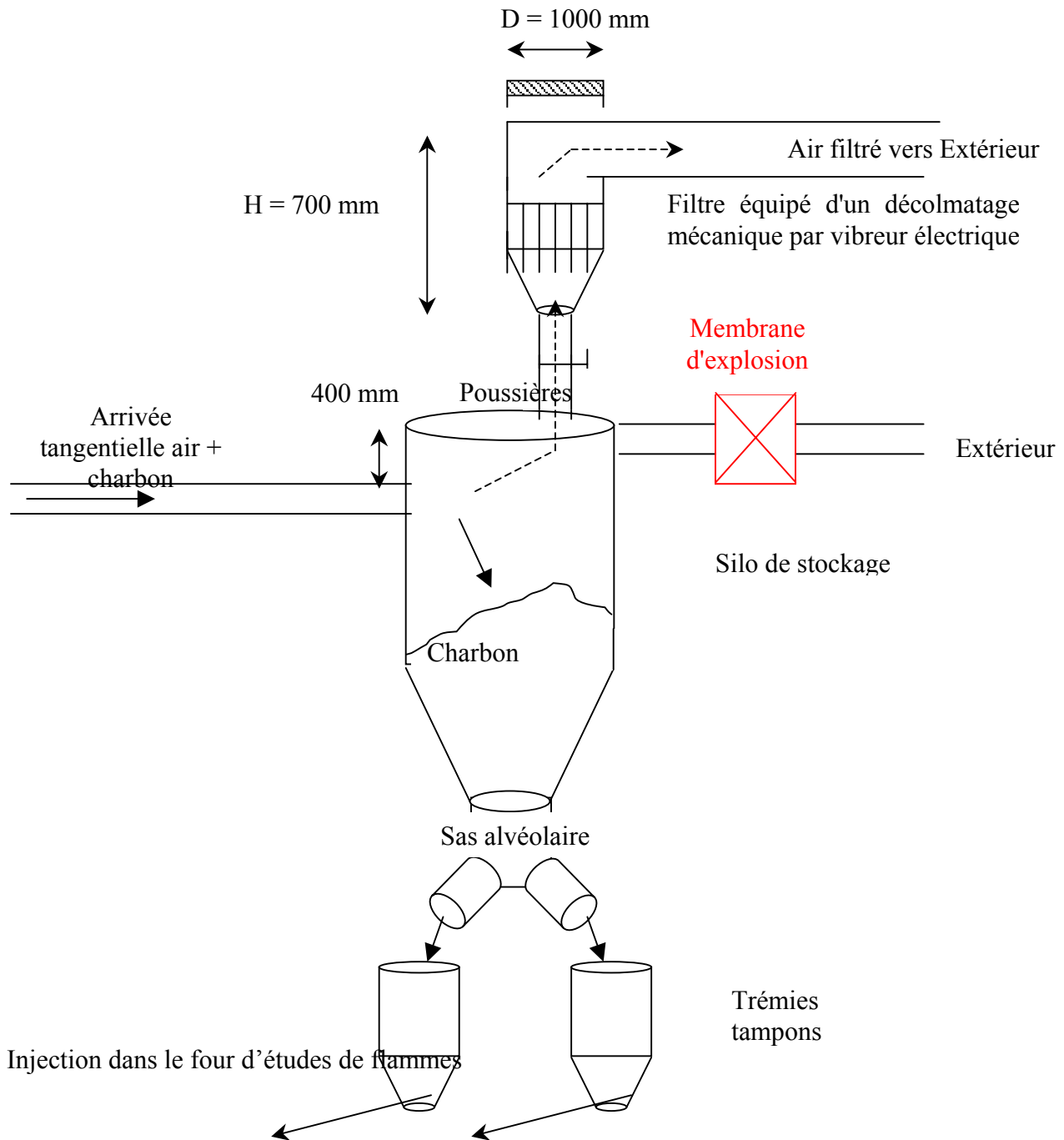


Figure A5.4 : Vue d'ensemble de l'installation de stockage et de dosage du charbon de reburning

## I-2 Essais de validation

Nous avons testé cette installation en effectuant du reburning avec du charbon français comme combustible de reburning et comme combustible principal. Les teneurs en  $\text{NO}_x$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{O}_2$  et  $\text{CO}_2$  dans les fumées ont été mesurées au carneau et comparées à celles obtenues avec une flamme de référence à 20 % d'excès d'air sans reburning.

### I-2-1 Flammes de référence

Avant de procéder au reburning au charbon, nous avons d'abord effectué des mesures sur une flamme de référence au charbon pulvérisé (C.P.) à 20 % d'excès d'air.

Du fait que la combustion du charbon est incomplète entraînant une quantité conséquente d'imbrûlés (voir chapitre II, partie 2), la teneur en oxygène au carneau est différente de la valeur théorique. Nous avons donc ajusté les débits des airs de combustion pour obtenir une teneur en oxygène au carneau proche de 4 %, ce qui est équivalent à un excès d'air de combustion de 20 %. Les réglages et les teneurs des différents gaz dans les fumées mesurées sont présentés dans les tableaux A5.4 et A5.5.

Débit de charbon	465 $\text{kg.h}^{-1}$
Débit d'air I	600 $\text{kg.h}^{-1}$
Débit d'air II	1960 $\text{kg.h}^{-1}$
Débit d'air III	2300 $\text{kg.h}^{-1}$
ST1	0,55
Stœchiométrie théorique	1,20
Stœchiométrie réelle (sortie brûleur)	1,11
Intensité de rotation (swirl)	1,045

Tableau A5.4 : Réglages de la flamme (20 % d'excès d'air)

Teneur en $\text{NO}_x$	280 ppm
Teneur en $\text{CO}$	495 ppm
Teneur en $\text{O}_2$	4,53 %
Teneur en $\text{CO}_2$	13,6 %
Température des fumées	600 °C

Tableau A5.5 : Emissions de gaz et température des fumées pour une flamme à 20 % d'excès d'air

### I-2-2 Reburning au charbon

Afin d'obtenir facilement une zone secondaire réductrice, l'excès d'air dans la zone primaire a été réduit et limité à 5 % en sortie du brûleur, en diminuant le débit d'air III (tableau A5.6). Nous avons donc ajusté les débits des airs de combustion pour obtenir une

teneur en oxygène au carneau proche de 1 %, ce qui est équivalent à un excès d'air réel de combustion de 5 %. Au cours de ces premiers essais, l'observation visuelle des jets de combustible a permis d'affiner la géométrie et la position des cannes d'injection afin d'obtenir un bon mélange charbon-fumées.

Débit de charbon	464	kg.h <sup>-1</sup>
Débit d'air I	600	kg.h <sup>-1</sup>
Débit d'air II	1960	kg.h <sup>-1</sup>
Débit d'air III	1256	kg.h <sup>-1</sup>
ST1	0,552	
Stœchiométrie théorique (zone primaire)	1,05	
Stœchiométrie réelle (zone primaire)	0,82	
Intensité de rotation (swirl)	1,2	

Tableau A5.6 : Réglages d'une flamme à excès d'air réduit (5 %)

La composition des fumées avant et après la mise en action du reburning est reportée respectivement dans les tableaux A5.7 et A5.8. Lors de ces expériences, le débit de combustible de reburning était de 80 kg.h<sup>-1</sup> (stœchiométrie théorique de reburning de 0,78), les temps de séjour dans les zones primaire et de reburning étaient pour chacune de 600 ms et la température à l'entrée de la zone de reburning était de 1200 °C environ. La stœchiométrie de la zone de postcombustion était de 1,15.

Teneur en NO <sub>x</sub>	280 ppm
Teneur en CO	4270 ppm
Teneur en O <sub>2</sub>	1,1 %
Teneur en CO <sub>2</sub>	16,1 %
Température des fumées	574 °C

Tableau A5.7 : Emissions de gaz et température des fumées pour une flamme à excès d'air réduit (sans reburning)

Teneur en NO <sub>x</sub>	170 ppm
Teneur en CO	3240 ppm
Teneur en O <sub>2</sub>	3.18%
Teneur en CO <sub>2</sub>	14.30%

Tableau A5.8 : Emissions de gaz pour une flamme à excès d'air réduit accompagnée de reburning au charbon

### I-2-3 Remarques et observations

Ces essais préliminaires de reburning au charbon montrent qu'il est possible d'obtenir facilement une réduction des NO<sub>x</sub> de 40 % par rapport à une flamme classique à 20 % d'excès d'air. Malheureusement, cette réduction s'accompagne d'une importante émission de CO par rapport à une combustion classique.

Ces essais préliminaires ont montré que :

- L'installation permettant le transport et l'injection du combustible de reburning dans le four était sensible et délicate à utiliser : en effet, le transport pneumatique est très sensible aux différences de pression générées par la flamme. Nous avons, de nombreuses fois, été confrontés à des bouchages de lignes.
- La modification des extrémités des cannes d'injection a permis d'améliorer le mélange charbon-fumées,
- Le remplacement régulier des cannes d'injection était nécessaire car elles sont soumises à de fortes températures.



## II - Reburning avec du charbon français (Freyming)

II-1 Résultats pour une température de 1300°C à l'entrée de la zone de *reburning*

Réglage du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,6	60,9	74,4	40,6	60,9	78,9
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	106	113	113	105	108	110
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,767	0,736	0,716	0,815	0,781	0,753
	Stœchiométrie réelle de reburning *	0,952	0,904	0,874	0,915	0,87	0,833
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	893	891	891	893	892	891
	Temps de mélange (ms) **	212	93	64	214	97	59
	Longueur de mélange (m) **	1,405	0,958	0,796	1,405	0,958	0,796
	Pénétration du jet (m) **	0,316	0,335	0,335	0,313	0,322	0,327
Zone de burnout	Débit d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,932	0,942	0,932	0,980	0,988	0,968
	Stœchiométrie réelle de burnout *	1,156	1,157	1,137	1,156	1,155	1,123
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126	165	178	126	165	178
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	265 +/- 12	238 +/- 19	203 +/- 13	417	339	302 +/- 8,9
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	472 +/- 18	436 +/- 28	368 +/- 19	764	641	574 +/- 13
	Teneur en CO (ppm)	1425 +/- 155	998 +/- 463	1461 +/- 246	375	700	1380 +/- 191
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	1543 +/- 139	1112 +/- 420	1611 +/- 221	418	806	1597 +/- 171
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	3,68 +/- 0,1	4,18 +/- 0,4	3,99 +/- 0,2	4,19	4,71	4,80 +/- 0,1
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,65 +/- 0,1	14,23 +/- 0,3	14,33 +/- 0,2	14,40	14,00	13,82 +/- 0,1
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	30,59	35,88	45,88	19,24	32,24	39,32
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	1043	724	1093	310	690	1466
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	22,47	22,04	22,72	22,71	23,11	26,24
	Taux de combustion (%) ***	74,19	74,85	73,79	80,04	79,61	75,70

Tableau A5.9 : Temps de séjour de la zone de reburning de 900 ms

\* voir I, chapitre I, partie 4

\*\* voir relation (1.46), (1.47) et (1.48), chapitre III, partie I

\*\*\* voir relation (A3.1), annexe 3

II-2 Résultats pour une température de 1200°C à l'entrée de la zone de *reburning*

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,6	60,9	76,7	40,6	60,9	80
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	106	110	120	107	110	120
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,767	0,735	0,714	0,815	0,782	0,753
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,952	0,904	0,871	0,916	0,87	0,833
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	572	571	569	572	571	569
	Temps de mélange (ms)	192	86	52	190	87	48
	Longueur de mélange (m)	1,36	0,927	0,749	1,36	0,927	0,721
	Pénétration du jet (m)	0,349	0,361	0,392	0,352	0,358	0,392
Zone de burnout	Débit d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,932	0,942	0,929	0,981	0,988	0,968
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,156	1,156	1,132	1,153	1,156	1,126
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,168	0,295	0,35
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126	165	178	124	165	180
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	268 +/- 9,3	244 +/- 11	221 +/- 8,5	324 +/- 8	294 +/- 15	272 +/- 6
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	467 +/- 14	437 +/- 17	401 +/- 13	585 +/- 11,9	544 +/- 21,6	506 +/- 8,8
	Teneur en CO (ppm)	599 +/- 57	647 +/- 129	833 +/- 167	621 +/- 8	821 +/- 15	967 +/- 133
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	635 +/- 52	704 +/- 117	922 +/- 150	682 +/- 83	923 +/- 198	1097 +/- 119
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	3,32 +/- 0,3	3,77 +/- 0,3	4,05 +/- 0,2	3,94 +/- 0,14	4,33 +/- 0,16	4,47 +/- 0,1
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	15,30 +/- 0,5	14,89 +/- 0,3	14,55 +/- 0,1	14,45 +/- 0,18	14,19 +/- 0,14	14,01 +/- 0,1
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	31,32	35,74	41,03	38,16	42,49	46,51
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	370	421	583	569	805	975
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	23,85	21,56	22,49	25,10	27,04	27,74
	Taux de combustion (%)	71,87	75,56	74,16	77,25	74,52	73,40

Tableau A5.10 : Temps de séjour de la zone de reburning de 570 ms

ANNEXES

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,6	60,9	80	40,6	60,9	82,7
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	101	116	118	107	115	124
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,766	0,736	0,708	0,815	0,782	0,750
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,951	0,905	0,863	0,916	0,872	0,829
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	955	950	950	953	951	948
	Temps de mélange (ms)	202	82	49	190	83	43
	Longueur de mélange (m)	1,36	0,927	0,721	1,36	0,927	0,699
	Pénétration du jet (m)	0,331	0,38	0,386	0,352	0,376	0,407
Zone de burnout	Débit d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,950	0,962	0,942	1,001	1,009	0,983
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,155	1,158	1,122	1,156	1,157	1,116
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126	165	178	126	165	178
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	228 +/- 10,7	183 +/- 21,9	153 +/- 10,9	306 +/- 4,2	256 +/- 9,2	231 +/- 7,68
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	410 +/- 15,8	343 +/- 32,4	285 +/- 16,1	557 +/- 6,16	491 +/- 13,6	442 +/- 11,3
	Teneur en CO (ppm)	4034 +/- 925	3953 +/- 897	4854 +/- 716	2001 +/- 4,2	3273 +/- 9,2	4336 +/- 666
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	4415 +/- 832	4514 +/- 807	5516 +/- 644	2214 +/- 149	3821 +/- 498	5046 +/- 597
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	3,87 +/- 0,15	4,58 +/- 0,16	4,50 +/- 0,16	4,05 +/- 0,16	4,94 +/- 0,09	4,89 +/- 0,09
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,64 +/- 0,1	13,95 +/- 0,15	13,86 +/- 0,31	14,68 +/- 0,22	13,74 +/- 0,08	13,63 +/- 0,06
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	38,62	48,65	57,34	41,12	48,10	53,28
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	3170	3244	3986	2071	3646	4847
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)		27,94		29,37	30,67	31,13
	Taux de combustion (%)		62,53		70,48	67,76	66,70

Tableau A5.11 : Temps de séjour de la zone de reburning de 950 ms

## III - Reburning avec du charbon colombien

III-1 Résultats pour une température de 1300°C à l'entrée de la zone de *reburning*

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,90	40,59	60,87	78,90
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	113,84	115,72	115,72	115,72	115,72	115,72
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,777	0,744	0,717	0,831	0,796	0,767
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,98	0,94	0,91	0,94	0,90	0,87
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	525,00	525,00	525,00	525,00	525,00	525,00
	Temps de mélange (ms)	198,00	91,00	56,00	195,00	91,00	56,00
	Longueur de mélange (m)	1,405	0,958	0,754	1,405	0,958	0,754
	Pénétration du jet (m)	0,338	0,338	0,338	0,338	0,338	0,338
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,942	0,951	0,932	0,996	1,002	0,982
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,192	1,202	1,177	1,139	1,151	1,129
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	126,38	164,88	177,72
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	286 +/- 3,44	256 +/- 3,22	231 +/- 8,66	436 +/- 4,3	382 +/- 4,9	326 +/- 5,02
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	486 +/- 5,06	451 +/- 4,75	418 +/- 12,8	763 +/- 6,3	681 +/- 7,3	584 +/- 7,38
	Teneur en CO (ppm)	370 +/- 22,3	436 +/- 22,5	496 +/- 31,4	189 +/- 4,3	229 +/- 4,9	305 +/- 13,8
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	383 +/- 19,9	468 +/- 20,2	546 +/- 28,2	201 +/- 11	249 +/- 9,1	332 +/- 12,4
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	2,90 +/- 0,06	3,52 +/- 0,14	3,95 +/- 0,12	3,40 +/- 0,1	3,72 +/- 0,1	3,79 +/- 0,06
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	16,09 +/- 0,08	15,45 +/- 0,15	14,95 +/- 0,14	15,70 +/- 0	15,42 +/- 0,1	15,31 +/- 0,08
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	26,48	31,77	36,76	19,43	28,09	38,33
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	155	212	264	121	174	265
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	18,24	19,82	20,69	20,63	22,03	20,34
	Taux de combustion (%)	79,12	77,24	76,10	81,55	80,18	81,82

Tableau A5.12 : Temps de séjour de la zone de reburning de 525 ms

ANNEXES

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,90	40,59	60,87	78,90
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	114,77	114,77	114,77	114,77	114,77	114,77
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,777	0,744	0,717	0,831	0,796	0,767
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,983	0,942	0,907	0,940	0,902	0,870
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	876	876	876	876	876	876
	Temps de mélange (ms)	196	91	57	196	91	57
	Longueur de mélange (m)	1,405	0,958	0,754	1,405	0,958	0,754
	Pénétration du jet (m)	0,335	0,335	0,335	0,335	0,335	0,335
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,942	0,951	0,932	0,996	1,002	0,982
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,192	1,202	1,177	1,139	1,150	1,129
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	126,38	164,88	177,72
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	249 +/- 3,18	218 +/- 2,91	198 +/- 10,5	370 +/- 5	318 +/- 6,4	281 +/- 5,92
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	434 +/- 4,68	387 +/- 4,29	366 +/- 15,5	657 +/- 7,4	589 +/- 9,4	521 +/- 8,72
	Teneur en CO (ppm)	589 +/- 58,1	601 +/- 63,8	640 +/- 69,4	232 +/- 5	272 +/- 6,4	396 +/- 55,4
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	625 +/- 52	651 +/- 57,3	720 +/- 62,2	251 +/- 13	307 +/- 20	447 +/- 49,7
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	3,33 +/- 0,06	3,68 +/- 0,13	4,33 +/- 0,08	3,65 +/- 0	4,37 +/- 0,1	4,40 +/- 0,08
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	15,40 +/- 0,05	15,01 +/- 0,12	14,47 +/- 0,13	15,31 +/- 0	14,61 +/- 0,1	14,44 +/- 0,07
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	34,34	41,45	44,63	30,62	37,80	44,98
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	317	334	380	176	237	391
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	18,83	20,13	20,23	18,02	21,69	24,13
	Taux de combustion (%)	78,45	76,84	76,71	83,76	80,53	77,83

Tableau A5.13 : Temps de séjour de la zone de reburning de 875 ms

### III-2 Résultats pour une température de 1200°C à l'entrée de la zone de reburning

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,90	40,59	60,87	78,90
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	114,77	114,77	114,77	112,90	112,90	114,77
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,78	0,74	0,72	0,83	0,80	0,77
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,983	0,942	0,907	0,940	0,902	0,870
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	561	561	561	561	561	561
	Temps de mélange (ms)	178	83	51	181	84	51
	Longueur de mélange (m)	1,360	0,927	0,730	1,360	0,927	0,730
	Pénétration du jet (m)	0,370	0,370	0,370	0,364	0,364	0,370
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,94	0,95	0,93	1,00	1,00	0,98
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,192	1,202	1,177	1,135	1,150	1,132
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,168	0,295	0,350
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	124,40	164,88	179,69
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	260 +/- 3,18	219 +/- 2,91	185 +/- 11	402 +/- 5,02	331 +/- 6,4	314 +/- 5,92
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	462 +/- 4,68	403 +/- 4,29	341 +/- 15	730 +/- 7,38	621 +/- 9,4	595 +/- 8,72
	Teneur en CO (ppm)	699 +/- 26,5	734 +/- 33,2	918 +/- 370	246 +/- 5,02	323 +/- 6,4	471 +/- 63
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	755 +/- 23,7	822 +/- 29,9	1030 +/- 331	272 +/- 115	369 +/- 65	544 +/- 56,5
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	3,65 +/- 0,06	4,25 +/- 0,13	4,28 +/- 0,1	4,04 +/- 0,03	4,57 +/- 0,1	4,75 +/- 0,08
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	15,03 +/- 0,05	14,47 +/- 0,12	14,24 +/- 0,1	14,37 +/- 0,04	13,82 +/- 0,1	14,01 +/- 0,07
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	30,11	39,03	48,41	22,91	34,42	37,17
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	403	448	587	199	305	498
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	17,62	18,43	19,02	18,23	20,61	23,79
	Taux de combustion (%)	79,80	78,91	78,23	83,60	81,57	78,24

Tableau A5.14 : Temps de séjour de la zone de reburning de 561 ms

ANNEXES

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,94	40,59	60,87	79,98
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	118,54	118,54	117,62	110,11	115,63	115,75
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,778	0,745	0,718	0,830	0,796	0,765
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,984	0,943	0,908	0,939	0,902	0,869
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	934	934	934	936	935	935
	Temps de mélange (ms)	172	80	50	185	82	50
	Longueur de mélange (m)	1,360	0,927	0,729	1,360	0,927	0,721
	Pénétration du jet (m)	0,382	0,382	0,379	0,355	0,373	0,373
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,943	0,952	0,932	0,995	1,002	0,980
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,193	1,203	1,177	1,138	1,151	1,127
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	126,38	164,88	177,72
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	215 +/- 6,32	196 +/- 3,25	151 +/- 3,1	320 +/- 6,84	268 +/- 5,7	202 +/- 16,2
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	390 +/- 9,31	369 +/- 4,79	283 +/- 4,6	577 +/- 10,1	501 +/- 8,4	379 +/- 24,2
	Teneur en CO (ppm)	1749 +/- 60	1309 +/- 44	1727 +/- 44	629 +/- 6,84	834 +/- 5,7	1324 +/- 82,2
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	1932 +/- 53,8	1502 +/- 39,5	1967 +/- 39	690 +/- 16,5	951 +/- 17	1515 +/- 74,6
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	4,03 +/- 0,09	4,66 +/- 0,13	4,54 +/- 0,1	3,90 +/- 0,15	4,55 +/- 0,2	4,61 +/- 0,35
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,82 +/- 0,06	14,33 +/- 0,12	14,26 +/- 0,1	15,36 +/- 0,14	14,71 +/- 0,1	14,64 +/- 0,44
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	41,00	44,18	57,19	39,07	47,10	59,98
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	1188	901	1211	658	945	1565
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	17,58	18,46	20,94	19,27	21,36	22,96
Taux de combustion (%)	79,84	78,87	75,75	82,75	80,86	79,19	

Tableau A5.15 : Temps de séjour de la zone de reburning de 935 ms

IV -Reburning avec du charbon sud-africain

IV-1 Résultats pour une température de 1300°C à l'entrée de la zone de *reburning*

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,9	40,59	60,87	78,9
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	113,86	113,86	113,86	113,86	113,86	113,86
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,765	0,733	0,706	0,816	0,781	0,753
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,996	0,951	0,915	0,951	0,91	0,877
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	557	557	557	557	557	557
	Temps de mélange (ms)	198	92	57	198	92	57
	Longueur de mélange (m)	1,405	0,958	0,754	1,405	0,958	0,754
	Pénétration du jet (m)	0,353	0,353	0,353	0,353	0,353	0,353
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,930	0,939	0,921	0,981	0,988	0,968
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,21	1,218	1,191	1,155	1,165	1,142
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	126,38	164,88	177,72
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	279 +/- 8,61	259 +/- 5,87	241 +/- 6,4	402 +/- 8,31	393 +/- 5,9	355 +/- 5,99
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	521 +/- 12,7	477 +/- 8,66	489 +/- 9,4	793 +/- 12,3	739 +/- 8,7	684 +/- 8,83
	Teneur en CO (ppm)	417 +/- 69,8	468 +/- 42,3	369 +/- 119	149 +/- 8,31	180 +/- 5,9	211 +/- 30,1
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	473 +/- 62,8	526 +/- 38	456 +/- 107	179 +/- 7,57	206 +/- 17	247 +/- 27
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	4,48 +/- 0,15	4,30 +/- 0,11	5,82 +/- 0,1	5,40 +/- 0,17	4,63 +/- 0,1	5,01 +/- 0,11
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,47 +/- 0,17	14,58 +/- 0,11	13,14 +/- 0,1	13,57 +/- 0,15	14,38 +/- 0,1	14,00 +/- 0,11
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	18,97	25,82	23,95	16,35	22,05	27,85
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	163	192	153	66	91	129
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	20,08	18,06	17,91	19,44	21,09	21,54
	Taux de combustion (%)	74,42	77,09	77,28	80,74	79,08	78,60

Tableau A5.16 : Temps de séjour de la zone de reburning de 560 ms



ANNEXES

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,90	40,59	60,87	78,90
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	127,08	113,83	113,83	113,83	113,83	113,83
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,768	0,733	0,706	0,816	0,781	0,753
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,999	0,951	0,915	0,951	0,910	0,877
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	928	928	928	928	928	928
	Temps de mélange (ms)	177	92	57	198	92	57
	Longueur de mélange (m)	1,405	0,958	0,754	1,405	0,958	0,754
	Pénétration du jet (m)	0,353	0,353	0,353	0,353	0,353	0,353
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,933	0,939	0,921	0,981	0,988	0,968
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,214	1,218	1,191	1,155	1,165	1,142
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	126,38	164,88	177,72
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	269 +/- 4,88	225 +/- 5,1	206 +/- 3,6	421 +/- 5,99	352 +/- 3,7	308 +/- 5,94
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	504 +/- 7,19	447 +/- 7,57	408 +/- 5,4	776 +/- 8,85	683 +/- 5,5	613 +/- 8,76
	Teneur en CO (ppm)	640 +/- 52,5	680 +/- 75,9	993 +/- 68	211 +/- 5,99	281 +/- 3,7	408 +/- 58,7
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	729 +/- 47	823 +/- 68,5	1194 +/- 62	237 +/- 12,4	332 +/- 23	494 +/- 52,7
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	4,54 +/- 0,08	5,51 +/- 0,23	5,41 +/- 0,3	4,30 +/- 0,14	5,14 +/- 0,2	5,52 +/- 0,1
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,50 +/- 0,08	13,51 +/- 0,25	13,62 +/- 0,3	14,90 +/- 0,14	14,10 +/- 0,2	13,64 +/- 0,1
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	21,62	30,48	36,55	18,14	27,95	35,34
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	305	357	563	119	207	357
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	24,32	23,77	24,80	26,16	26,04	23,28
Taux de combustion (%)	66,96	68,11	65,89	72,44	72,63	76,55	

Tableau A5.17 : Temps de séjour de la zone de reburning de 930 ms

IV-2 Résultats pour une température de 1200°C à l'entrée de la zone de *reburning*

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,90	40,59	60,87	78,90
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	113,83	113,83	113,83	113,83	113,83	113,83
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,765	0,733	0,706	0,816	0,781	0,753
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,996	0,951	0,915	0,951	0,910	0,877
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	594	594	594	594	594	594
	Temps de mélange (ms)	180	83	52	179	83	52
	Longueur de mélange (m)	1,360	0,927	0,730	1,360	0,927	0,730
	Pénétration du jet (m)	0,389	0,390	0,390	0,390	0,390	0,390
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,930	0,939	0,921	0,981	0,988	0,968
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,210	1,218	1,191	1,152	1,165	1,144
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	126,38	164,88	177,72
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	229 +/- 3,78	200 +/- 3,19	181 +/- 3,3	335 +/- 4,63	324 +/- 5	296 +/- 4,75
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	432 +/- 5,56	386 +/- 4,72	356 +/- 4,8	669 +/- 6,88	622 +/- 7,3	571 +/- 6,99
	Teneur en CO (ppm)	761 +/- 73,2	741 +/- 62,2	780 +/- 64	237 +/- 4,63	342 +/- 5	459 +/- 45,6
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	873 +/- 65,5	870 +/- 56	936 +/- 58	288 +/- 13,5	400 +/- 31	539 +/- 40,8
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	4,65 +/- 0,05	5,03 +/- 0,15	5,37 +/- 0,1	5,59 +/- 0,26	4,95 +/- 0,1	5,04 +/- 0,06
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,31 +/- 0,06	13,91 +/- 0,15	13,58 +/- 0,1	13,44 +/- 0,27	14,14 +/- 0,1	14,00 +/- 0,07
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	32,81	39,97	44,63	29,43	34,39	39,77
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	385	383	420	167	270	399
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	21,94	23,41	22,60	22,38	27,74	25,42
	Taux de combustion (%)	74,42	77,09	77,28	80,74	79,08	78,60

Tableau A5.18 : Temps de séjour de la zone de reburning de 595 ms

ANNEXES

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,90	40,59	60,87	78,90
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	113,83	113,83	113,83	113,83	113,83	113,83
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,765	0,733	0,706	0,816	0,781	0,753
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,996	0,951	0,915	0,951	0,910	0,877
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	991	991	991	991	991	991
	Temps de mélange (ms)	180	83	52	179	83	52
	Longueur de mélange (m)	1,360	0,927	0,730	1,360	0,927	0,730
	Pénétration du jet (m)	0,389	0,390	0,390	0,390	0,390	0,390
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,930	0,939	0,921	0,981	0,988	0,968
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,210	1,218	1,191	1,152	1,165	1,144
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	126,38	164,88	177,72
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	211 +/- 5,91	154 +/- 10,9	130 +/- 5,4	285 +/- 3,86	219 +/- 6	174 +/- 2,67
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	405 +/- 8,74	307 +/- 16,4	260 +/- 8	572 +/- 5,74	436 +/- 9,1	346 +/- 3,94
	Teneur en CO (ppm)	1694 +/- 143	2028 +/- 136	2456 +/- 208	662 +/- 3,86	1266 +/- 6	1958 +/- 137
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	1975 +/- 129	2460 +/- 124	2998 +/- 187	808 +/- 57	1532 +/- 108	2370 +/- 123
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	4,92 +/- 0,17	5,54 +/- 0,51	5,64 +/- 0,2	5,64 +/- 0,29	5,50 +/- 0,7	5,51 +/- 0,15
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	13,78 +/- 0,18	13,16 +/- 0,54	13,02 +/- 0,2	13,16 +/- 0,29	13,33 +/- 0,7	13,21 +/- 0,18
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	37,01	52,26	59,56	39,66	54,01	63,50
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	997	1267	1566	648	1319	2094
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	22,66	20,65	23,62	24,30	24,62	27,19
	Taux de combustion (%)	66,96	68,11	65,89	72,44	72,63	76,55

Tableau A5.19 : Temps de séjour de la zone de reburning de 990 ms

## V - Reburning avec du charbon polonais

V-1 Résultats pour une température de 1300°C à l'entrée de la zone de *reburning*

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,90	40,59	60,87	78,90
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	120,48	120,48	120,48	120,48	120,48	120,48
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,769	0,736	0,710	0,825	0,790	0,761
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,965	0,917	0,877	0,909	0,866	0,831
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	534	534	534	534	534	534
	Temps de mélange (ms)	187	87	54	187	87	54
	Longueur de mélange (m)	1,405	0,958	0,754	1,405	0,958	0,754
	Pénétration du jet (m)	0,359	0,359	0,359	0,359	0,359	0,359
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,934	0,943	0,924	0,990	0,997	0,976
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,172	1,173	1,141	1,104	1,107	1,080
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	126,38	164,88	177,72
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	300 +/- 2,7	274 +/- 10	254 +/- 6,1	415 +/- 4,07	387 +/- 4,1	368 +/- 24
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	528 +/- 4	481 +/- 15	463 +/- 9	724 +/- 6	697 +/- 6	669 +/- 35
	Teneur en CO (ppm)	415 +/- 37	653 +/- 121	537 +/- 36	214 +/- 4,07	236 +/- 4,1	252 +/- 20
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	444 +/- 33	698 +/- 110	596 +/- 32	227 +/- 9	259 +/- 8	279 +/- 18
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	3,48 +/- 0,1	3,46 +/- 0,42	4,11 +/- 0,1	3,35 +/- 0,12	3,90 +/- 0,2	4,04 +/- 0,3
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	14,87 +/- 0,1	14,84 +/- 0,3	14,17 +/- 0,1	15,16 +/- 0,09	14,69 +/- 0,1	14,59 +/- 0,3
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	16,32	23,77	26,62	24,27	27,09	30,02
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	147	288	231	125	156	176
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	20,14	23,26	23,37	23,02	19,42	
Taux de combustion (%)	77,97	73,49	73,31	80,15	83,48		

Tableau A5.20 : Temps de séjour de la zone de reburning de 535 ms

ANNEXES

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,90	40,59	60,87	78,90
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	120,48	120,48	120,48	120,48	120,48	120,48
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,769	0,736	0,710	0,825	0,790	0,761
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,965	0,917	0,877	0,909	0,866	0,831
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	890	890	890	890	890	890
	Temps de mélange (ms)	187	87	54	187	87	54
	Longueur de mélange (m)	1,405	0,958	0,754	1,405	0,958	0,754
	Pénétration du jet (m)	0,359	0,359	0,359	0,359	0,359	0,359
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,934	0,943	0,924	0,990	0,997	0,976
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,172	1,173	1,141	1,104	1,107	1,080
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	126,38	164,88	177,72
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	267 +/- 4,08	228 +/- 3,4	195 +/- 4,76	392 +/- 6,77	341 +/- 6,12	308 +/- 14,3
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	464 +/- 6	408 +/- 5	362 +/- 7	698 +/- 10	635 +/- 9	584 +/- 21
	Teneur en CO (ppm)	1237 +/- 140	1268 +/- 107	1275 +/- 74,8	341 +/- 6,77	370 +/- 6,12	522 +/- 108
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	1310 +/- 125	1382 +/- 96	1437 +/- 67	369 +/- 33	419 +/- 32	603 +/- 97
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	3,29 +/- 0,06	3,80 +/- 0,05	4,37 +/- 0,06	3,68 +/- 0,14	4,45 +/- 0,07	4,78 +/- 0,09
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	15,30 +/- 0,06	14,80 +/- 0,03	14,25 +/- 0,06	14,97 +/- 0,13	14,23 +/- 0,07	13,80 +/- 0,12
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	26,47	35,34	42,63	26,99	33,58	38,91
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	608	647	677	265	315	497
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	24,95	27,11	26,85	29,26	29,77	31,33
	Taux de combustion (%)	70,43	65,58	66,23	71,34	70,35	66,96

Tableau A5.21 : Temps de séjour de la zone de reburning de 890 ms

## V-2 Essais avec une température de 1200°C à l'entrée de la zone de reburning

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,90	40,59	60,87	78,90
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	120,48	120,48	120,48	114,77	114,77	120,48
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,769	0,736	0,710	0,824	0,789	0,761
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,965	0,917	0,877	0,908	0,865	0,839
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	570	570	570	570	570	570
	Temps de mélange (ms)	170	79	49	178	83	49
	Longueur de mélange (m)	1,360	0,927	0,730	1,360	0,927	0,730
	Pénétration du jet (m)	0,396	0,396	0,396	0,377	0,377	0,396
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,934	0,943	0,924	0,989	0,996	0,976
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,172	1,173	1,141	1,099	1,106	1,083
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,168	0,295	0,350
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	126,38	164,88	177,72
Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	248 +/- 4,06	211 +/- 2,31	194 +/- 4,02	378 +/- 9,85	347 +/- 6,6	304 +/- 15,3
	Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	430 +/- 5,97	378 +/- 3,4	360 +/- 5,94	677 +/- 14,7	642 +/- 9,73	570 +/- 22,5
	Teneur en CO (ppm)	1012 +/- 105	907 +/- 96,4	877 +/- 22,7	278 +/- 9,85	291 +/- 6,6	450 +/- 71,2
	Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )	1069 +/- 94	991 +/- 86,4	991 +/- 20,5	303 +/- 45,9	327 +/- 22,6	513 +/- 63,8
	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	3,25 +/- 0,07	3,84 +/- 0,07	4,41 +/- 0,17	3,80 +/- 0,35	4,33 +/- 0,09	4,56 +/- 0,08
	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)	15,37 +/- 0,07	14,74 +/- 0,07	14,15 +/- 0,16	14,99 +/- 0,61	14,62 +/- 0,1	14,26 +/- 0,11
	Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	31,85	40,10	42,95	29,18	32,85	40,38
	Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)	478	436	436	200	224	408
	Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)	26,11	25,68	26,25	28,06	28,11	30,55
	Taux de combustion (%)	67,98	68,93	67,66	73,46	73,38	68,73

Tableau A5.22 : Temps de séjour de la zone de reburning de 570 ms

ANNEXES

Réglage de la flamme du brûleur		Réglage 9			Réglage 10		
Zone de reburning	Débit de charbon de reburning (kg.h <sup>-1</sup> )	40,59	60,87	78,90	40,59	60,87	78,90
	Débit d'air de transport (kg.h <sup>-1</sup> )	115,72	115,72	115,72	115,72	115,72	115,72
	Stœchiométrie théorique de reburning	0,768	0,735	0,709	0,824	0,789	0,761
	Stœchiométrie réelle de reburning	0,964	0,915	0,876	0,908	0,865	0,838
	Temps de séjour zone de reburning (ms)	952	952	952	952	952	952
	Temps de mélange (ms)	177	82	51	177	82	51
	Longueur de mélange (m)	1,360	0,927	0,730	1,360	0,927	0,730
	Pénétration du jet (m)	0,380	0,380	0,380	0,380	0,380	0,380
Zone de burnout	Débit volumique d'air (kg.h <sup>-1</sup> )	832	1085	1170	832	1085	1170
	Stœchiométrie théorique de burnout	0,933	0,942	0,923	0,989	0,996	0,975
	Stœchiométrie réelle de burnout	1,171	1,172	1,140	1,099	1,106	1,083
	Pression entrée couronne (bar)	0,173	0,295	0,343	0,173	0,295	0,343
	Vitesse d'injection (m.s <sup>-1</sup> )	126,38	164,88	177,72	126,38	164,88	177,72
	Résultats	Teneur en NO <sub>x</sub> (ppm)	214 +/- 7,18	159 +/- 5,51	152 +/- 11,7	305 +/- 11,1	259 +/- 24,1
Teneur en NO <sub>x</sub> (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )		392 +/- 10,7	303 +/- 8,12	292 +/- 17,3	573 +/- 16,8	511 +/- 35,7	485 +/- 35,9
Teneur en CO (ppm)		2851 +/- 489	2610 +/- 252	2667 +/- 374	920 +/- 11,1	1152 +/- 24,1	1161 +/- 216
Teneur en CO (mg.Nm <sup>-3</sup> à 6 % d'O <sub>2</sub> )		3173 +/- 444	3026 +/- 226	3120 +/- 337	1053 +/- 91	1385 +/- 239	1418 +/- 196
Teneur en O <sub>2</sub> (%)		4,15 +/- 0,36	4,83 +/- 0,11	4,97 +/- 0,17	4,62 +/- 0,63	5,40 +/- 0,2	5,65 +/- 0,29
Teneur en CO <sub>2</sub> (%)		14,32 +/- 0,31	13,68 +/- 0,14	13,60 +/- 0,16	14,11 +/- 0,67	13,21 +/- 0,26	12,98 +/- 0,36
Réduction des NO <sub>x</sub> par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)		37,88	51,98	53,72	40,06	46,55	49,27
Augmentation du CO par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (%)		1615	1536	1586	943	1271	1304
Augmentation des imbrûlés par rapport à une combustion classique à 20 % d'excès d'air (% relatif)		23,53	24,32	24,60	28,63	26,69	32,65
Taux de combustion (%)		73,04	71,64	71,11	72,49	75,69	63,55

Tableau A5.23 : Temps de séjour de la zone de reburning de 950 ms

VI - Réduction des émissions de NO<sub>x</sub> par rapport à une flamme de référence à 20 % d'excès d'air

VI-1 Résultats avec le charbon français comme combustible de reburning

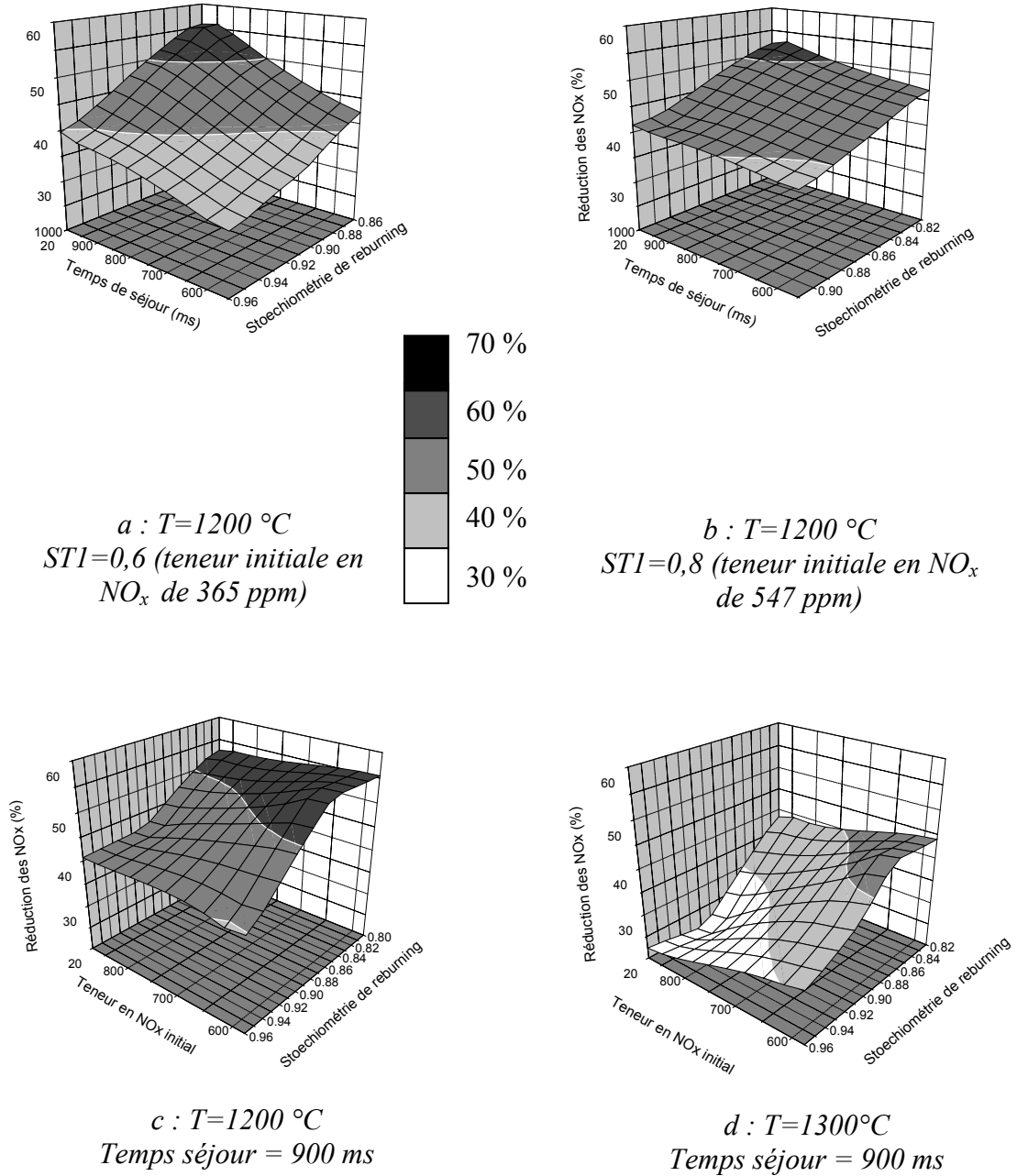


Figure A5.5 : Réduction des émissions de NO<sub>x</sub> (%) pour le charbon français



VI-2 Résultats avec le charbon colombien comme combustible de reburning

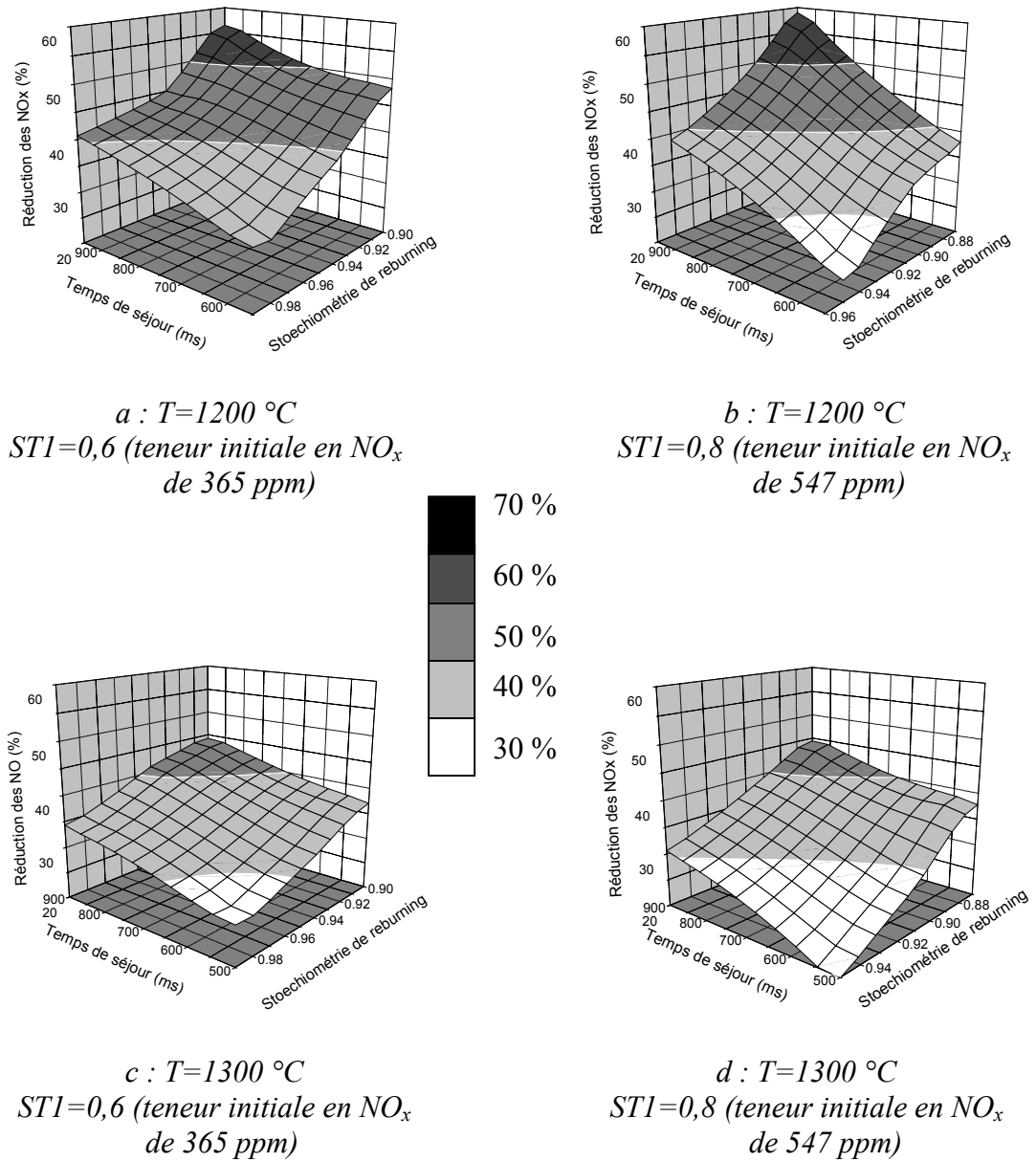


Figure A5.6 : Réduction des émissions de  $\text{NO}_x$  (%) pour le charbon colombien

VI-3 Résultats avec le charbon sud-africain comme combustible de reburning

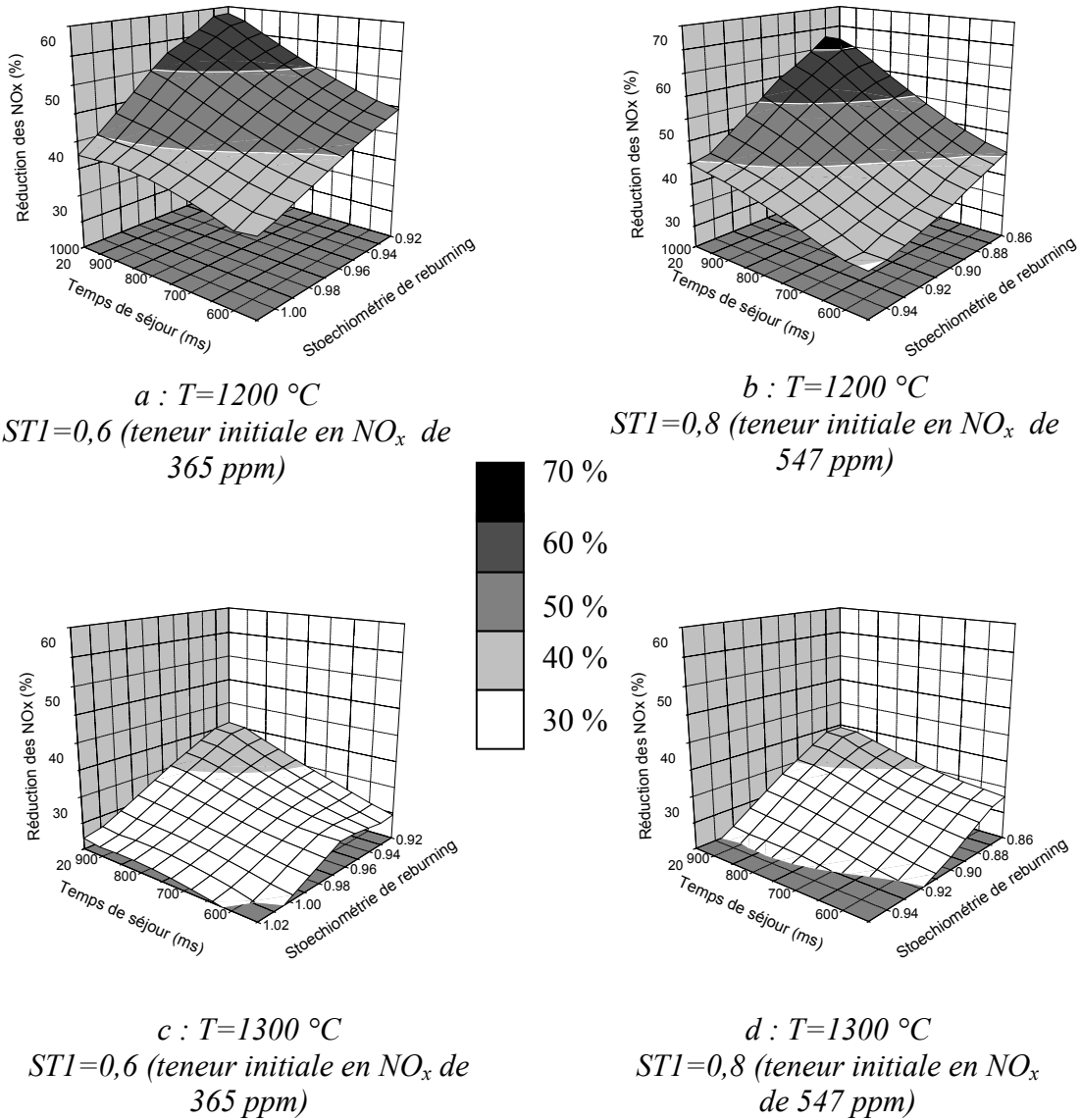


Figure A5.7 : Réduction des émissions de  $NO_x$  (%) pour le charbon sud-africain

VI-4 Résultats avec le charbon polonais comme combustible de reburning

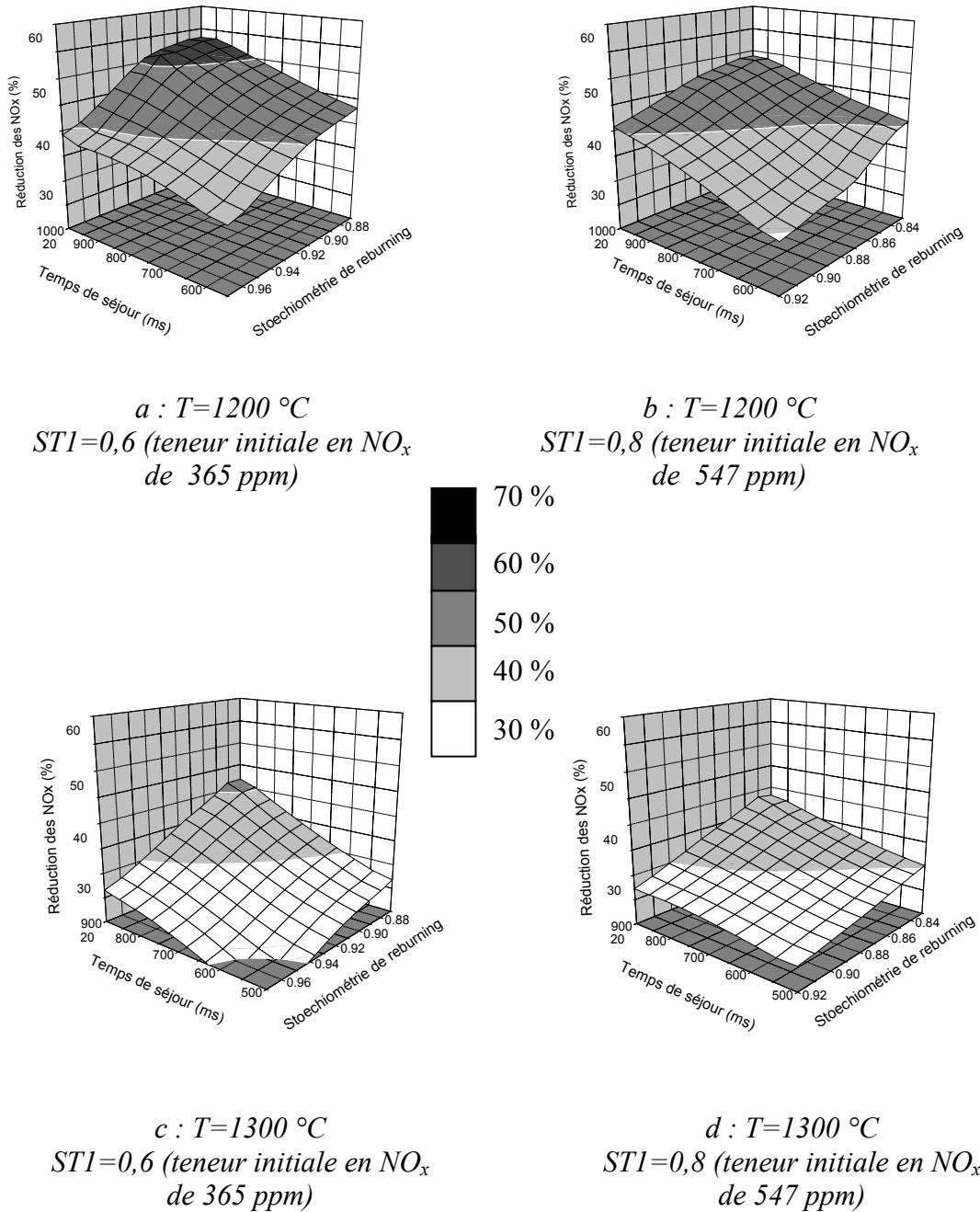


Figure A5.8 : Réduction des émissions de  $NO_x$  (%) pour le charbon polonais

VII – Augmentation de la teneur en CO par rapport à une flamme de référence à 20 % d'excès d'air

VII-1 Résultats avec le charbon français comme combustible de reburning

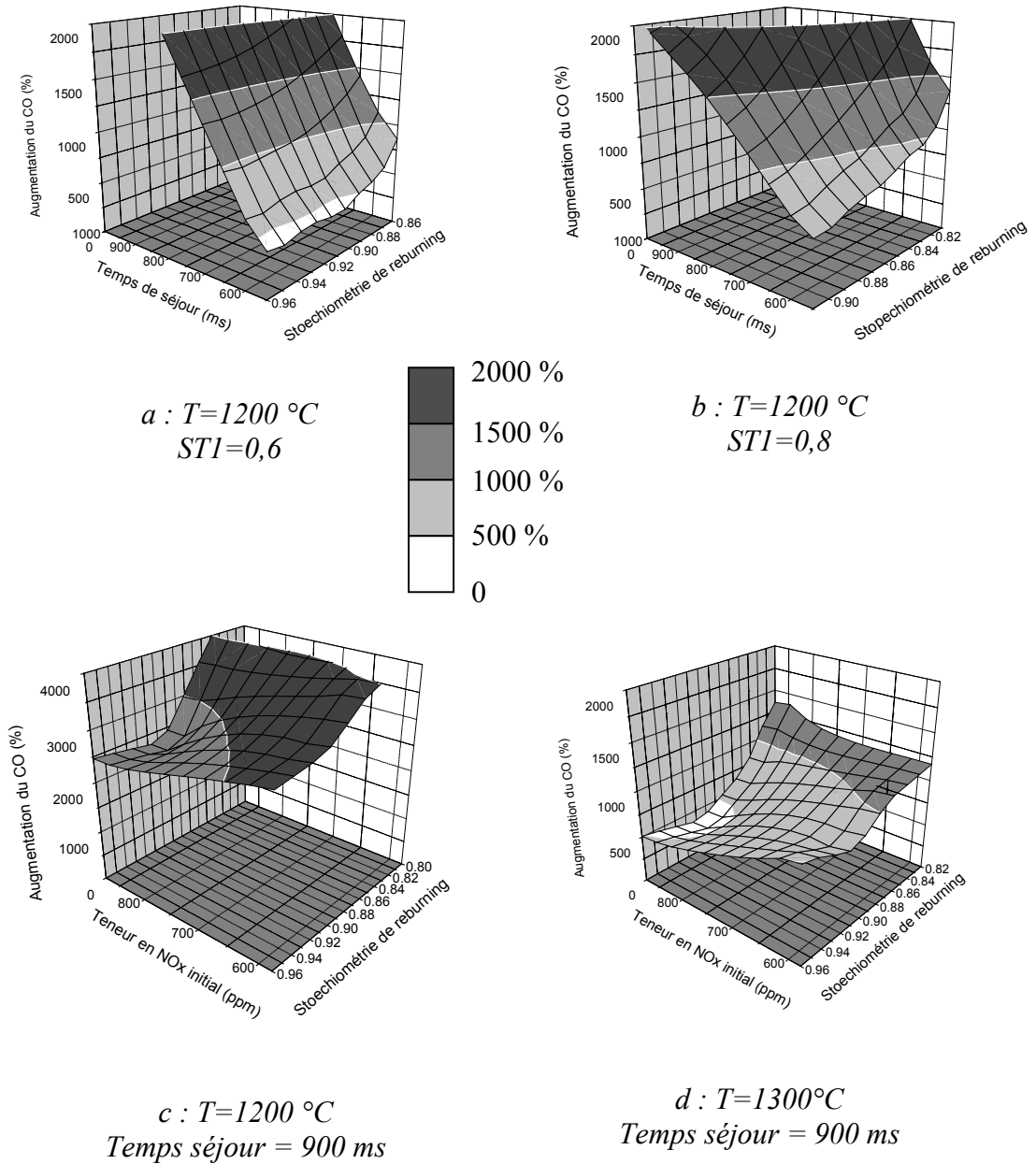


Figure A5.9 : Augmentation des émissions de CO (%) pour le charbon français

VII-2 Résultats avec le charbon colombien comme combustible de reburning

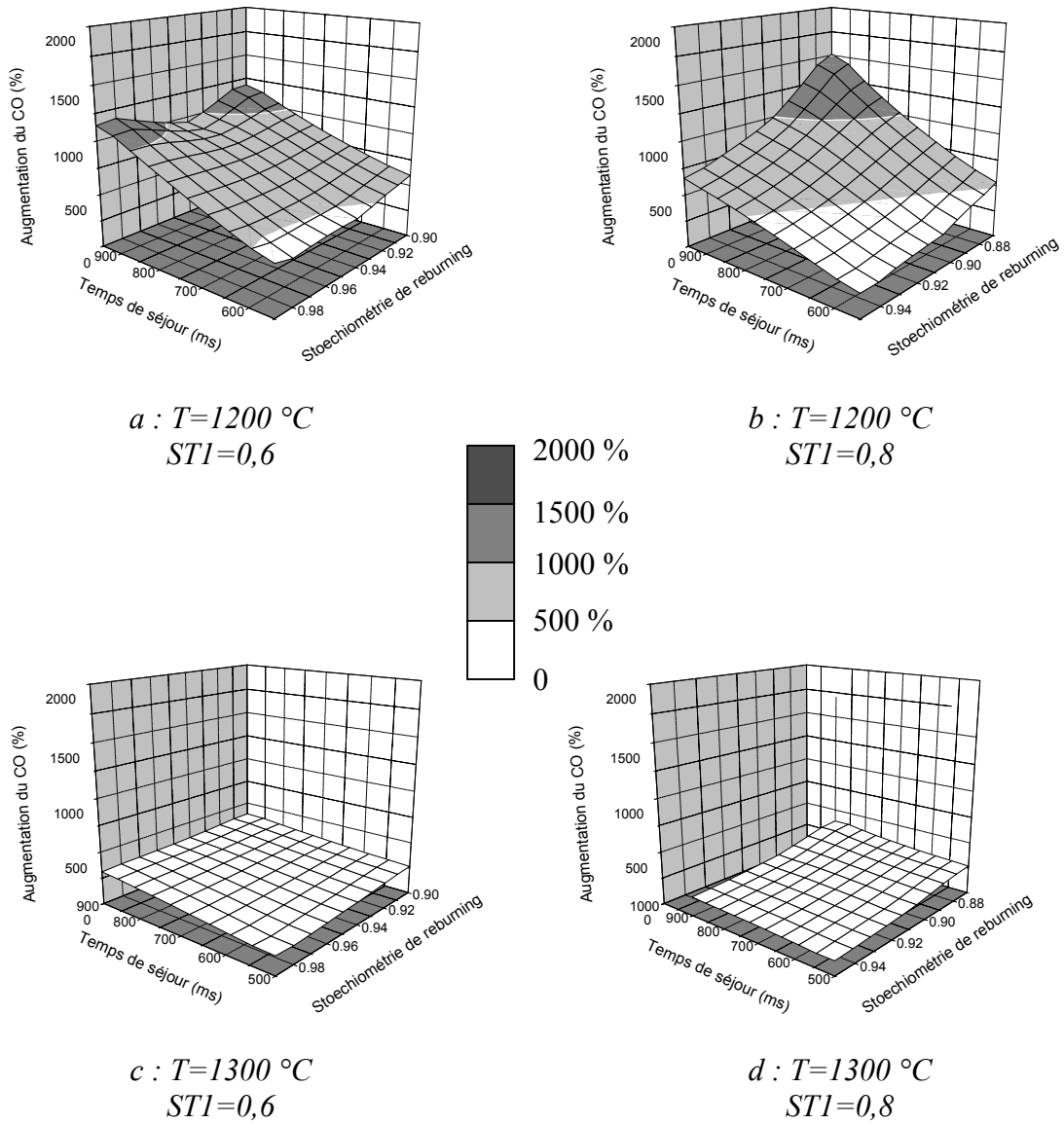


Figure A5.10 : Augmentation des émissions de CO (%) pour le charbon colombien

VII-3 Résultats avec le charbon sud-africain comme combustible de reburning

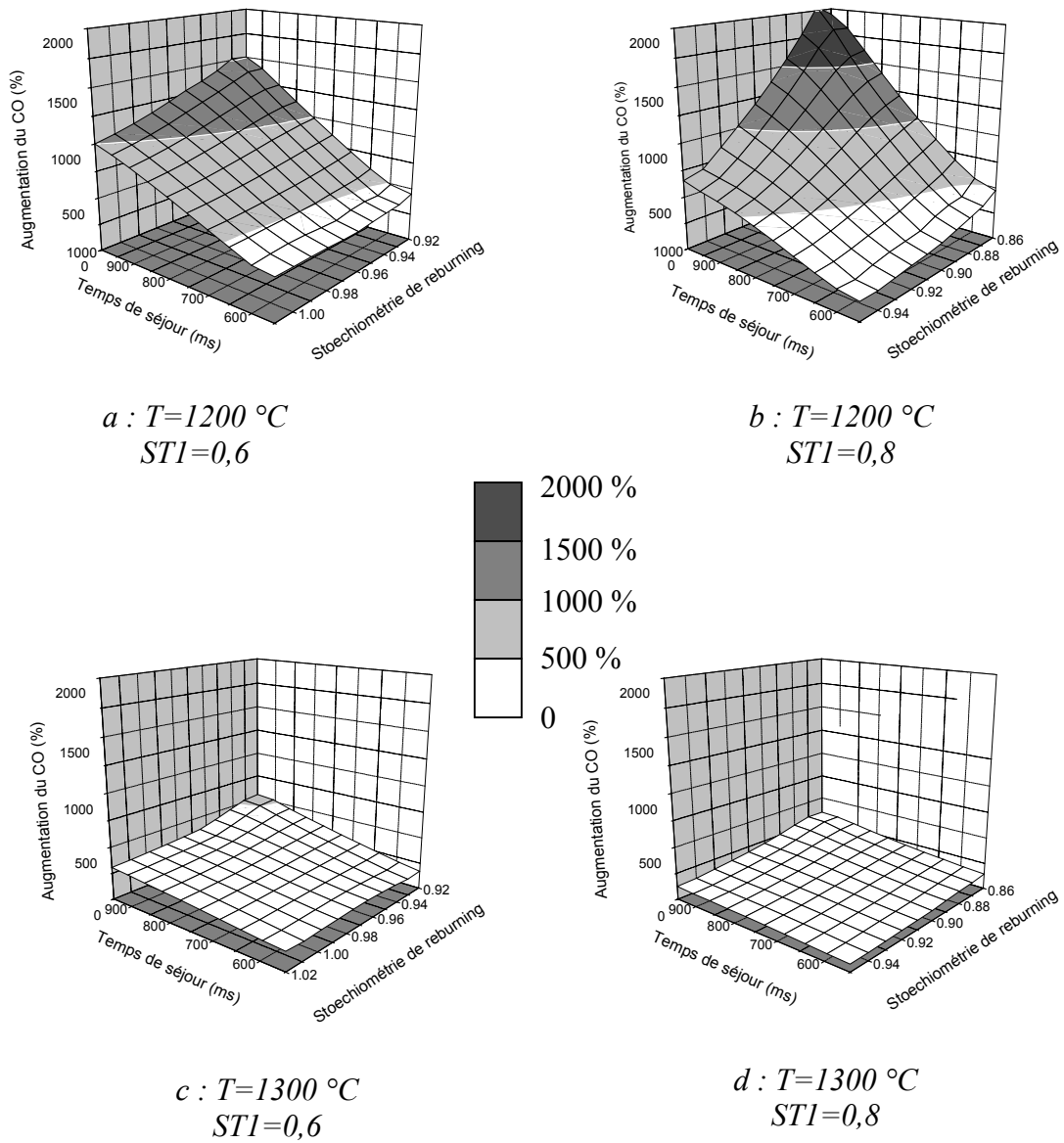
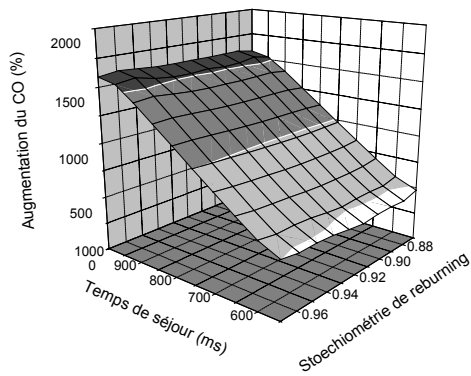
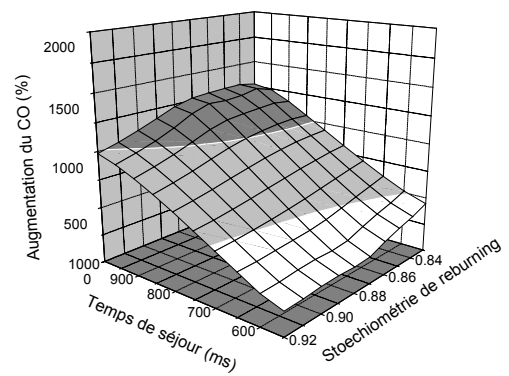


Figure A5.11 : Augmentation des émissions de CO (%) pour le charbon sud-africain

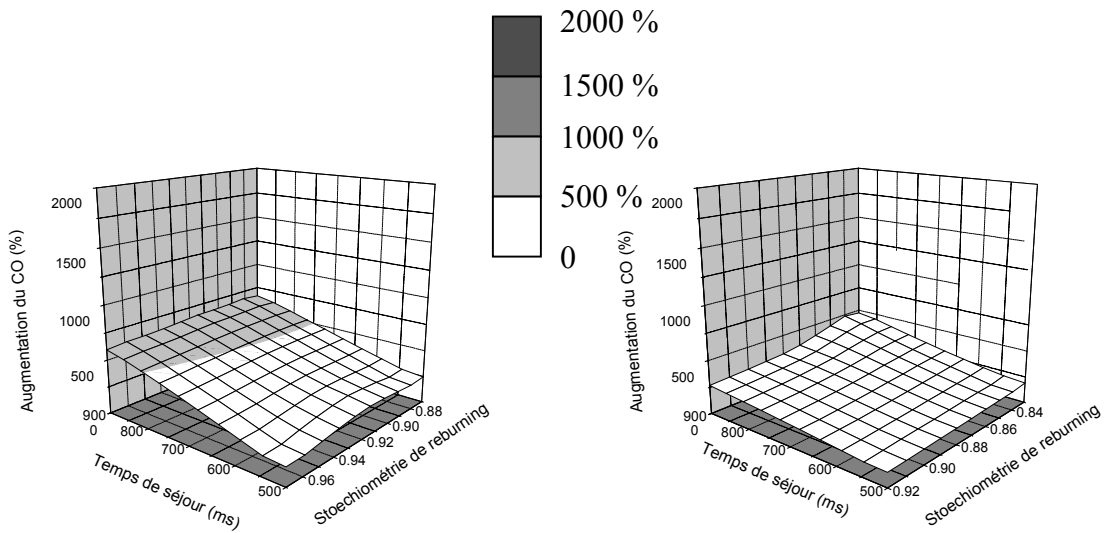
VII-4 Résultats avec le charbon polonais comme combustible de reburning



*a* :  $T=1200\text{ }^{\circ}\text{C}$   
 $STI=0,6$



*b* :  $T=1200\text{ }^{\circ}\text{C}$   
 $STI=0,8$



*c* :  $T=1300\text{ }^{\circ}\text{C}$   
 $STI=0,6$

*d* :  $T=1300\text{ }^{\circ}\text{C}$   
 $STI=0,8$

Figure A5.12 : Augmentation des émissions de CO (%) pour le charbon polonais

VIII – Augmentation de la teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes par rapport à une flamme de référence à 20 % d’excès d’air

VIII-1 Résultats avec le charbon français comme combustible de reburning

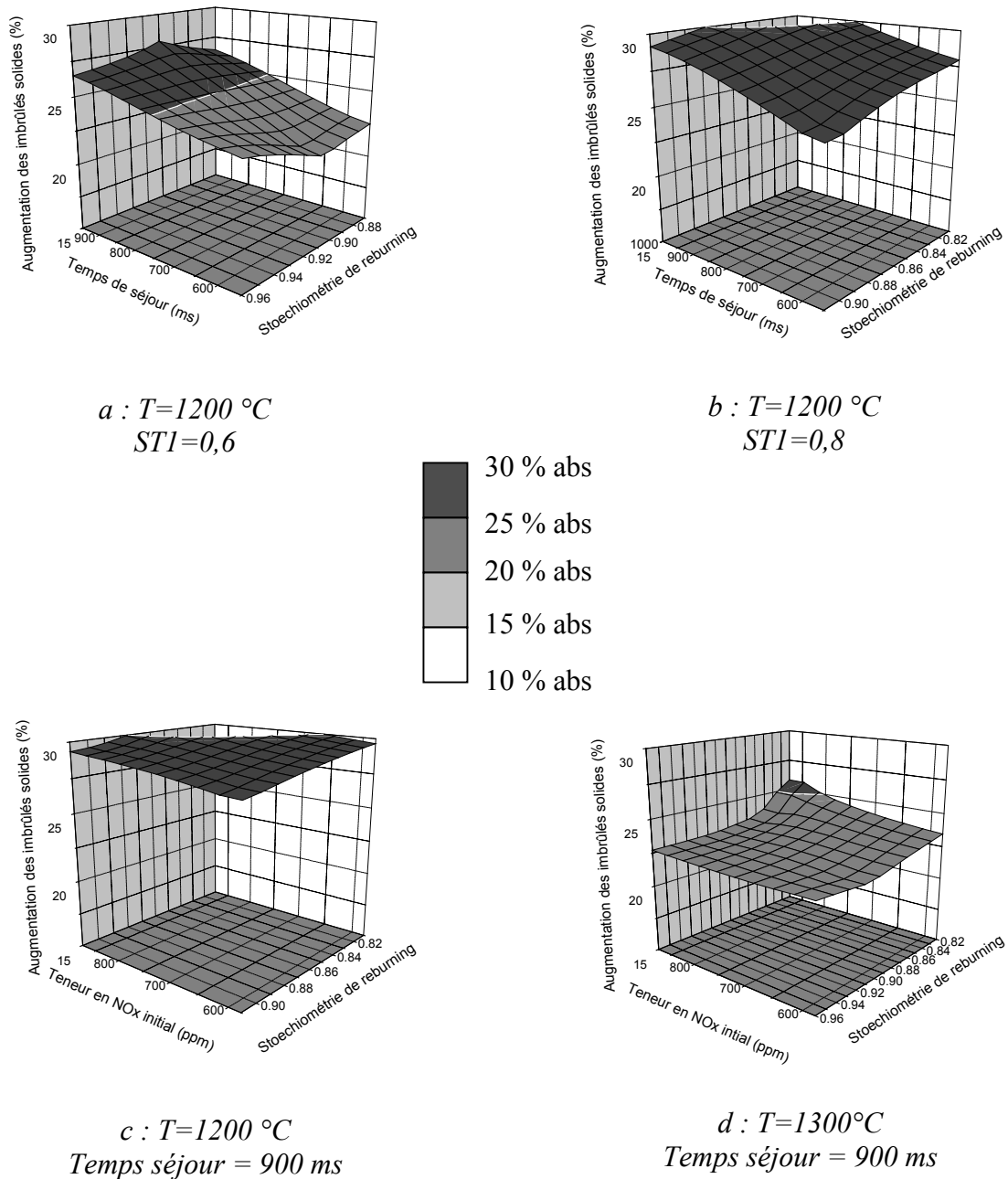


Figure A5.13 : Augmentation des imbrûlés solides (% abs) pour le charbon français



VIII-2 Résultats avec le charbon colombien comme combustible de reburning

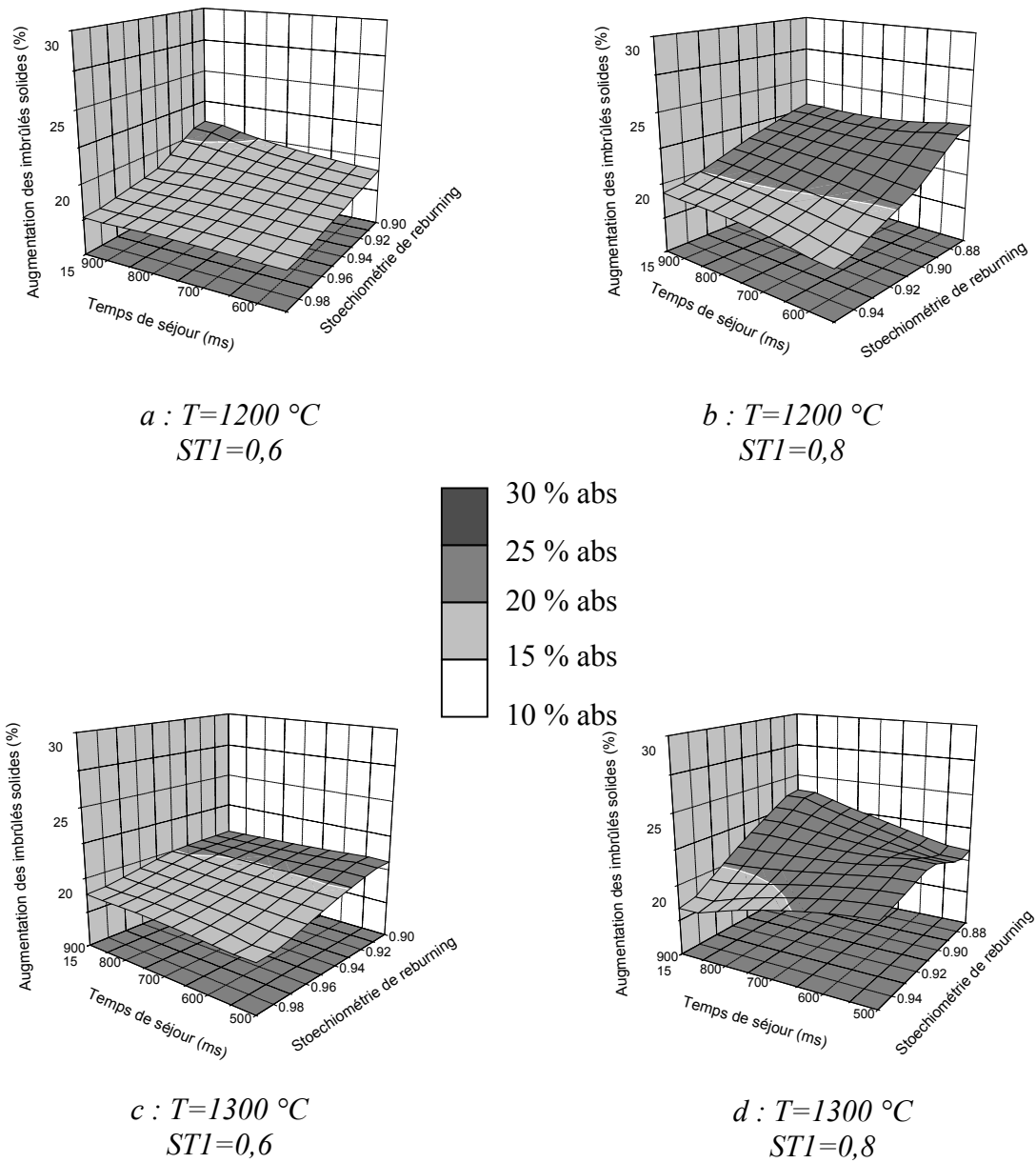
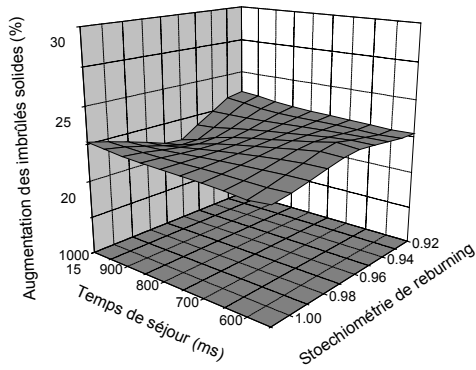
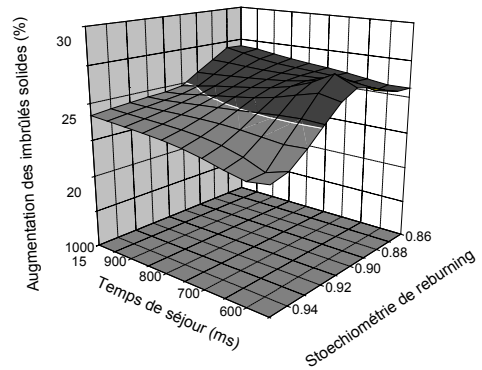


Figure A5.14 : Augmentation des imbrûlés solides (% abs) pour le charbon colombien

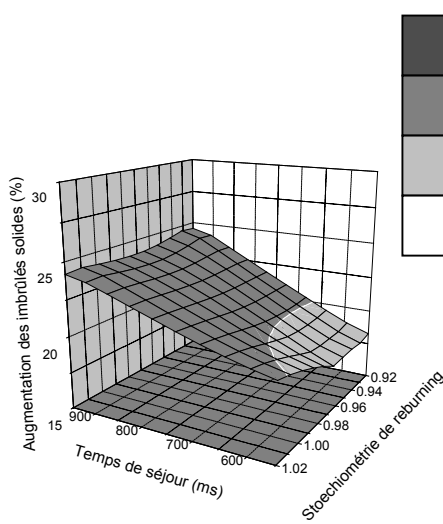
VIII-3 Résultats avec le charbon sud-africain comme combustible de reburning



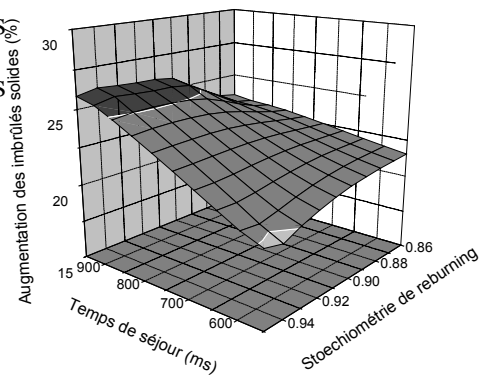
*a* :  $T=1200\text{ °C}$   
 $STI=0,6$



*b* :  $T=1200\text{ °C}$   
 $STI=0,8$



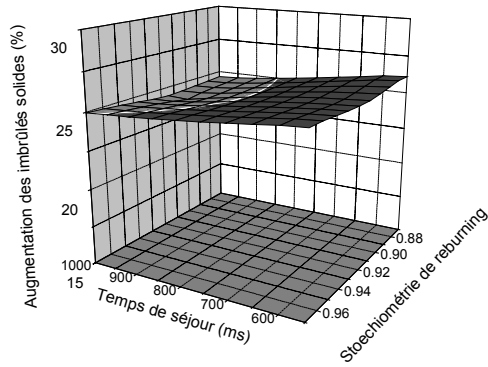
*c* :  $T=1300\text{ °C}$   
 $STI=0,6$



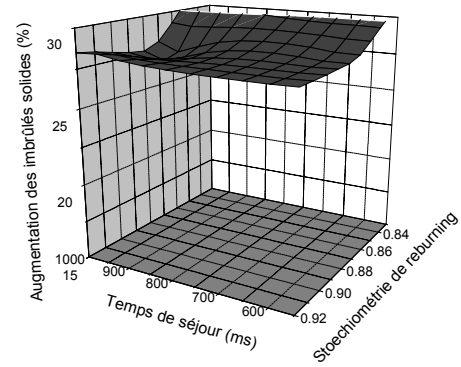
*d* :  $T=1300\text{ °C}$   
 $STI=0,8$

Figure A5.15 : Augmentation des imbrûlés solides (% abs) pour un charbon sud-africain

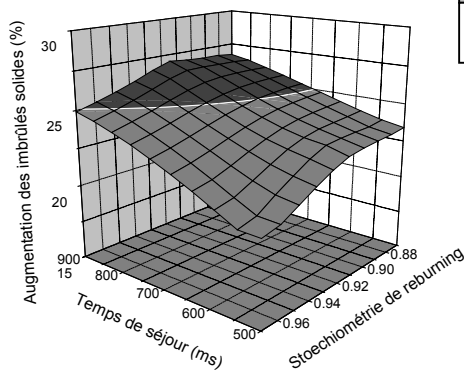
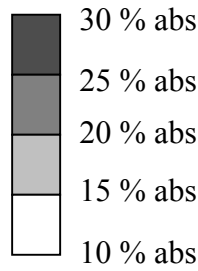
VIII-4 Résultats avec le charbon polonais comme combustible de reburning



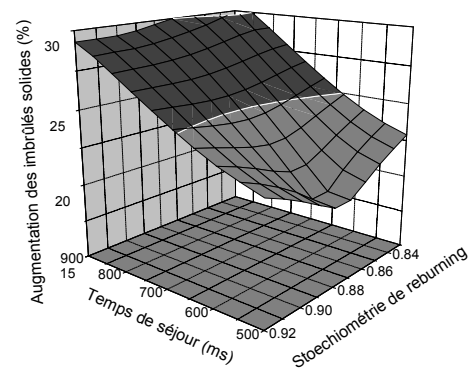
a :  $T=1200\text{ °C}$   
 $ST1=0,6$



b :  $T=1200\text{ °C}$   
 $ST1=0,8$



c :  $T=1300\text{ °C}$   
 $ST1=0,6$



d :  $T=1300\text{ °C}$   
 $ST1=0,8$

Figure A5.16 : Augmentation des imbrûlés solides (% abs) pour le charbon polonais

## **ANNEXE 6**

# **CARTOGRAPHIES**

## I - Cartographie du four lors du reburning au gaz naturel

## I-1 Cartographie 1

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	Teneur en NO (ppm)	Teneur en CO (ppm)	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)
750	-700	3	745	300	15,3
750	-600	3,15	760	600	15,3
750	-500	3,2	800	1500	15,05
750	-400	3,45	797	2375	14,7
750	-300	3,25	770	1275	14,9
750	-200	3,7	730	500	14,8
750	-100	3,65	680	285	14,9
750	0	3,65	665	210	14,7
950	-700	3	766	390	15,4
950	-600	2,85	792	855	15,3
950	-450	2,9	790	1250	14,9
950	-300	2,8	750	650	15,2
950	-150	2,9	700	250	15,5
950	0	3	660	170	15,3
1100	-700	2,15	744	715	15,6
1100	-600	2,15	752	1053	15,5
1100	-450	2,2	743	850	15,5
1100	-300	2,3	708	328	15,8
1100	-150	2,35	640	140	15,7
1100	0	2,5	620	125	15,7
1300	-700	2,1	740	800	15,8
1300	-600	2,2	733	800	15,5
1300	-450	2	720	330	15,9
1300	-300	2,2	680	250	15,9
1300	-150	2,2	640	150	15,8
1300	0	2,2	620	225	15,8
2356	-700	1,6	314	380	15,4
2356	-600	1,5	337	588	15,6
2356	-450	1,4	396	890	15,7
2356	-300	1,1	407	6100	15,5
2356	-200	0,75	382	9500	15,1
2356	-100	0,8	375	10500	15
2356	0	0,8	375	11500	14,4
2600	-700	1,7	300	525	15,2
2600	-600	1,7	325	850	15,3
2600	-450	1,3	330	1950	15,5
2600	-300	1,06	320	7000	15,35
2600	-150	0,9	280	9000	14,9
2600	0	0,9	265	10000	15
2917	-700	1,6	280	1200	15,4
2917	-600	1,8	300	1500	15,2
2917	-450	1,75	273	2000	15,1
2917	-300	1,7	245	2250	15
2917	-150	1,9	240	3000	14,9
2917	0	1,8	240	2250	15

Tableau A6.1 : Mesures des teneurs des gaz de combustion

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	Teneur en NO (ppm)	Teneur en CO (ppm)	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)
3250	-700	2,7	260	1000	15,12
3250	-600	1,8	250	900	15
3250	-450	2	230	670	14,9
3250	-300	2,5	215	780	14,5
3250	-150	2,6	210	850	14,5
3250	0	2,5	215	650	14,5
3762	-700	2	270	250	14,95
3762	-600	1,7	240	350	15,1
3762	-450	2	236	280	14,7
3762	-300	3	225	240	14,1
3762	-150	3,8	210	300	14,4
3762	0	3,24	200	600	13,9
4883	-680	3,9	219	580	13,3
4883	-600	3,9	207	530	13,3
4883	-450	3,6	210	560	13,55
4883	-300	3,9	205	700	14
4883	-150	4,7	210	400	12,6
4883	0	5,6	187	700	11,75

Tableau A6.1 : Mesures des teneurs des gaz de combustion (fin)

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
750	-700	1290
750	-550	1370
750	-450	1403
750	-400	1403
750	-350	1410
750	-300	1400
750	-250	1373
750	-200	1378
750	-150	1340
750	-100	1335
750	-50	1320
750	0	1288
950	-700	1320
950	-550	1386
950	-450	1380
950	-350	1365
950	-250	1311
950	-150	1282
950	-50	1256
950	0	1250

Tableau A6.2 : Mesures des températures

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
1100	-700	1303
1100	-550	1354
1100	-450	1353
1100	-350	1320
1100	-250	1280
1100	-150	1255
1100	-50	1223
1100	0	1222
1300	-700	1294
1300	-550	1328
1300	-450	1317
1300	-350	1290
1300	-250	1265
1300	-150	1234
1300	-50	1208
1300	0	1200
1500	-700	1220
1500	-550	1271
1500	-500	1264
1500	-450	1260
1500	-350	1243
1500	-250	1225
1500	-150	1191
1500	-100	1187
1500	-50	1170
1500	0	1170
2368	-700	900
2368	-600	940
2368	-500	990
2368	-400	1053
2368	-300	1085
2368	-200	1123
2368	-150	1110
2368	-100	1110
2368	-50	1085
2368	0	1110
2600	-700	890
2600	-600	940
2600	-500	972
2600	-400	1010
2600	-300	1020
2600	-200	1036
2600	-100	1028
2600	0	1050

Tableau A6.2 : Mesures des températures (suite)

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
2850	-700	880
2850	-600	929
2850	-500	943
2850	-400	950
2850	-300	954
2850	-200	949
2850	-100	945
2850	0	970
3250	-700	850
3250	-600	875
3250	-500	877
3250	-400	865
3250	-300	860
3250	-200	856
3250	-100	858
3250	0	855
3989	-700	795
3989	-600	847
3989	-450	870
3989	-300	860
3989	-150	810
3989	0	760
4900	-700	505
4900	-600	543
4900	-450	610
4900	-300	705
4900	-200	746
4900	-100	740
4900	0	720
5500	-700	520
5500	-600	560
5500	-450	605
5500	-300	690
5500	-200	720
5500	-100	735
5500	0	715

*Tableau A6.2 : Mesures des températures (fin)*



## I-2 Cartographie 2

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	Teneur en NO (ppm)	Teneur en CO (ppm)	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)
700	-700	1,95	681	395	16,1
700	-600	2,21	707	730	15,75
700	-450	2,35	758	2400	15,3
700	-300	2,38	781	3500	15,17
700	-150	2,4	711	1285	15,43
700	0	2,82	673	600	15,29
1094	-700	1,95	668	880	16,11
1094	-600	1,73	690	1420	16,12
1094	-450	1,88	684	1250	16,06
1094	-300	1,97	649	410	16,08
1094	-150	2,13	634	200	16,2
1094	0	2,1	607	125	16,2
1300	-530	1,66	693	740	16,3
1300	-450	1,73	668	526	16,34
1300	-300	1,9	633	289	16,29
1300	-150	1,89	592	129	16,3
1300	0	1,88	576	135	16,47
2350	-700	1,4	350	350	16
2350	-600	1,45	350	350	16
2350	-450	1,4	415	850	16,2
2350	-300	1	440	4000	16,1
2350	-150	0,9	438	6000	15,7
2350	0	0,9	432	8000	15,7
2750	-700	1,7	300	400	15,8
2750	-600	1,7	320	400	15,7
2750	-450	1,3	325	2400	16
2750	-300	1,2	320	3000	15,9
2750	-150	1,3	305	5000	15,6
2750	0	1,4	289	5000	15,4
3165	-688	1,5	265	670	15,65
3165	-600	1,55	274	860	15,61
3165	-450	1,7	263	1060	15,48
3165	-300	2,05	240	1200	15,15
3165	-150	2,3	240	1000	15
3165	0	2,5	233	700	14,8
3552	-690	1,71	270	540	15,49
3552	-600	1,72	270	500	15,53
3552	-450	1,95	258	525	15,37
3552	-300	2,45	240	485	15,02
3552	-150	2,85	223	540	14,58
3552	0	3,22	222	648	14,17
3721	-600	1,72	260	488	15,33
3721	-300	2,23	240	350	14,96
3721	0	3,68	220	445	13,71

Tableau A6.3 : Mesures des teneurs des gaz de combustion

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	Teneur en NO (ppm)	Teneur en CO (ppm)	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)
4880	-700	3,3	200	1000	13,7
4880	-600	3,1	195	1000	14
4880	-450	2,6	200	1600	14,4
4880	-300	2,24	207	1800	14,7
4880	-150	4	195	1400	13,2
4880	0	5,3	192	900	12,1

Tableau A6.3 : Mesures des teneurs des gaz de combustion (fin)

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
750	-700	1370
750	-600	1412
750	-500	1432
750	-400	1450
750	-300	1430
750	-200	1405
750	-100	1390
750	0	1365
923	-695	1372
923	-600	1385
923	-500	1382
923	-400	1368
923	-300	1345
923	-200	1303
923	-100	1285
923	0	1295
1100	-700	1330
1100	-600	1352
1100	-500	1345
1100	-400	1320
1100	-300	1285
1100	-200	1260
1100	-100	1250
1100	0	1230
1300	-500	1287
1300	-400	1267
1300	-300	1240
1300	-200	1225
1300	-100	1202
1300	0	1186
2400	-700	860
2400	-600	900
2400	-450	960
2400	-300	1018
2400	-150	1028
2400	0	1022

Tableau A6.4 : Mesures des températures

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
2780	-700	840
2780	-600	880
2780	-450	907
2780	-300	910
2780	-150	904
2780	0	900
3200	-700	828
3200	-600	854
3200	-450	845
3200	-300	835
3200	-150	827
3200	0	830
3600	-700	820
3600	-600	845
3600	-450	850
3600	-300	810
3600	-150	795
3600	0	775
4900	-700	480
4900	-600	520
4900	-450	580
4900	-300	679
4900	-150	715
4900	0	700
5500	-700	500
5500	-600	530
5500	-450	585
5500	-300	650
5500	-150	705
5500	0	690

*Tableau A6.4 : Mesures des températures (fin)*

**I-3 Cartographie 3**

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	Teneur en NO (ppm)	Teneur en CO (ppm)	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)
1090	-700	0,864	657	3291	16,44
1090	-600	0,891	651	3502	16,36
1090	-450	0,890	592	2626	16,31
1090	-300	0,876	484	1475	16,23
1090	-150	0,875	414	1333	16,14
1090	0	1,148	976	391	15,90
1300	-600	0,950	611	2334	16,40
1300	-450	0,808	523	1737	16,42
1300	-300	0,744	416	1575	16,28
1300	-200	0,691	363	1828	16,25
1300	-100	0,745	340	1715	16,19
1300	0	0,832	332	1534	16,16

*Tableau A6.5 : Mesures des teneurs des gaz de combustion*

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	Teneur en NO (ppm)	Teneur en CO (ppm)	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)
2146	-700	0,547	461	2264	16,52
2146	-600	0,673	451	1853	16,35
2146	-450	0,955	382	2022	15,86
2146	-300	1,298	314	1949	15,33
2146	-150	1,891	277	1597	14,87
2146	0	2,125	277	1561	14,68
2350	-700	0,747	393	1254	16,08
2350	-600	0,851	388	1384	15,94
2350	-450	0,976	338	2099	15,64
2350	-300	1,392	290	1993	15,18
2350	-150	1,992	258	1872	14,75
2350	0	2,261	256	1978	14,55
2550	-700	0,680	361	1351	15,78
2550	-600	0,710	341	1602	15,77
2550	-450	0,798	299	2119	15,56
2550	-300	1,238	262	1986	15,18
2550	-150	2,371	251	1193	14,36
2550	0	2,975	243	1156	13,91
2750	-600	0,654	342	1456	15,81
2750	-450	0,615	311	2075	15,75
2750	-300	0,951	283	2023	15,44
2750	-150	2,256	256	1365	14,29
2750	0	3,568	238	1693	13,20
3750	-700	3,124	269	907	13,73
3750	-600	3,363	260	1003	13,50
3750	-450	3,159	249	1412	13,71
3750	-300	2,841	268	1023	14,04
3750	-150	3,570	267	702	13,47
3750	0	5,068	237	1515	12,21

*Tableau A6.5 : Mesures des teneurs des gaz de combustion (fin)*

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
1300	-680	1260
1300	-600	1265
1300	-450	1235
1300	-300	1200
1300	-150	1190
1300	0	1160
1535	-670	1215
1535	-600	1225
1535	-450	1200
1535	-300	1175
1535	-150	1150
1535	0	1140

*Tableau A6.6 : Mesures des températures*

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
2450	-700	970
2450	-600	1020
2450	-450	1005
2450	-300	973
2450	-150	945
2450	0	935
2750	-700	960
2750	-600	1000
2750	-450	1005
2750	-300	1000
2750	-150	915
2750	0	860
3000	-687	930
3000	-600	960
3000	-450	975
3000	-300	975
3000	-150	910
3000	0	810
3800	-680	575
3800	-600	590
3800	-450	615
3800	-300	700
3800	-150	795
3800	0	780

*Tableau A6.6 : Mesures des températures (fin)*

**I-4 Cartographie 4**

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	Teneur en NO (ppm)	Teneur en CO (ppm)	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)
1100	-700	1,535	706	2039	15,68
1100	-600	1,575	694	2133	15,59
1100	-450	1,424	653	1294	15,69
1100	-300	1,212	560	748	15,80
1100	-150	1,166	500	485	15,78
1100	0	1,087	475	516	15,79
1300	-700	1,581	688	1537	15,68
1300	-600	1,532	680	1268	15,69
1300	-450	1,101	585	1184	15,89
1300	-300	0,984	495	643	15,87
1300	-150	0,973	432	512	15,80
1300	0	1,052	414	476	15,70

*Tableau A6.7 : Mesures des teneurs des gaz de combustion*

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	Teneur en NO (ppm)	Teneur en CO (ppm)	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)
2300	-700	1,149	498	492	15,83
2300	-600	1,141	473	771	15,74
2300	-450	1,140	400	1709	15,45
2300	-300	1,501	351	1777	15,01
2300	-150	2,113	313	1111	14,57
2300	0	2,401	306	983	14,34
2550	-700	1,006	421	652	15,68
2550	-600	0,997	409	1004	15,67
2550	-450	1,049	351	1804	15,42
2550	-300	1,489	315	1519	15,10
2550	-150	2,442	296	824	14,44
2550	0	3,014	288	727	13,98
2750	-700	0,938	399	707	15,78
2750	-600	0,952	392	939	15,76
2750	-450	0,909	354	1577	15,66
2750	-300	1,339	320	1355	15,29
2750	-150	2,623	298	653	14,35
2750	0	3,722	287	642	13,42
3750	-600	2,660	316	681	14,40
3750	-450	2,812	317	517	14,29
3750	-300	2,405	321	495	14,62
3750	-150	3,519	307	405	13,67
3750	0	5,007	268	783	12,33

Tableau A6.7 : Mesures des teneurs des gaz de combustion (fin)

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
1300	-670	1283
1300	-600	1278
1300	-450	1220
1300	-300	1155
1300	-150	1135
1300	-100	1140
1300	0	1130
1500	-680	1250
1500	-600	1240
1500	-450	1182
1500	-300	1120
1500	-150	1095
1500	0	1098
2350	-700	960
2350	-600	1027
2350	-450	1020
2350	-300	985
2350	-150	950
2350	0	940

Tableau A6.8 : Mesures des températures

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
2596	-700	940
2596	-600	995
2596	-450	1005
2596	-300	975
2596	-150	925
2596	0	890
2771	-700	930
2771	-600	980
2771	-450	1000
2771	-300	975
2771	-150	915
2771	0	850
2994	-700	880
2994	-600	907
2994	-450	910
2994	-300	905
2994	-150	845
2994	0	790
3800	-700	570
3800	-600	600
3800	-450	640
3800	-300	710
3800	-150	770
3800	0	725

Tableau A6.8 : Mesures des températures (fin)

## II - Cartographie du four lors du reurning au charbon

## II-1 cartographie 1

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	Teneur en NO (ppm)	Teneur en CO (ppm)	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)
1100	-600	1,23	678,03	552,75	17,04
1100	-500	1,61	719,15	444,54	16,66
1100	-400	1,91	724,36	479,43	16,38
1100	-350	2,13	725,97	540,84	16,22
1100	-300	2,27	724,12	612,37	16,12
1100	-250	2,28	711,89	619,64	16,15
1100	-200	2,22	696,97	583,59	16,24
1100	-150	2,02	669,29	728,20	16,44
1100	-100	1,77	640,18	776,56	16,73
1100	-50	1,53	614,09	1367,29	16,91
1100	0	1,99	588,21	415,04	16,59
1500	-600	1,82	680,18	451,65	16,47
1500	-500	1,85	677,65	399,91	16,46
1500	-400	1,86	644,79	402,44	16,48
1500	-350	1,92	650,20	415,69	16,46
1500	-300	1,69	611,07	930,42	16,64
1500	-250	1,66	584,59	967,89	16,69
1500	-200	1,73	589,16	698,25	16,69
1500	-150	1,45	538,32	1860,24	16,83
1500	-100	1,28	516,85	2349,82	16,97
1500	-50	2,59	600,42	438,48	15,96
1500	0	2,66	604,70	100,84	15,96
2400	-600	0,57	394,65	5256,82	16,93
2400	-500	0,61	422,28	5335,11	17,16
2400	-400	0,59	397,84	5106,31	17,21
2400	-350	0,65	394,37	5324,77	17,02
2400	-300	0,80	438,77	3851,80	17,25
2400	-250	0,61	396,89	4491,78	17,28
2400	-200	0,56	379,49	4862,38	17,21
2400	-150	0,56	389,56	4976,88	17,32
2400	-100	0,55	372,35	5114,98	17,27
2400	-50	0,45	351,28	5311,38	17,18
2400	0	0,61	376,82	4905,25	17,20
2800	-600	1,06	459,86	2978,28	16,95
2800	-500	1,12	467,46	2619,03	16,94
2800	-400	0,99	445,63	2631,71	17,06
2800	-350	1,04	436,46	2254,62	17,03
2800	-300	1,12	431,11	1938,57	16,98
2800	-250	1,15	416,03	1804,69	16,95
2800	-200	1,15	398,85	2000,66	16,96
2800	-150	1,18	400,50	1836,69	16,95
2800	-100	1,27	389,32	2175,29	16,82
2800	-50	1,17	385,25	2362,45	16,90
2800	0	1,39	396,32	1850,87	16,77

Tableau A6.9 : Mesures des teneurs des gaz de combustion



ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	Teneur en NO (ppm)	Teneur en CO (ppm)	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)
3200	-600	1,51	466,97	938,16	16,73
3200	-500	1,47	450,97	960,01	16,73
3200	-400	1,60	430,94	936,62	16,60
3200	-300	1,62	409,09	887,84	16,59
3200	-200	1,97	384,49	941,06	16,25
3200	-100	2,18	377,26	899,60	16,07
3200	0	2,26	370,94	908,79	15,97
4200	-600	2,34	404,71	534,08	16,04
4200	-450	3,00	400,37	608,30	15,40
4200	-300	3,49	375,18	716,67	14,95
4200	-150	3,86	362,27	771,68	14,61
4200	0	4,16	349,00	679,63	14,29

Tableau A6.9 : Mesures des teneurs des gaz de combustion (fin)

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
950	-700	1227
950	-600	1298
950	-500	1318
950	-450	1340
950	-400	1335
950	-350	1282
950	-300	1290
950	-250	1294
950	-200	1290
950	-150	1298
950	-100	1295
950	-50	1278
950	0	1271
1100	-682	1260
1100	-600	1300
1100	-500	1314
1100	-400	1321
1100	-300	1290
1100	-200	1291
1100	-100	1265
1100	-50	1247
1100	0	1240
1400	-700	1205
1400	-600	1262
1400	-500	1276
1400	-400	1275
1400	-300	1260
1400	-200	1245
1400	-100	1220
1400	-50	1196
1400	0	1195

Tableau A6.10 : Mesures des températures

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
1600	-700	1157
1600	-600	1210
1600	-500	1223
1600	-400	1232
1600	-300	1220
1600	-200	1194
1600	-100	1179
1600	0	1164
2400	-700	1056
2400	-600	1091
2400	-500	1098
2400	-400	1085
2400	-300	1075
2400	-200	1062
2400	-100	1040
2400	0	1009
2800	-700	998
2800	-600	1037
2800	-500	1064
2800	-400	1050
2800	-300	1011
2800	-200	991
2800	-100	965
2800	0	925
3200	-700	915
3200	-600	941
3200	-500	933
3200	-400	920
3200	-300	888
3200	-200	846
3200	-100	845
3200	0	833
3800	-700	841
3800	-600	846
3800	-450	773
3800	-300	745
3800	-100	724
3800	0	735
4500	-700	760
4500	-600	774
4500	-450	760
4500	-300	728
4500	-150	690
4500	0	672
5460	-700	530
5460	-600	556
5460	-450	584
5460	-300	703
5460	-150	703
5460	0	678

Tableau A6.10 : Mesures des températures (fin)

## II-2 Cartographie 2

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Teneur en O <sub>2</sub> (%)	Teneur en NO (ppm)	Teneur en CO (ppm)	Teneur en CO <sub>2</sub> (%)
1100	-700	1,40	670,82	1336,51	16,30
1100	-600	1,48	711,85	1780,60	16,41
1100	-500	1,73	723,40	1926,43	16,14
1100	-400	2,03	721,17	1557,12	15,92
1100	-300	2,14	706,47	902,54	15,90
1100	-200	1,96	651,75	796,90	16,13
1100	-100	1,58	585,81	1117,93	16,51
1100	0	1,48	543,86	1391,25	16,61
1500	-700	1,28	678,75	1017,87	16,75
1500	-600	1,39	675,75	1009,95	16,68
1500	-500	1,69	663,55	635,42	16,48
1500	-400	1,62	644,30	677,28	16,56
1500	-300	1,50	602,85	845,42	16,68
1500	-200	1,16	531,76	1971,32	16,92
1500	-100	0,93	473,45	2903,48	17,07
1500	0	1,02	465,36	2088,02	17,04
2150	-670	0,34	354,66	5334,62	16,11
2150	-600	0,40	420,68	5334,65	16,79
2150	-500	0,44	398,27	5334,68	16,66
2150	-400	0,47	348,20	5334,70	16,55
2150	-300	0,49	328,87	5334,71	16,67
2150	-200	0,79	313,60	5334,72	16,36
2150	-100	0,98	299,90	5334,74	15,82
2150	0	1,30	324,48	5334,71	15,67
2550	-670	0,47	362,30	5334,79	16,87
2550	-600	0,63	390,81	5312,15	16,98
2550	-500	0,87	382,94	4731,68	16,98
2550	-400	1,09	363,97	3571,46	16,91
2550	-300	1,48	366,32	2034,05	16,69
2550	-200	1,82	368,03	1180,84	16,47
2550	-100	2,10	367,13	586,11	16,27
2550	0	2,27	370,42	473,35	16,12
2950	-600	0,94	406,90	3271,28	17,13
2950	-500	1,14	395,97	2047,64	17,02
2950	-400	1,34	382,18	1291,26	16,91
2950	-300	1,78	380,58	623,56	16,60
2950	-200	2,21	385,55	435,56	16,26
2950	-100	2,68	402,56	190,03	15,85
2950	0	2,84	390,92	179,71	15,68
4250	-600	2,58	387,03	759,34	15,81
4250	-450	3,23	371,60	636,41	15,22
4250	-300	3,54	351,90	534,31	14,93
4250	-150	3,19	346,26	487,90	15,21
4250	0	6,59	267,83	348,27	12,06

Tableau A6.11 : Mesures des teneurs des gaz de combustion

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
950	-675	1271
950	-600	1310
950	-500	1340
950	-400	1362
950	-300	1361
950	-200	1340
950	-100	1300
950	0	1285
1100	-680	1250
1100	-600	1305
1100	-500	1325
1100	-400	1330
1100	-300	1302
1100	-200	1285
1100	-100	1245
1100	0	1230
1500	-675	1222
1500	-600	1245
1500	-500	1252
1500	-400	1250
1500	-300	1232
1500	-200	1208
1500	-100	1178
1500	0	1146
2390	-527	1050
2390	-500	1045
2390	-400	1010
2390	-300	972
2390	-200	950
2390	-100	943
2390	0	935
2756	-675	992
2756	-600	996
2756	-500	967
2756	-400	947
2756	-300	922
2756	-200	909
2756	-100	899
2756	0	895
3200	-680	900
3200	-600	900
3200	-500	890
3200	-400	885
3200	-300	875
3200	-200	865
3200	-100	855
3200	0	845

Tableau A6.12: Mesures des températures

ANNEXES

Distance axiale (mm)	Distance radiale (mm)	Température (°C)
4535	-680	590
4535	-600	600
4535	-500	600
4535	-400	640
4535	-300	690
4535	-200	745
4535	-100	755
4535	0	747

Tableau A6.12: Mesures des températures (fin)

## **ANNEXE 7**

# **EVOLUTION DES RESEAUX DE NEURONES**

## I - Les premiers réseaux de neurones

Le modèle théorique du neurone trouve ses origines dans la neurobiologie. En effet, ce sont deux neurobiologistes américains, Warren Mc Culloch et Walter Pitts qui ont proposé les premiers (1943) un modèle formel de la cellule nerveuse qui résumait en une formule simple, l'effet d'une impulsion nerveuse sur un neurone [92, 93]. Chaque neurone utilisé est un neurone logique : l'état d'activation du neurone est égal 0 ou 1 selon qu'il émet une impulsion nerveuse ou non. Chaque signal en entrée  $x_i$  est pondéré et l'on obtient la valeur en sortie  $y$  tel que  $y = f(\sum_{i=1,n} w_i x_i)$  où  $w_i$  est la pondération de la connexion [92, 93].

Donald Hebb (1943) proposait une hypothèse qui associait l'activité des neurones à l'efficacité des synapses qui les relie. Cette théorie est à la base de la plupart des méthodes d'apprentissage, supervisées ou non. Ainsi, le poids  $w_i$  de la connexion de deux neurones A et B est modifié lorsque les deux neurones sont simultanément activés. Le poids modifié de la connexion  $w_i(t + \Delta t)$  des deux neurones A et B, à l'instant  $t + \Delta t$ , s'écrit :

$$w_i(t + \Delta t) = w_i(t) + c a_A a_B \quad (\text{A7.1})$$

où  $c$  est une constante quelconque ( $0 < c \ll 1$ ),  $a_A$  et  $a_B$  sont les états d'activation (états booléens) respectivement des neurones A et B. Le terme  $a_A a_B$  représente la corrélation entre les activations des deux neurones A et B [88]. On note par  $t$  et  $t + \Delta t$  deux étapes successives de l'apprentissage, cette notation sera reprise par la suite.

Ces deux théories en décrivant formellement d'une part le comportement d'un réseau de neurones en fonction des neurones qui le constituent et en fonction des interconnexions entre neurones, constituent les deux fondements des réseaux de neurones.

## II - Le réseau de neurones Perceptron et l'algorithme Adaline

D'autres chercheurs des années 50 sont à l'origine de réseaux tel que le *perceptron* (de Frank Rosenblatt) ou d'algorithme d'apprentissage plus sophistiqué comme Adaline (de Widrow et Hoff, [89, 92, 93]).

### II-1-Le perceptron

Frank Rosenblatt s'intéressait à la possibilité d'expliquer les capacités d'association des êtres humains par des capacités équivalentes dans des modèles neuromimétiques. Ainsi, le *perceptron* devait modéliser le fonctionnement de la perception humaine et reproduire le comportement du cerveau : un des premiers exemples d'utilisation est la reconnaissance des lettres de l'alphabet. L'apprentissage est supervisé et se fait par corrections d'erreurs [88]. L'erreur sur la valeur des poids  $w_i$  est égale à :

$$\Delta w_i(t + \Delta t) = \eta x_i w_i(t) \quad (\text{A7.2})$$

où le facteur  $\eta$  est appelé coefficient ou taux d'apprentissage et  $x_i$  la donnée d'entrée au réseau [89].

### II-2-La règle d'apprentissage de Widrow-Hoff

La règle du perceptron est simple, mais ne fournit pas de fonction de coût permettant d'estimer la qualité de l'apprentissage c'est-à-dire en définitive la confiance que l'on peut placer dans le dispositif pour des données d'entrée inconnues [89]. Adaline, développée par Widrow et Hoff, est un modèle de réseau de neurones qui diffère du perceptron au sens où la fonction de transfert du neurone est une fonction dérivable : il y a alors une relation calculable

entre l'erreur à la sortie et les poids, et on peut espérer arriver à une convergence de l'apprentissage dans tous les cas, avec une erreur résiduelle faible (ou même nulle) seulement en cas de séparabilité linéaire.

Pour décrire ce modèle [89], on peut prendre le cas d'un ensemble d'exemples  $m$  ( $m=1, \dots, M$ ) présenté à un réseau mono-couche, constitué d'un neurone de sortie connecté à une couche perceptive  $x_i$  ( $i=0, \dots, n$  ;  $x_0=1$ ) par des poids  $w_i$ . Si l'on pose que la sortie désirée ou estimée vaut  $Y^m$  quand on présente la  $m^{\text{ème}}$  donnée (ou exemple)  $x_i^m$ , alors que la sortie effective (réelle) du neurone est  $y^m = f(\sum_1^n w_i x_i^m)$ , on peut calculer l'erreur quadratique ou la fonction de coût sur l'ensemble des données d'entrée  $m$  ; cette erreur ou cette fonction vaut :

$$E = \frac{1}{2} \sum_m (Y^m - y^m)^2 \quad (\text{A7.3})$$

On introduit le coefficient  $\frac{1}{2}$  pour simplifier l'écriture de la dérivée. La minimisation de cette fonction ou de cette erreur permet d'optimiser les paramètres du réseau. En remplaçant  $y^m$  par son expression et en dérivant  $E$  par rapport à  $w_i$ , on trouve :

$$\frac{\partial E}{\partial w_i} = -(\sum_m (Y^m - y^m)) x_i^m f'(\sum_i^n w_i x_i^m) \quad (\text{A7.4})$$

Pour diminuer l'erreur à la présentation de la donnée d'entrée  $x_i^m$ , il faut calculer un  $\Delta w_i$  dans le sens opposé à ce gradient, soit donc :

$$\Delta w_i^m = \eta (\sum_m (Y^m - y^m)) x_i^m f'(\sum_i^n w_i x_i^m) = \eta \cdot \delta^m x_i^m \quad (\text{A7.5})$$

où  $\delta^m$  est égal à la différence  $f'(y^m) \sum_m (Y^m - y^m)$ ,  $v^m$  étant l'activation pondérée du neurone et  $\eta$  étant un coefficient d'apprentissage que l'on retrouve également à l'équation (A7.2).

Globalement, on pourra écrire que les poids  $w_i$  de la connexion  $i$  évoluent dans le temps grâce à la relation (A7.5) et sont définis par la relation :

$$w_i^m(t + \Delta t) = w_i^m(t) + \eta \delta^m x_i^m \quad (\text{A7.6})$$

où  $\eta$  est compris entre 0 et 1, sa valeur influence le temps d'apprentissage et dans certain cas, il varie en fonction du temps : on commence avec une valeur élevée et puis on diminue à chaque itération.

Cette méthode de minimisation d'erreur par descente du gradient porte plusieurs noms, le plus connu étant certainement celui de règle de Widrow-Hoff. Le taux d'apprentissage  $\eta$  joue un rôle important puisqu'il règle la vitesse avec laquelle se fait la descente du gradient. Trop petit, il ne permet d'atteindre une valeur suffisamment faible de l'erreur qu'au bout d'un très grand nombre de pas, et même fait encourir le risque de tomber dans un minimum local non satisfaisant, duquel il est impossible de sortir. Trop grand, il peut conduire à s'éloigner du minimum d'erreur recherché, donc il ne peut empêcher une solution acceptable d'être trouvée. Le modèle permet donc d'ajuster les poids en fonction de l'erreur quadratique et permet au réseau Adaline de donner des solutions approchées, quoique plus robustes car l'erreur est minimisée [89].



### III - Différentes fonctions d'activation ou de transfert

La fonction d'activation joue un rôle prépondérant dans le comportement d'un neurone, et de là, du réseau entier. Au cours des années, plus d'une fonction a été proposée dans la littérature. Les fonctions les plus couramment utilisées, ici appliquées à un réseau perceptron monocouche à 1 neurone de sortie, sont [87, 88, 89]:

- La fonction linéaire qui est égale à  $y = \sum_i w_i x_i$ .
- La fonction seuil : le seuillage introduit une non linéarité dans le comportement du neurone. Cependant, il limite la gamme de ses réponses possibles à deux valeurs :  $y=1$  si  $\sum_i w_i x_i \geq \Theta_i$  ou 0 autrement.
- La fonction tangente hyperbolique (ou sigmoïde tangentielle) dont la dérivée est maximale pour un argument nul, et tend vers zéro pour un argument grand en valeur absolue :  $y = \tanh(\sum_i w_i x_i)$ . La sortie du neurone varie entre  $-1$  et  $+1$ ,
- La fonction sigmoïde (appelée sigmoïde exponentielle) qui est une homothétie de la tangente hyperbolique et varie entre 0 et  $+1$  :  

$$y = \frac{1}{1 + e^{-\sum_i w_i x_i}}$$
- La fonction gaussienne souvent employée pour les réseaux de neurones RBF. La fonction d'activation est alors employée en conjonction avec une fonction de pondération spéciale : l'activation pondérée est fonction de la distance entre l'activation reçue par le neurone sur un lien et le poids de ce lien :  $v = \sqrt{\sum_i (w_i - x_i)^2}$  d'où  $y = e^{-\frac{v^2}{2\sigma^2}}$
- La fonction stochastique qui détermine la probabilité que l'activation d'un neurone soit à 1 :  $P(y = 1) = \frac{1}{1 + e^{-\sum_i w_i x_i / T}}$  où T est un paramètre que l'on nomme souvent température. Il détermine l'importance de l'effet de  $\sum_i w_i x_i$  sur le comportement du neurone.

### IV - Le réseau de neurones Kohonen

Teuvo Kohonen [92] a élaboré un nouveau type de réseau destiné à la classification et à la reconnaissance de formes. Ce réseau, particulièrement intéressant pour les biologistes, était basé sur le regroupement des neurones par type de stimuli. Il a été montré en effet que les terminaisons perceptives (visuelles, auditives, tactiles) se répartissent sur des zones du cortex, telles que des stimulations voisines dans l'espace de perception se trouvent projetées au voisinage l'une de l'autre dans ces zones. L'idée de Kohonen a donc été d'essayer de projeter des stimulus voisins (données d'entrée) situés dans un espace perceptif multidimensionnel, dans un espace géométrique beaucoup plus simple, mono ou plus fréquemment bidimensionnel, munie de plusieurs cellules (« neurones ») en conservant au mieux la topologie (figure A7.1). Il est alors littéralement possible de voir des relations de voisinage, et d'en tirer des méthodes de classification [92, 94].

## V - D'autres types de réseaux de neurones : Les réseaux de neurones inversés

Selon Holmes *et al* [97], bien que les réseaux de neurones soient des outils intéressants au point de vue prédictions, ils ne peuvent être utilisés que pour obtenir des valeurs en sortie (prédictions) à partir de données d'entrée. D'autres systèmes de contrôle intelligents de diverses installations industrielles ont un modèle prédictif inversé, afin de répondre à la question "quelles valeurs d'entrée ai-je besoin afin d'avoir des données de sortie spécifiques?". Dans le cas d'une installation de combustion à charbon, cette question revient à se demander "quels seraient les réglages dont j'ai besoin pour réduire les émissions de NO<sub>x</sub> et les taux de carbone imbrûlé".

Barnett [98] reprend cette idée de scénario inversé en présentant l'approche de réseau de neurones inverse où, au lieu de proposer comme paramètres d'entrée du réseau les conditions opératoires du process, on fait l'opération inverse. En effet, on propose au réseau, les valeurs de sortie du process (émission de polluants par exemple), lorsque ce dernier est réglé de manière satisfaisante, et on éduque le réseau de neurones pour qu'il fournisse après calcul les conditions opératoires du process permettant d'obtenir ces valeurs de sortie. Ce sont ces valeurs calculées qui vont être utilisées pour réguler le process.

Lorsque les sorties « dérivent » des valeurs normales du process (point de consigne), les entrées, calculées par le réseau, divergent par rapport aux valeurs d'entrée normales du process. Par apprentissage là aussi, le réseau connaît la relation entre la dérive d'une valeur de sortie et la correction à apporter à la variable à piloter pour atteindre le point de consigne. C'est cette valeur que le réseau délivre au système de pilotage du process. Le réseau de neurones fait office de régulateur, puisqu'il est capable, en fonction des informations qu'il reçoit, d'indiquer les modifications à apporter à certaines variables du process pour atteindre la valeur d'un point de consigne [98].

*De plus amples informations concernant les fondements des réseaux de neurones et leur évolution peuvent être obtenues dans les divers articles cités.*

*ANNEXES*

## **ANNEXE 8**

# **DESCRIPTION DE FLUENT ET DES LOGICIELS ASSOCIES**

## I - La mécanique numérique des fluides

Fluent est un logiciel ou code de calcul permettant la simulation en mécanique des fluides et en thermique. Il reprend les modèles physiques connus : équations de conservation (masse, impulsion, ...), et termes sources correspondants (sources de masse, gradients de pression, ...). La méthode numérique, utilisée pour la résolution du système non linéaire formé par ces équations, est basée sur les éléments / volumes finis (voir paragraphe I-2, chapitre II, partie 6).

Les informations importantes à définir en entrée à ce logiciel sont :

- Les données générales sur l'écoulement : géométrie (parois...), régime (stationnaire, dynamique ...);
- La description physico-chimique des fluides, par phase et par espèce chimique; le choix des modèles : équations de conservation, transitions de phases, réactions entre espèces, turbulence ;
- La description des conditions aux limites : conditions aux limites statiques (parois, ouvertures, injecteurs), et dynamiques (conditions initiales ...).

Les résultats des calculs permettent en sortie d'établir :

- La description des paramètres de l'écoulement en tout point et à chaque instant, paramètres thermodynamiques (pressions, température ...), vitesses, flux de chaleur ... les concentrations par phases et par espèces chimiques, chaleurs de réactions, et de transitions de phases, bilans de matière;
- La visualisation en 2D et 3D, ou par transects, sorties graphiques.

L'interface avec l'utilisateur permet une programmation sur fenêtre spécifique à menus déroulant et une visualisation sur fenêtre graphique interactive. Il y a également la possibilité de générer des modèles, de lancer des simulations et de sortir des résultats par fichiers textes. Les logiciels associés sont Gambit et prePDF. Ces logiciels permettent d'effectuer un pré-traitement du problème.

## II – La méthode numérique

### II-1 Présentation

Plusieurs méthodes numériques existent, les plus connues sont les méthodes des différences finies, des éléments finis ou des volumes finis. Leur but est de remplacer un système d'équations différentielles (équation de conservation des espèces, de la quantité de mouvement, de l'énergie, modèle de turbulence) par un système d'équations algébriques afin de fournir une solution approchée en des points discrets. Ces points discrets sont appelés des nœuds.

Dans le cadre d'une résolution numérique, un nœud que l'on peut considérer comme un point de calcul sera défini par la donnée de deux ou trois coordonnées d'espace. L'ensemble des points de calcul forme le maillage. Dans le cas d'un problème bidimensionnel, les fonctions recherchées ne dépendent que de  $x$  et de  $y$ .

La méthode numérique consiste à déterminer des valeurs d'une variable dépendante  $\Phi$  en un nombre fini de points (ou nœuds), grâce à la définition et à la résolution d'un système d'équations algébriques pour ces valeurs inconnues de  $\Phi$ . Les équations algébriques obtenues à partir des équations différentielles sont appelées les équations discrétisées ou équations discrètes.

Nous remplaçons le problème continu par la recherche de valeurs discrètes. Cependant, entre les points du maillage, nous devons faire des hypothèses sur le comportement de la fonction  $\Phi$ . Il est pratique d'utiliser des profils « par morceaux », chacun d'eux décrivant le comportement de la fonction  $\Phi$  sur une petite région de l'espace. C'est pourquoi il est commun de subdiviser le domaine de calcul en un nombre finis de sous-domaine ou éléments. Le concept de discrétisation nécessite une discrétisation géométrique mais aussi une discrétisation de la fonction  $\Phi$ .

## II-2 Prédiction numérique par la méthode des volumes finis

Le domaine de calcul est divisé en un certain nombre de volumes de contrôle non superposés, tel que chaque volume entoure un point de calcul du maillage et un seul. Le système d'équations différentielles à résoudre est intégré sur chaque volume de contrôle. Des évolutions particulières de la fonction  $\Phi$  sont choisies entre les nœuds du maillage afin de permettre l'intégration. Le résultat de cette intégration donne l'équation discrète exprimée à l'aide des valeurs de la fonction  $\Phi$  pour un ensemble de points du maillage. Cette équation discrète exprime le principe de conservation de  $\Phi$  sur un volume de contrôle, de la même façon que l'équation différentielle l'exprime pour un volume infinitésimal.

Cette formulation implique la conservation de quantités, telles que la masse, la quantité de mouvement ou l'énergie sur chaque volume de contrôle et par conséquent sur l'ensemble du domaine de calcul.

## II-3 Un processus itératif

L'ensemble des équations discrètes forme un système d'équations algébriques à résoudre en utilisant des méthodes liées aux systèmes d'équations linéaires. Les coefficients de discrétisation doivent donc être déterminés et la procédure utilisée est une procédure itérative.

Cela consiste à effectuer les étapes suivantes :

- 1- d'abord donner une valeur approchée de la variable en chaque point du domaine
- 2- à partir de ces valeurs, calculer les coefficients des équations discrètes
- 3- en utilisant ces coefficients, résoudre le système d'équations comme un système linéaire pour obtenir une nouvelle valeur de la variable
- 4- avec ces nouvelles valeurs de la variable, on refait les étapes 2 et 3 jusqu'à ce que celles-ci ne varient plus. Cet état invariable est appelé état de convergence. Parfois, il n'est pas possible d'obtenir cette convergence. On dit alors qu'il y a divergence du calcul de résolution du système.

Dans chaque boucle de l'algorithme, les coefficients sont des estimations et sont

recalculés à l'itération suivante. Un critère de convergence courant est de choisir des quantités significatives et de poursuivre les itérations jusqu'à ce que la modification entre deux itérations de ces quantités soit plus faible qu'une valeur choisie. Ce critère est toutefois dangereux car l'utilisateur peut intentionnellement choisir des modifications faibles. Un critère plus juste est de calculer les résidus  $R$  des équations discrètes. Il est alors raisonnable de dire qu'il y a convergence, si la plus grande valeur absolue de  $R$  (défini comme la différence de valeurs de la variable entre l'étape 1 et 3) est inférieure à une certaine valeur.

### III - Création d'une géométrie et maillage

Gambit est un logiciel permettant la création de modèle géométrique à deux et trois dimensions (2D/3D tel que surface ou volume) et de son maillage c'est-à-dire la répartition des points de calcul ou des nœuds au sein de cette géométrie. Le maillage simple ou hybride peut comprendre des mailles structurées hexagonales, des surfaces triangulaires ou des volumes tétraédraux pour un seul environnement. Ce maillage est destiné à être ensuite utilisé pour les calculs par Fluent.

### IV - Modélisation de la combustion

#### IV-1 Deux approches

Fluent propose deux approches totalement différentes pour modéliser les réactions chimiques et la combustion : le modèle à cinétique finie (ou vitesse de réaction finie) et l'approche de la fonction de densité de probabilité sur la fraction de mélange.

La première méthode est basée sur la résolution des équations de transports des espèces chimiques (réactifs, produits) et la définition par l'utilisateur des mécanismes chimiques ayant lieu. La méthode permet de modéliser la réaction chimique et donc de déterminer une vitesse de formation ou de destruction d'une espèce. Cette vitesse peut être de la forme d'Arrhénius où les données telles que le facteur pré-exponentiel et l'énergie d'activation doivent être connues, ou peut être basée sur le concept d'« Eddy Dissipation ». Dans ce dernier modèle, la cinétique est très rapide, la vitesse de formation d'une espèce est contrôlée par le mélange turbulent des produits et des réactifs.

Dans la deuxième approche, les équations de transports pour des espèces chimiques individuelles ne sont pas considérées. Les équations de transports sont en effet résolues pour un ou deux scalaires (« fraction de mélange ») et les concentrations des espèces chimiques sont dérivées à partir de cette fraction de mélange. Les effets de la turbulence sont pris en compte par la fonction de densité de probabilité ou PDF. La méthode de la fraction de mélange considère que les réactions sont très rapides, irréversibles (« mixed is burned ») ou réversibles. Dans le premier cas, on considère que la réaction chimique est infiniment rapide et irréversible, de sorte que le combustible et l'oxydant ne peuvent coexister au même endroit (Approximation « Flame Sheet ») ; la réaction entre le combustible et l'oxydant se fait en une seule étape. Dans le deuxième, on considère que la chimie n'est plus infiniment rapide mais suffisamment quand même pour que l'équilibre existe au niveau moléculaire (« Equilibre partiel ou complet »). Les concentrations des espèces sont calculées via l'équilibre chimique à partir des données thermochimiques de ces espèces. L'utilisateur ne définit que les espèces chimiques à prendre en compte dans le système réactif sans devoir connaître les données relatives à la cinétique.

Afin de ne pas définir explicitement les mécanismes de cinétiques chimiques et d'effectuer les calculs pour un équilibre chimique, nous avons retenu la deuxième approche.

#### IV-2 La fraction de mélange

L'état instantané (thermique et chimique) d'un fluide peut être décrit par une variable scalaire «  $f$  » appelée fraction de mélange, définissant le degré de mixité de deux constituants massiques. Cette variable est définie dans le cas le plus simple (un oxydant, un combustible) comme :

$$f = \frac{Z_k - Z_{k\text{oxydant}}}{Z_{k\text{combustible}} - Z_{k\text{oxydant}}} \quad (\text{A8.1})$$

où  $Z_k$  est la fraction massique de l'élément de référence «  $k$  » (C, H, O ou N),  $Z_{k\text{oxydant}}$  et  $Z_{k\text{combustible}}$  sont les fractions massiques de cet élément de référence au point donné dans le flux oxydant ou dans celui du combustible. On a  $f = 0$  dans l'oxydant et  $f = 1$  dans le combustible.

Par application à un simple cas de combustion où l'on a une injection de combustible et une autre d'oxydant, on peut définir la fraction de mélange  $f$  par la relation :

$$f = \frac{m_{\text{comb}}}{m_{\text{comb}} + m_{\text{oxy}}} \quad (\text{A8.2})$$

où  $m_{\text{comb}}$  et  $m_{\text{oxy}}$  sont respectivement les fractions massiques du combustible et de l'oxydant.

Les grandeurs thermochimiques  $s_i$  qui définissent le système étudié (concentration d'une espèce, température, masse volumique du mélange) sont fonctions de la fraction de mélange selon la relation :

$$s_i = F(f) = f s_{i,\text{comb}} + (1-f) s_{i,\text{oxy}} \quad (\text{A8.3})$$

$$\text{ou } s_i = F(f, H^*) \text{ dans le cas d'un système non adiabatique} \quad (\text{A8.4})$$

où  $s_{i,\text{comb}}$  et  $s_{i,\text{oxy}}$  sont respectivement les grandeurs thermochimiques  $s_i$  définissant l'injection de combustible et d'oxydant,  $f$  étant la fraction de mélange définie par la relation (A8.2) et  $H^*$  est l'enthalpie instantanée du système définie par la relation :

$$H^* = \sum_j m_j h_j = \sum_j m_j \left[ \int_{T_{\text{ref}}}^T c_{p_j} dT + h_j^0(T_{\text{ref},j}) \right] \quad (\text{A8.5})$$

avec  $m_j$  les fractions massiques des espèces  $j$ ,  $h_j^0(T_{\text{ref},j})$  l'enthalpie de formation des espèces  $j$  à la température de référence  $h_j^0(T_{\text{ref},j})$ . Les relations  $F$  doivent être calculées en modélisant la chimie des réactions réversibles ou irréversibles (approximations définies au paragraphe IV.1).

Lorsqu'un second jet (de combustible, d'oxydant ou autres) est à prendre en compte dans le système étudié, les fractions de mélange du combustible (combustible 1) et du second jet (combustible secondaire) sont respectivement les fractions massiques du jet de combustible  $f_{\text{comb}}$  et du jet secondaire  $f_{\text{sec}}$ . On écrira que la somme des trois fractions de mélange (pour le combustible, l'oxydant et la deuxième injection) est égale à :

$$f_{\text{comb}} + f_{\text{oxy}} + f_{\text{sec}} = 1 \quad (\text{A8.6})$$



Les fractions de mélange  $f_{comb}$  et  $f_{sec}$  ne varient pas indépendamment l'une de l'autre ; la fraction de mélange  $f_{comb}$  varie entre 0 et 1 (comme  $f$  définie par la relation A8.2) alors que la fraction de second jet est égal à :

$$f_{sec} = p_{sec} (1 - f_{comb}) \quad (A8.7)$$

où  $p_{sec}$  varie entre 0 et 1.

Lorsqu'un second jet est à prendre en compte, les grandeurs thermochimiques  $s_i$  se définissent par la relation :

$$s_i = F(f_{comb}, p_{sec}) \quad (A8.8)$$

$$\text{ou } s_i = F(f_{comb}, p_{sec}, H^*) \text{ dans le cas d'un système non adiabatique} \quad (A8.9)$$

La fraction de mélange permet donc de réduire le nombre de grandeurs thermochimiques pour décrire un système. Sa valeur en chaque point de l'écoulement peut être utilisée pour calculer les valeurs instantanées des fractions molaires des espèces, de la densité ou de la température. L'avantage de la modélisation par la fraction de mélange est qu'au travers du calcul d'une seule grandeur  $s$ , d'autres grandeurs intéressantes peuvent être dérivées sans avoir à résoudre les équations de transport pour les décrire.

Les équations de transport ne sont pas résolues individuellement pour chaque espèce ; En effet, la fraction de mélange prend en compte la solution des équations de transport pour une ou deux grandeurs. Les concentrations des espèces sont dérivées de la distribution de la fraction de mélange. L'équation de transport pour la fraction de mélange s'écrira :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \bar{f}) + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i \bar{f}) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \frac{\mu_i}{\sigma_i} \frac{\partial \bar{f}}{\partial x_i} \right) + S_m \quad (A8.10)$$

où  $S_m$  est un terme de source dû au transfert massique en phase gaz des gouttelettes liquides ou des particules solides.  $\mu_i$  et  $\sigma_i$  sont des constantes,  $\rho$  est la masse volumique.

### IV-3 Traitement de la turbulence : la fonction de densité de probabilité

L'interaction de la turbulence et de la chimie est prise en compte par la fonction de densité de probabilité ou PDF :  $p(f)$ . Elle décrit la fraction de temps pendant laquelle la variable fluctuante  $f$  prend une valeur comprise entre  $f$  et  $f + \Delta f$ . Mathématiquement, on aura :

$$p(f) \Delta f = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \sum_i T_i \quad (A8.11)$$

$p(f)$  décrit les fluctuations temporelles de  $f$  dans un écoulement turbulent. Sa forme dépend de ces fluctuations turbulentes. Il permet de calculer la moyenne dans le temps des grandeurs thermochimiques  $s_i$ , fonction de  $f$ . Dans le cas d'un système adiabatique, ces valeurs moyennes peuvent se calculer comme :

$$\bar{s}_i = \int_0^1 p(f) s_i(f) df \quad (A8.12)$$

pour un système avec une seule fraction de mélange. Pour un système comprenant deux jets, la fonction s'écrira :

$$\bar{s}_i = \int_0^1 \int_0^1 p_1(f_{comb}) p_2(p_{sec}) s_i(f_{comb}, p_{sec}) df_{comb} dp_{sec} \quad (A8.13)$$

où  $p_1$  est la fonction de densité de probabilité de  $f_{comb}$  et  $p_2$ , celle de  $p_{sec}$ . Dans le cas d'un

système non adiabatique, il faut prendre en compte l'enthalpie instantanée du système  $H^*$ .

PrePDF est un logiciel utilisé dans les problèmes incluant le transport des espèces chimiques et les écoulements réactifs. Pour prendre en compte l'interaction de la turbulence et de la chimie, il calcule la fonction de densité de probabilité. Pour des problèmes de fraction de deux mélanges, prePDF calcule les valeurs instantanées pour la température, la densité et les fractions molaires des espèces et les insère dans des tables pour être utilisées ensuite durant les calculs de Fluent.

## V - Modélisation du rayonnement

La modélisation des transferts radiatifs par Fluent entraîne le calcul des sources de chaleur dues au rayonnement intervenant dans l'équation générale de la conservation de l'énergie. Le domaine considéré est un ensemble de surfaces qui échangent par rayonnement et un milieu plus ou moins absorbant et émetteur. L'équation fondamentale du transfert radiatif à travers le domaine, dans une direction particulière  $s$ , peut s'écrire de la manière suivante :

$$\frac{dL_\lambda}{ds} = -a_\lambda L_\lambda + a_\lambda I_{0,\lambda}(T) \quad (A8.14)$$

où la variation d'intensité spectrale  $L$  (luminance) dans la direction  $s$  est égale à la différence entre ce qui a été émis et ce qui a été absorbé par le milieu sur le trajet.  $I_{0,\lambda}$  est la loi de Planck

(corps noir) égale à  $\frac{C_1 \lambda^{-5}}{e^{\frac{C_2}{\lambda T}} - 1}$  avec  $C_1$  et  $C_2$  les constantes de Planck et  $\lambda$  la longueur d'onde.

$a_\lambda$  est un coefficient d'absorption des gaz. La luminance monochromatique  $L_\lambda$  solution de l'équation (A8.14) permet d'abord de calculer un flux radiatif monochromatique  $q_\lambda^r = \int_{4\pi} L_\lambda(s) s d\Omega$  puis le flux radiatif global sur l'ensemble du domaine spectral,  $q^r$ . Les sources de chaleur  $S$  dues au rayonnement peuvent être ensuite calculées par la relation :

$$S_R = -\nabla q^r \quad (A8.15)$$

Fluent propose deux modèles permettant le calcul de transferts radiatifs tout en considérant les échanges entre les gaz et les particules solides (grain de charbon en l'occurrence) :

- Dans le premier modèle (appelé P-1), la luminance est exprimée par une somme d'harmoniques sphériques, fonctions de la direction  $s$  et comportant 4 coefficients indépendants de cette direction. On remplace la luminance dans l'équation (A8.14) par cette expression et on prend les moments de cette équation différentielle. L'équation de transfert radiatif qui dépend de la position et de la direction est transformée en un système de  $N$  équations aux dérivées partielles dépendant de la position uniquement. En théorie,  $N$  devrait être infini mais on obtient déjà des résultats corrects pour  $N=3$  (méthode P-3). Pour  $N=1$  (méthode P-1), le flux radiatif est calculé en prenant le premier moment de la luminance.
- Dans le deuxième modèle (appelé ordonnées discrètes), l'équation (A8.14) écrite dans une direction particulière  $s$  est exprimée selon des coordonnées spatiales  $x_i$ . Le modèle permet de résoudre cette équation pour un nombre fini d'angles solides discrets à déterminer dans un système cartésien ( $x, y, z$ ).

Les deux modèles permettent de considérer les effets des particules sur le transfert de chaleur radiatif. La contribution est prise en compte par l'intermédiaire d'un coefficient d'absorption, dû à la présence des particules, défini comme :

$$a_p = \lim_{V \rightarrow 0} \sum_{n=1}^N \varepsilon_{pn} \frac{\pi D_{pn}^2}{4V} \quad (\text{A8.16})$$

où  $\varepsilon_{pn}$  et  $D_{pn}$  sont respectivement l'émissivité et le diamètre de la particule n. N est le nombre de particules dans un volume V.

## VI - Modélisation de la formation des oxydes d'azote

Les réactions de formation et de destruction des oxydes d'azote sont séparées par Fluent des réactions de la combustion, à cause d'une relative lenteur de ces premières, et des relativement faibles concentrations des actives espèces azotées concernées. On commence donc par une modélisation de la combustion, et ensuite on procède à un post-traitement, où on calcule l'évolution des concentrations des espèces azotées dans les champs obtenus après la première étape. Quatre modèles de formation de NO<sub>x</sub> sont disponibles avec le logiciel Fluent. Le premier modèle prend en compte le mécanisme de formation des NO<sub>x</sub> thermiques défini comme le mécanisme de Zeldovich étendu (chapitre I, partie 6) :

$$r = \frac{d[NO]}{dt} = 2[O] \left\{ \frac{k_{11}[N_2] - k_{-1} \frac{k_{-2}[NO]^2}{k_2[O_2]}}{1 + \frac{k_{-1}[NO]}{k_2[O_2] + k_3[OH]}} \right\} \quad (\text{A8.17})$$

Selon les cas, la teneur en oxygène est déterminée soit par la formule 6.6 (appelé [O] à l'équilibre pour une zone pauvre en combustible, chapitre I, partie 6), soit par la formule 6.8 (appelé [O] à l'équilibre partiel pour une zone riche en combustible, chapitre I, partie 6) ou soit par la fraction massique de l'oxygène (appelé fraction massique locale). Le deuxième modèle pris en compte par Fluent est le mécanisme de formation des NO<sub>x</sub> précoces dont la vitesse de formation de NO est calculée par la formule (A8.15) :

$$\frac{d[NO]}{dt} = f T^\beta k^{pr} [O_2]^a [N_2] [combustible]^b \exp(-E_a/RT) \quad (\text{A8.18})$$

Le troisième modèle est celui de la formation des NO<sub>x</sub> combustibles où la vitesse de formation des NO est calculée en considérant que l'azote du combustible (azote volatil et azote du coke) se transforme soit directement en NO, soit en HCN d'abord pour se convertir ensuite partiellement en NO. Le quatrième modèle est celui du reburning où les trois réactions suivantes sont modélisées pour des températures comprises entre 1300 et 1800 °C :



La vitesse de destruction du NO est égale à :

$$\frac{d[NO]}{dt} = -k_1[CH][NO] - k_2[CH_2][NO] - k_3[CH_3][NO] \quad (\text{A8.22})$$

# Liste des figures

## Partie 1

Figure 1.1	Longueurs des liaisons des NO <sub>x</sub>	8
Figure 1.2	Sources des émissions de NO <sub>x</sub> en France	13
Figure 1.3	Principe de formation des NO <sub>x</sub> combustible	22
Figure 1.4	Configuration d'une chaudière de type frontal opposé	25
Figure 1.5	Configuration d'une chaudière de type tangentiel	25
Figure 1.6	Configuration d'une chaudière de type vertical	26
Figure 1.7	Configuration d'une chaudière à cyclone	26
Figure 1.8	Comparaison des émissions de NO <sub>x</sub> en fonction du type de chauffe	27
Figure 1.9	Brûleur bas-NO <sub>x</sub> standard à étagement de l'air de combustion	28
Figure 1.10	Principe du brûleur bas-NO <sub>x</sub> à étagement d'air	29
Figure 1.11	Différentes configurations de brûleur cellulaire bas-NO <sub>x</sub>	29
Figure 1.12	Configuration du procédé L.N.C.F.S.	30
Figure 1.13	Schéma du reburning	31
Figure 1.14	Décomposition du combustible de reburning (méthane)	34
Figure 1.15	Principe du reburning au gaz naturel et au charbon	34
Figure 1.16	Principe général du reburning	37
Figure 1.17	Evolution des espèces azotées et de l'azote total fixé	37
Figure 1.18	Variation axiale de la température, de la teneur en NO, en O <sub>2</sub> et en CO <sub>2</sub> pour du gaz naturel comme combustible de reburning avec un pilote de 17 kW	38
Figure 1.19	Variation axiale de la température, de la teneur en NO, de la teneur en O <sub>2</sub> et en CO pour un charbon comme combustible de reburning avec un pilote de 200 kW	38
Figure 1.20	Réacteur simulant le reburning au gaz naturel	52
Figure 1.21	Four à chute (Flame Research International Foundation, F.R.I.F.)	52
Figure 1.22	Four de 0,2 MW	53
Figure 1.23	Pilote de 0,80 MW	54
Figure 1.23	Réacteur de 25 kW et four de 3 MW	54
Figure 1.24	Exemple de reburning sur une chaudière tangentielle	59
Figure 1.25	Exemple du reburning sur une chaudière frontale	59
Figure 1.26	Exemple de reburning sur une chaudière à cyclone	60

## Partie 2

Figure 2.1	Le four 4 MWth du CERCHAR	75
Figure 2.2	Le four 4 MWth et son brûleur	76
Figure 2.3	Le brûleur bas-NO <sub>x</sub> CERCHAR	78
Figure 2.4	Relation entre le rapport masse d'air d'allumage/masse de charbon et la vitesse de propagation de flamme (de Grey) selon l'indice de matières volatiles (MV) et la teneur en cendres du charbon	80
Figure 2.5	Pyromètre à aspiration	82
Figure 2.6	Sonde de prélèvement au carneau	83
Figure 2.7	Sonde SFC	83

*LISTE DES FIGURES ET DES TABLEAUX*

Figure 2.8	Tête de la sonde SFC	84
Figure 2.9	Sonde de prélèvements de solides « Alcan »	84
Figure 2.10	Comparaison des normes	90
Figure 2.11	Schéma de combustion d'un grain de charbon	91
Figure 2.12	Combustion du charbon	92
Figure 2.13	Profil radial de température à 0,68 m du brûleur	96
Figure 2.14	Profil radial de température à 1,08 m du brûleur	96
Figure 2.15	Profil radial de concentration en NO à 0,58 m du brûleur	97
Figure 2.16	Profil radial de concentration en NO à 1,08 m du brûleur	97
Figure 2.17	Influence de la stœchiométrie primaire (ST1) sur les émissions de NO <sub>x</sub> pour différents nombre de swirl (Sw) et températures de l'air de combustion (T)	98
Figure 2.18	Influence de la stœchiométrie primaire ST1 sur les teneurs en NO <sub>x</sub> et en CO pour un nombre de swirl inférieur à 1 et un air de combustion à 250 °C	99
Figure 2.19	Influence de la stœchiométrie primaire ST1 sur les teneurs en NO <sub>x</sub> et en CO pour un nombre de swirl supérieur à 1 et un air de combustion à 250 °C	99
Figure 2.20	Evolution du profil de température dans le four en fonction du ST1	105

**Partie 3**

---

Figure 3.1	Réduction des NO <sub>x</sub> - Température de 1300 °C – Réglage 6	114
Figure 3.2	Réduction des NO <sub>x</sub> - Température de 1300 °C – Réglage 7	115
Figure 3.3	Réduction des NO <sub>x</sub> - Température de 1300 °C – Réglage 8	115
Figure 3.4	Réduction des NO <sub>x</sub> - Température de 1200 °C – Réglage 6	115
Figure 3.5	Réduction des NO <sub>x</sub> - Température de 1200 °C – Réglage 7	116
Figure 3.6	Réduction des NO <sub>x</sub> - Température de 1200 °C – Réglage 8	116
Figure 3.7	Réduction des NO <sub>x</sub> - Température de 1100 °C – Réglage 6	116
Figure 3.8	Réduction des NO <sub>x</sub> - Température de 1100 °C – Réglage 7	117
Figure 3.9	Réduction des NO <sub>x</sub> - Température de 1100 °C – Réglage 8	117
Figure 3.10	Influence de la teneur initiale en NO <sub>x</sub> , du temps de séjour (Ts) dans la zone de reburning et de la stœchiométrie (Str) dans cette même zone (température de reburning de 1200 °C)	118
Figure 3.11	Influence de la teneur initiale en NO <sub>x</sub> , de la température (T) à l'entrée de la zone de reburning, du temps de séjour (Ts) dans la zone de reburning et de la stœchiométrie (Str) dans cette même zone	118
Figure 3.12	Influence de la stœchiométrie dans la zone de reburning (Str), de la teneur initiale en NO <sub>x</sub> (NO <sub>x</sub> init) et de la température (T) à l'entrée de cette même zone (temps de séjour de la zone de reburning de 850 ms)	119
Figure 3.13	Influence de la stœchiométrie de reburning sur le rapport ΔNO/NO <sub>x</sub> moyen pour l'ensemble des expérimentations de reburning au gaz naturel	120
Figure 3.14	Influence de la température à l'entrée de la zone de reburning	125
Figure 3.15	Influence de la stœchiométrie de reburning	126
Figure 3.16	Influence du temps de séjour de la zone de reburning	127
Figure 3.17	Influence de la teneur initiale en NO <sub>x</sub> (ou NO <sub>x</sub> primaires)	128
Figure 3.18	Cartographie 1	130

*LISTE DES FIGURES ET DES TABLEAUX*

Figure 3.19	Evolution des teneurs de gaz de combustion et de la température le long de l'axe du four pour la cartographie 1	131
Figure 3.20	Cartographie 2	132
Figure 3.21	Evolution des teneurs des gaz de combustion et de la température le long de l'axe du four pour la cartographie 2	132
Figure 3.22	Cartographie 3	133
Figure 3.23	Evolution des teneurs des gaz de combustion et de la température le long de l'axe du four pour la cartographie 3	134
Figure 3.24	Cartographie 4	135
Figure 3.25	Evolution des teneurs des gaz de combustion et de la température le long de l'axe du four pour la cartographie 4	135
Figure 3.26	Cartographies de température	136

**Partie 4**

---

Figure 4.1	Réduction des NO <sub>x</sub> - T=1300°C – Réglage 9 – Freyming/Colombien	151
Figure 4.2	Réduction des NO <sub>x</sub> - T=1300°C – Réglage 9 – Polonais/Sud-Africain	151
Figure 4.3	Réduction des NO <sub>x</sub> - T=1200°C – Réglage 9 – Freyming/Colombien	151
Figure 4.4	Réduction des NO <sub>x</sub> - T=1200°C – Réglage 9 – Polonais/Sud-Africain	151
Figure 4.5	Réduction des NO <sub>x</sub> - T=1300°C – Réglage 10 – Freyming/Colombien	152
Figure 4.6	Réduction des NO <sub>x</sub> - T=1300°C – Réglage 10 – Polonais/Sud-Africain	152
Figure 4.7	Réduction des NO <sub>x</sub> - T=1200°C – Réglage 10 – Freyming/Colombien	152
Figure 4.8	Réduction des NO <sub>x</sub> - T=1200°C – Réglage 10 – Polonais/Sud-Africain	152
Figure 4.9	Influence de la teneur en NO <sub>x</sub> initial et du charbon utilisé comme combustible de reburning sur la réduction relative des NO <sub>x</sub> (%)	154
Figure 4.10	Influence de la teneur en NO <sub>x</sub> initial et du charbon utilisé comme combustible de reburning sur la réduction relative des NO <sub>x</sub> (%)	154
Figure 4.11	Influence de la teneur en azote du combustible de reburning, de la teneur en NO <sub>x</sub> initial (NO <sub>x</sub> init) et de la température à l'entrée de la zone de reburning sur la réduction relative des NO <sub>x</sub> (%)	155
Figure 4.12	Influence de la teneur en azote du combustible de reburning, de la teneur en NO <sub>x</sub> initial (NO <sub>x</sub> init) et du temps de séjour de la zone de reburning sur la réduction relative des NO <sub>x</sub> (%)	155
Figure 4.13	Influence de l'indice de matières volatiles du combustible de reburning, de la teneur en NO <sub>x</sub> initial (NO <sub>x</sub> init) et de la température à l'entrée de la zone de reburning sur la réduction relative des NO <sub>x</sub> (%)	156
Figure 4.14	Influence de l'indice de matières volatiles du combustible de reburning, de la teneur en NO <sub>x</sub> initial (NO <sub>x</sub> init) et du temps de séjour dans la zone de reburning sur la réduction relative des NO <sub>x</sub> (%)	156
Figure 4.15	Influence de la teneur en azote volatile du combustible de reburning sur la réduction relative des NO <sub>x</sub> (%)	157
Figure 4.16	Influence de la stœchiométrie de reburning sur le rapport $\Delta\text{NO}/\text{NO}_{x \text{ moyen}}$ pour l'ensemble des expérimentations de reburning au charbon colombien	158
Figure 4.17	Influence de la stœchiométrie de reburning sur le rapport $\Delta\text{NO}/\text{NO}_{x \text{ moyen}}$ pour l'ensemble des expérimentations de reburning au charbon français (Freyming)	159
Figure 4.18	Influence de la stœchiométrie de reburning sur le rapport $\Delta\text{NO}/\text{NO}_{x \text{ moyen}}$ pour l'ensemble des expérimentations de reburning au charbon polonais	159

*LISTE DES FIGURES ET DES TABLEAUX*

Figure 4.19	Influence de la stœchiométrie de reburning sur le rapport $\Delta\text{NO}/\text{NO}_{\text{x moy}}_{\text{en}}$ pour l'ensemble des expérimentations de reburning au charbon sud-africain	160
Figure 4.20	Influence de la température à l'entrée de la zone de reburning	164
Figure 4.21	Influence de la stœchiométrie de la zone de reburning	165
Figure 4.22	Influence du temps de séjour de la zone de reburning	166
Figure 4.23	Influence de la teneur initiale en NO	167
Figure 4.24	Cartographie 1	170
Figure 4.25	Evolution axiale des teneurs en gaz et de la température dans le four pilote lors de l'application du reburning au charbon français (cartographie 1)	171
Figure 4.26	Cartographie 2	172
Figure 4.27	Evolution axiale des teneurs en gaz et de la température dans le four pilote lors de l'application du reburning au charbon français (cartographie 2)	172
Figure 4.28	Cartographies de température	173

**Partie 5**

---

Figure 5.1	Principe d'un neurone formel	181
Figure 5.2	Structure d'un réseau de neurones standard à trois couches	182
Figure 5.3	Schéma général du réseau de neurone perceptron multicouches	185
Figure 5.4	Schéma général du réseau fonction de base radiale	187
Figure 5.5	Principe de la fonction dite de noyau	187
Figure 5.6	Comparaison de l'apprentissage de la teneur en $\text{NO}_x$ par le réseau de neurones perceptron avec les données d'expériences	195
Figure 5.7	Comparaison de l'apprentissage de la teneur en CO par le réseau de neurones perceptron avec les données d'expériences	195
Figure 5.8	Comparaison de l'apprentissage de l'augmentation des imbrûlés solides par le réseau de neurones perceptron avec les données d'expériences	196
Figure 5.9	Comparaison des prédictions de teneur en NO avec des mesures expérimentales (réseau perceptron, données de test)	197
Figure 5.10	Comparaison des prédictions de teneur en CO avec des mesures expérimentales (réseau perceptron, données de test)	197
Figure 5.11	Comparaison des prédictions de l'augmentation des imbrûlés solides avec des mesures expérimentales (réseau perceptron, données de test)	198
Figure 5.12	Comparaison de l'apprentissage de la teneur en $\text{NO}_x$ par le réseau de neurones RBF avec des données d'expériences	199
Figure 5.13	Comparaison de l'apprentissage de la teneur en CO par le réseau de neurones RBF avec des données d'expériences	199
Figure 5.14	Comparaison de l'apprentissage de l'augmentation des imbrûlés solides par le réseau de neurones RBF avec des données d'expériences	200
Figure 5.15	Comparaison de la prédiction de la teneur en NO avec des mesures expérimentales (réseau RBF, données de test)	201
Figure 5.16	Comparaison de la prédiction de la teneur en CO avec des mesures expérimentales (réseau RBF, données de test)	201
Figure 5.17	Comparaison de la prédiction de l'augmentation des imbrûlés solides avec des mesures expérimentales (réseau RBF, données de test)	202
Figure 5.18	Comparaison de la prédiction des émissions de $\text{NO}_x$ avec des mesures expérimentales (réseau RBF, données de test)	205

**Partie 6**

---

Figure 6.1	Mécanismes de formation du NO et du N <sub>2</sub>	215
Figure 6.2	Modèle de dévolatilisation à deux réactions	217
Figure 6.3	Maillage du four à deux dimensions	233
Figure 6.4	Simulation de l'évolution axiale de la température (°C) pour une combustion sans reburning (modèle P1, cas 1)	236
Figure 6.5	Simulation de l'évolution axiale de la température (°C) pour une combustion sans reburning (modèle ordonnées discrètes, cas 1)	236
Figure 6.6	Evolution de la composante axiale de la vitesse (m.s <sup>-1</sup> ) des gaz de combustion (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 1)	237
Figure 6.7	Simulation de l'évolution axiale de la fraction massique des matières volatiles et du semi-coke (cas 1)	237
Figure 6.8	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en O <sub>2</sub> dans le four (cas 1)	238
Figure 6.9	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en CO <sub>2</sub> dans le four (cas 1)	238
Figure 6.10	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en CO dans le four (cas 1)	239
Figure 6.11	Simulation de l'efficacité axiale de combustion dans le four (cas 1)	239
Figure 6.12	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en NO dans le four (cas 1)	240
Figure 6.13	Evolution de la température (°C) avec injection d'air au lieu du combustible de reburning (cas 2)	241
Figure 6.14	Cartographie de vitesse (m.s <sup>-1</sup> ) avec de l'air comme unique fluide	241
Figure 6.15	Evolution de la composante axiale de la vitesse (m.s <sup>-1</sup> ) des gaz de combustion (cas 2)	242
Figure 6.16	Profil de vitesse dans le brûleur et dans la zone primaire	242
Figure 6.17	Profil de vitesse dans la zone de reburning	243
Figure 6.18	Profil de vitesse à l'entrée de la zone de postcombustion	243
Figure 6.19	Profil de vitesse dans la zone de postcombustion	243
Figure 6.20	Cartographie de la vitesse (m.s <sup>-1</sup> , vitesse du combustible de reburning = 40 m.s <sup>-1</sup> , cas 3)	244
Figure 6.21	Cartographie de la vitesse (m.s <sup>-1</sup> , vitesse du combustible de reburning = 100 m.s <sup>-1</sup> , cas 3)	245
Figure 6.22	Cartographie de température (°C) (vitesse du combustible de reburning = 100 m.s <sup>-1</sup> , cas 3)	245
Figure 6.23	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en O <sub>2</sub> dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3)	246
Figure 6.24	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en CO <sub>2</sub> dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3)	247
Figure 6.25	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en CO dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3)	247
Figure 6.26	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en NO dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3)	247
Figure 6.27	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en HCN et NH <sub>3</sub> dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3)	248
Figure 6.28	Simulation de l'évolution axiale de la température dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3 modifié)	249



*LISTE DES FIGURES ET DES TABLEAUX*

Figure 6.29	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en O <sub>2</sub> dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3 modifié)	249
Figure 6.30	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en CO <sub>2</sub> dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3 modifié)	249
Figure 6.31	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en CO dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3 modifié)	250
Figure 6.32	Simulation de l'évolution axiale de la teneur en NO dans le four lors du reburning au charbon (positions radiales : 0 et 0,35 m, cas 3 modifié)	250
Figure 6.33	Profil de vitesse dans le brûleur et dans la zone primaire(cas 4)	252
Figure 6.34	Profil de vitesse dans la zone de reburning (cas 4)	252
Figure 6.35	Profil de vitesse dans la zone de postcombustion (cas 4)	252

**Annexe**

---

Figure A1.1	Taux de dimérisation de NO <sub>2</sub> en fonction de la température et de la fraction molaire initiale de NO <sub>2</sub>	265
Figure A1.2	Evolution de NO et de NO <sub>2</sub> en fonction de la température	266
Figure A1.3a	Fractions molaires des NO <sub>x</sub> en fonction de la température, en équilibre des fumées à 5% O <sub>2</sub> , 81% N <sub>2</sub>	267
Figure A1.3b	Données de la figure A1.3a exprimées conformément aux normes européennes	267
Figure A1.4	Temps de demi-réaction pour les réactions NO <sub>2</sub> = NO + ½ O <sub>2</sub> et NO + ½ O <sub>2</sub> = NO <sub>2</sub> en fonction de la température	268
Figure A2.1	Mécanisme réactionnel lors du reburning	270
Figure A2.2	Réactions du NO dans la zone de reburning avec du méthane et des espèces azotées (NO, HCN, NH <sub>i</sub> ) dans la zone de postcombustion	274
Figure A3.1	Deux exemples de distribution granulométrique d'un charbon français (Freymin)	278
Figure A4.1	Couronne d'injection (vue selon l'axe du brûleur)	281
Figure A4.2	Vitesse et pression pour un diamètre d'injecteurs de 4 mm	282
Figure A4.3	Vitesse et pression pour un diamètre d'injecteurs de 5 mm	282
Figure A4.4	Vitesse et pression pour un diamètre d'injecteurs de 6mm	282
Figure A4.5	Nombre de buses d'injection en fonction de leur diamètre	284
Figure A4.6	Vitesse et pression absolue pour un diamètre d'injecteurs de 8 mm et 28 buses d'injection	284
Figure A4.7	Régulation du débit de gaz naturel et d'air	286
Figure A4.8	Détensionnement du métal des couronnes	287
Figure A4.9	Réduction des émissions de NO <sub>x</sub> (combustible primaire et de reburning : gaz naturel)	288
Figure A4.10	Comparaison des réductions des émissions de NO <sub>x</sub> en fonction de la stœchiométrie de la zone de reburning et de la teneur en NO <sub>x</sub> initial (NO <sub>x</sub> init)	289
Figure A4.11	Réduction des émissions de NO <sub>x</sub> (%) pour un ST <sub>1</sub> de 0,6	299
Figure A4.12	Réduction des émissions de NO <sub>x</sub> (%) pour un ST <sub>1</sub> de 0,7	299
Figure A4.13	Réduction des émissions de NO <sub>x</sub> (%) pour un ST <sub>1</sub> de 0,8	299

*LISTE DES FIGURES ET DES TABLEAUX*

Figure A4.14	Augmentation de la teneur en CO dans les fumées (%) pour un ST <sub>1</sub> de 0,6	300
Figure A4.15	Augmentation de la teneur en CO dans les fumées (%) pour un ST <sub>1</sub> de 0,7	300
Figure A4.16	Augmentation de la teneur en CO dans les fumées (%) pour un ST <sub>1</sub> de 0,8	300
Figure A4.17	Augmentation de la teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes (% abs) pour un ST <sub>1</sub> de 0,6	301
Figure A4.18	Augmentation de la teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes (% abs) pour un ST <sub>1</sub> de 0,7	301
Figure A4.19	Augmentation de la teneur en imbrûlés solides dans les cendres volantes (% abs) pour un ST <sub>1</sub> de 0,8	301
Figure A5.1	Dimensions du silo de stockage	305
Figure A5.2	Schéma d'un éjecteur	306
Figure A5.3	Schéma d'une canne d'injection du charbon	307
Figure A5.4	Vue d'ensemble de l'installation de stockage et de dosage du charbon de reurning	308
Figure A5.5	Réduction des émissions de NO <sub>x</sub> (%) pour le charbon français	327
Figure A5.6	Réduction des émissions de NO <sub>x</sub> (%) pour le charbon colombien	328
Figure A5.7	Réduction des émissions de NO <sub>x</sub> (%) pour le charbon sud-africain	329
Figure A5.8	Réduction des émissions de NO <sub>x</sub> (%) pour le charbon polonais	330
Figure A5.9	Augmentation des émissions de CO (%) pour le charbon français	331
Figure A5.10	Augmentation des émissions de CO (%) pour le charbon colombien	332
Figure A5.11	Augmentation des émissions de CO (%) pour le charbon sud-africain	333
Figure A5.12	Augmentation des émissions de CO (%) pour le charbon polonais	334
Figure A5.13	Augmentation des imbrûlés solides (% abs) pour le charbon français	335
Figure A5.14	Augmentation des imbrûlés solides (% abs) pour le charbon colombien	336
Figure A5.15	Augmentation des imbrûlés solides (% abs) pour le charbon sud-africain	337
Figure A5.16	Augmentation des imbrûlés solides (% abs) pour le charbon polonais	338
Figure A7.1	Principe du réseau Kohonen	361

*LISTE DES FIGURES ET DES TABLEAUX*

# Liste des tableaux

## Partie 1

---

Tableau 1.1	Valeurs limites des émissions de NO <sub>x</sub>	14
Tableau 1.2	Plafonds nationaux d'émission pour quelques états membres de l'U. E.	16
Tableau 1.3	Synthèse	56
Tableau 1.4	Estimation des coûts et réductions pour diverses techniques de réduction des émissions de NO <sub>x</sub>	64
Tableau 1.5	Applications industrielles de procédés de réduction des émissions de NO <sub>x</sub>	65
Tableau 1.6	Réduction des émissions de NO <sub>x</sub> en fonction de la stœchiométrie de reburning	68
Tableau 1.7	Expérimentations du reburning par ENEL	69

## Partie 2

---

Tableau 2.1	Composition des charbons utilisés pour nos expérimentations	93
Tableau 2.2	Composition du gaz naturel de G.D.F.	94
Tableau 2.3	Réglages étudiés	95
Tableau 2.4	Résultats obtenus avec deux nombres de swirl différents	95
Tableau 2.5	Résultats obtenus pour différentes conditions expérimentales	98
Tableau 2.6	Teneurs en NO <sub>x</sub> , CO, CO <sub>2</sub> et O <sub>2</sub> pour trois réglages différents du ST1 (débit de charbon de 395 kg.h <sup>-1</sup> et excès d'air théorique de 20 %)	101
Tableau 2.7	Teneurs en NO, CO, CO <sub>2</sub> et O <sub>2</sub> pour deux réglages différents (débit de charbon de 420 kg.h <sup>-1</sup> )	101
Tableau 2.8	Teneurs en NO <sub>x</sub> , CO, CO <sub>2</sub> et O <sub>2</sub> pour différentes valeurs du ST1 (débit de charbon de 395 kg.h <sup>-1</sup> et excès d'air théorique de 5 %)	102
Tableau 2.9	Teneurs en NO <sub>x</sub> , CO, CO <sub>2</sub> et O <sub>2</sub> pour différentes valeurs du ST1 (débit de charbon de 420 kg.h <sup>-1</sup> et excès d'air théorique de 5 %)	103
Tableau 2.10	Variation des températures (à 20 cm de la paroi) en fonction du ST1	104
Tableau 2.11	Variation du profil de température (mesurée par un pyromètre) en fonction du ST1	104

## Partie 3

---

Tableau 3.1	Réglages des débits d'air pour une température de 1300°C	112
Tableau 3.2	Réglages des débits d'air pour une température de 1200°C	113
Tableau 3.3	Réglages des débits d'air pour une température de 1100°C	113
Tableau 3.4	Coefficients A et B, coefficient de régression et la constante $a = A/ B $ reburning au gaz naturel	121
Tableau 3.5	Conditions des cartographies – reburning au gaz naturel	130

## Partie 4

---

Tableau 4.1	Réglages du brûleur (combustible primaire et de reburning : charbon français)	145
-------------	---	-----

*LISTE DES FIGURES ET DES TABLEAUX*

Tableau 4.2	Réglages du brûleur (combustible primaire : charbon français et charbon de reburning : charbon colombien)	146
Tableau 4.3	Réglages du brûleur (combustible primaire : charbon français et charbon de reburning : charbon sud-africain)	147
Tableau 4.4	Réglages du brûleur (combustible primaire : charbon français et charbon de reburning : polonais)	148
Tableau 4.5	Coefficients A et B, coefficient de régression pour l'ensemble des charbons étudiés	160
Tableau 4.6	Cartographies réalisées	169

**Partie 5**

---

Tableau 5.1	Erreur $\Sigma$ sur les prédictions par le réseau de neurones perceptron au cours de l'apprentissage	194
Tableau 5.2	Erreur $\Sigma$ sur les prédictions par le réseau de neurones perceptron par rapport aux données de test	196
Tableau 5.3	Erreur $\Sigma$ sur les prédictions par le réseau de neurones RBF	199
Tableau 5.4	Erreur $\Sigma$ sur les prédictions par le réseau de neurones RBF par rapport aux données de test	200
Tableau 5.5	Erreur $\Sigma$ sur la prédiction de la réduction des émissions de NO par le réseau perceptron par rapport aux données de test	204
Tableau 5.6	Erreur sur la prédiction de la réduction des émissions de NO par le réseau RBF par rapport aux données de test	204

**Partie 6**

---

Tableau 6.1	Nombre de mailles pour les cas 2D et 3D	233
Tableau 6.2	Différents cas de simulation	234
Tableau 6.3	Caractéristiques du charbon (charbon français)	235
Tableau 6.4	Température et vitesse de l'air de transport et des airs de combustion (cas 1)	235
Tableau 6.5	Températures, débits et vitesses des flux (cas 2)	241

**Annexes**

---

Tableau A4.1	Comparaison des résultats	289
Tableau A4.2	Temps de séjour de la zone de reburning de 160 ms (T=1300 °C)	290
Tableau A4.3	Temps de séjour de la zone de reburning de 475 ms (T=1300 °C)	291
Tableau A4.4	Temps de séjour de la zone de reburning de 795 ms (T=1300 °C)	292
Tableau A4.5	Temps de séjour de la zone de reburning de 170 ms (T=1200 °C)	293
Tableau A4.6	Temps de séjour de la zone de reburning de 510 ms (T=1200 °C)	294
Tableau A4.7	Temps de séjour de la zone de reburning de 850 ms (T=1200 °C)	295
Tableau A4.8	Temps de séjour de la zone de reburning de 180 ms (T=1100 °C)	296
Tableau A4.9	Temps de séjour de la zone de reburning de 545 ms (T=1100 °C)	297
Tableau A4.10	Temps de séjour de la zone de reburning de 910 ms (T=1100 °C)	298
Tableau A5.1	Distribution granulométrique d'un charbon de reburning (Freyming)	304

*LISTE DES FIGURES ET DES TABLEAUX*

Tableau A5.2	Etalonnage des vis d'alimentation des deux trémies tampons	305
Tableau A5.3	Exemple des mesures de teneur en CO et de température à l'intérieur de la trémie	307
Tableau A5.4	Réglages de la flamme (20 % d'excès d'air)	309
Tableau A5.5	Emissions de gaz et température des fumées pour une flamme à 20 % d'excès d'air	309
Tableau A5.6	Réglages d'une flamme à excès d'air réduit (5 %)	310
Tableau A5.7	Emissions de gaz et température des fumées pour une flamme à excès d'air réduit (sans reburning)	310
Tableau A5.8	Emissions de gaz pour une flamme à excès d'air réduit accompagnée de reburning au charbon	310
Tableau A5.9	Temps de séjour de la zone de reburning de 900 ms	312
Tableau A5.10	Temps de séjour de la zone de reburning de 570 ms	313
Tableau A5.11	Temps de séjour de la zone de reburning de 950 ms	314
Tableau A5.12	Temps de séjour de la zone de reburning de 525 ms	315
Tableau A5.13	Temps de séjour de la zone de reburning de 875 ms	316
Tableau A5.14	Temps de séjour de la zone de reburning de 561 ms	317
Tableau A5.15	Temps de séjour de la zone de reburning de 935 ms	318
Tableau A5.16	Temps de séjour de la zone de reburning de 560 ms	319
Tableau A5.17	Temps de séjour de la zone de reburning de 930 ms	320
Tableau A5.18	Temps de séjour de la zone de reburning de 595 ms	321
Tableau A5.19	Temps de séjour de la zone de reburning de 990 ms	322
Tableau A5.20	Temps de séjour de la zone de reburning de 535 ms	323
Tableau A5.21	Temps de séjour de la zone de reburning de 890 ms	324
Tableau A5.22	Temps de séjour de la zone de reburning de 570 ms	325
Tableau A5.23	Temps de séjour de la zone de reburning de 950 ms	326
Tableau A6.1	Mesures des teneurs des gaz de combustion (cartographie 1, gaz naturel)	340
Tableau A6.2	Mesures des températures (cartographie 1, gaz naturel)	341
Tableau A6.3	Mesures des teneurs des gaz de combustion (cartographie 2, gaz naturel)	344
Tableau A6.4	Mesures des températures (cartographie 2, gaz naturel)	345
Tableau A6.5	Mesures des teneurs des gaz de combustion (cartographie 3, gaz naturel)	346
Tableau A6.6	Mesures des températures (cartographie 3, gaz naturel)	347
Tableau A6.7	Mesures des teneurs des gaz de combustion (cartographie 4, gaz naturel)	348
Tableau A6.8	Mesures des températures (cartographie 4, gaz naturel)	349
Tableau A6.9	Mesures des teneurs des gaz de combustion (cartographie 1, charbon)	351
Tableau A6.10	Mesures des températures (cartographie 1, charbon)	352
Tableau A6.11	Mesures des teneurs des gaz de combustion (cartographie 2, charbon)	354
Tableau A6.12	Mesures des températures (cartographie 2, charbon)	355

*LISTE DES FIGURES ET DES TABLEAUX*

## REFERENCES

- [1] Cotton F.A., Wilkinson G.  
Advanced inorganic chemistry - 5<sup>ème</sup> édition  
Ed. John Wiley and Sons
- [2] Bailar J.C., Emeleus H.J., Nyholm R., Trotman-Dickenson A.F.  
Comprehensive inorganic chemistry  
New] York : Ed. Pergamon Press , ISBN 0-08-016987- 2, 1973
- [3] Khodakov Y. S.  
Nitrogen Oxides and Power Industry: Problems and Solutions",  
OOO "EST-M"  
ISBN 5-901200-06-3, Moscou 2001
- [4] Elichegaray C.  
Impact général des oxydes d'azote sur l'homme et l'environnement  
NOXCONF, Conférence sur la pollution atmosphérique d'origine industrielle,  
Paris, mars 2001
- [5] Fontelle J.P.,  
Etat des lieux des émissions de NO<sub>x</sub> et de N<sub>2</sub>O en France et en Europe  
NOXCONF, Conférence sur la pollution atmosphérique d'origine industrielle,  
Paris, mars 2001
- [6] Gislev M.,  
Politique de l'Union Européenne en matière de pollution par les NO<sub>x</sub>  
NOXCONF, Conférence sur la pollution atmosphérique d'origine industrielle,  
Paris, mars 2001
- [7] Litten D.,  
IPPC : un moteur pour la réduction des NO<sub>x</sub>  
NOXCONF, Conférence sur la pollution atmosphérique d'origine industrielle,  
Paris, mars 2001
- [8] Site internet de E.P.A, 2001, [www.epa.gov](http://www.epa.gov)
- [9] Site internet de la SNET, 2001, [www.snet-electricite.fr](http://www.snet-electricite.fr)
- [10] Kuehn S.E.  
Retrofit control technology reducing NO<sub>x</sub> emissions  
Power Engineering, p. 24, février 1994
- [11] Fourniguet M.J., Quinqueneau A.,  
Mécanismes de formation des oxydes d'azote  
Ciments, Bétons, Plâtres, Chaux, n°820, p. 168, mars 1996
- [12] Gourichon L., Therssen E., Maissa P.  
Réduction des émissions de NO<sub>x</sub> dans les flammes à charbon pulvérisé



## REFERENCES

Journées d'études sur la formation et le contrôle des oxydes d'azote dans les flammes,  
Société Française des thermiciens, décembre 1993

[13] Makansi J.

Reducing NO<sub>x</sub> emissions from today's power plants  
Power, p.11, mai 1993

[14] Mizell G.E.

NO<sub>x</sub> control through boiler optimization  
Power Engineering, p. 29, février 1994

[15] Fourniguet M.J., Quinqueneau A.

Méthodes primaires de réduction des émissions d'oxydes d'azote  
Ciments, Bétons, Plâtres, Chaux, n°820, p.172, mars 1996

[16] PETC Review

Update on NO<sub>x</sub> control technologies, printemps 1995

[17] Bilger H.

NO<sub>x</sub> emission control: options and operational experience  
"Sharing technological achievements to meet challenges"  
Proceedings of the UNIPED/IEA Conference on thermal power generation and the  
environment, Hambourg, 1993  
Réf: 933en2.02

[18] Delaplace L.

Equipements de combustion pour combustibles solides  
Les Techniques de l'Ingénieur, Vol. BE1, N°B117, 1980

[19] Muzio L.J., Quartucy G.C.

Implementing NO<sub>x</sub> control: research to application  
Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 23, pp. 233-266, 1997

[20] PETC Review

Reburning for NO<sub>x</sub> reduction, Automne 1993

[21] Jones C.

Reburn technology comes of age  
Power, p. 57, novembre-décembre 1997

[22] Makansi J.,

Seek the best from world-class SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> control techniques  
Electric Power International, p.23, juin 1995

[23] Mauillon L,

Réduction des émissions de NO<sub>x</sub> sur un four float à l'aide du procédé Reburning gaz  
NOXCONF, Conférence sur la pollution atmosphérique d'origine industrielle,  
Paris, mars 2001

## REFERENCES

- [24] Kuehn S.E.,  
Managing emissions control technology  
Power Engineering, p.29, août 1995
- [25] Toqan M.A., Teare J.D., Beer J.M., Radak L.J., Wier A.,  
Reduction of NO<sub>x</sub> by fuel staging  
Proceedings of the 1986 Joint Symposium on Dry SO<sub>2</sub> and Simultaneous SO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub> Control  
Technologies  
Vol. 1, EPRI CS-4966, 02T075.0, décembre 1986
- [26] Kelly J.T., Pam R.L., Suttman S.T.,  
Fuel staging for pulverized coal furnace NO<sub>x</sub> control  
Proceedings of the 1982 Joint Symposium on Stationary Combustion NO<sub>x</sub> Control,  
N°17, Vol.1, EPRI CS-3182, Contract TC 82-920, juillet 1983
- [27] Chen S.L., McCarthy J. M., Clark W.C., Heap M.P., Seeker W.R., Pershing D.W.,  
Bench and pilot scale process evaluation of reburning for in-furnace NO<sub>x</sub> reduction  
21th Symposium international on combustion, pp1159-1169  
The Combustion Institute, Pittsburgh, 1986
- [28] Lanier W.S., Mulholland J.A., Beard J.T.,  
Reburning thermal and chemical processes in a two dimensional pilot-scale system  
21<sup>st</sup> symposium on combustion, pp 1171-1179  
The Combustion Institute, Pittsburgh, 1986
- [29] Chen S. L., Heap M. P., Pershing D. W., Martin G. B.,  
Influence of coal composition on the fate of volatile and char nitrogen during combustion  
9<sup>TH</sup> symposium international on combustion, pp 1271-1280,  
The Combustion Institute, 1982
- [30] De Michele G., Ligasacchi S., Pasini S.,  
Application of reburning technologies for NO<sub>x</sub> emissions control on oil tangentially fired  
boilers  
Proceedings of the 10<sup>TH</sup> FRIF members conference, Vol. 3, MC 10  
Noordwijkerhout, Pays-Bas, 1992
- [31] Knill K. J., Dekker J. S. A., Morgan M.E.,  
Evaluation of the effect of process variables on NO<sub>x</sub> and nitrogen species reduction in coal  
fuel staging  
Rapport FRIF n°F 037/a/20, novembre 1988
- [32] Knill K. J.,  
A review of fuel staging in pulverised coal combustion systems  
Rapport FRIF n° G13/a/3, 1987
- [33] Smoot L. D., Hill S. C., Xu H.,  
NO<sub>x</sub> control through reburning  
Prog. Energy Combustion Science, Vol. 24, pp385-408, 1998

## REFERENCES

- [34] Yang Y.B., Naja T.A., Gibbs B.M., Hampartsoumian E.  
Optimisation of operating parameters for NO reduction by coal reburning in a 0.2 MWt furnace  
Journal of the Institute of Energy, 70, pp 9-16, mars 1997
- [35] Chen S.L., Clark W.C., Heap M.P.,  
NO<sub>x</sub> reduction by reburning with gas and coal-bench scale studies  
Proceedings of the 1982 Joint Symposium on Stationary Combustion NO<sub>x</sub> Control  
N°16, Vol.1, EPRI CS-3182, Contract TC 82-920, juillet 1983
- [36] Mulholland J.A., Hall R.E.,  
The effect of fuel nitrogen in reburning application to a firetube package boiler  
Symposium on Stationary combustion NO<sub>x</sub> Control, Boston, 1985
- [37] Greene S.B., Chen S.L., Clark W.D., Heap M.P., Pershing D.W., Seeker W.R.,  
Bench-scale process evaluation of reburning and sorbent injection for in-furnace NO<sub>x</sub>/SO<sub>x</sub>  
Reduction  
Rapport E.P.A. n°EPA/600/7-85/012, 1985
- [38] McCarthy J.M., Chen S.L., Seeker W.R., Pershing D.W.,  
Pilot scale studies on the application of reburning for NO<sub>x</sub> Control  
Proceedings of the 1987 Symposium on Stationary combustion NO<sub>x</sub> control, New Orleans  
Vol 1, N°11, EPRI CS-5361, Project N°2154-12, 1987
- [39] Chen S.L., McCarthy J. M., Heap M.P., Seeker W.R., Pershing D.W.,  
Controlling pollutant emissions from coal and oil combustors through the supplemental use of  
natural gas  
Proceedings of the 1986 Joint Symposium dry SO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub> control technology, Raleigh  
Vol 1, N°21, EPRI CS-4966, Research Project 2533-13, 1986
- [40] Leikert K., Rennert K. D., Schreier W.,  
Test data of a multiple staged-mixing burner using fuel staging  
Proceedings of the 8<sup>TH</sup> FRIF members conference, n°4, 1986
- [41] Mereb J.B., Wendt J. O. L.,  
Air staging and reburning mechanisms for NO<sub>x</sub> abatement in a laboratory coal combustor  
Fuel, Vol. 73, n°7, pp1020-1027, 1994
- [42] Miyamae S., Ikebe H., Makino K., Suzuki K., Mogi J.,  
Evaluation of in-furnace NO<sub>x</sub> reduction  
Proceedings of the 1985 EPA/EPRI Symposium on Stationary combustion NO<sub>x</sub> Control,  
Boston, 1985
- [43] Overmoe B. L., McCarthy J. M., Chen S. L., Seeker W. R., Silcox G. D., Pershing D. W.,  
Pilot scale evaluation of NO<sub>x</sub> control from pulverized coal combustion by reburning  
Symposium on Stationary combustion NO<sub>x</sub> Control, Boston, 1985
- [44] Kicherer A., Spliethoff H., Maier H., Hein K.R.G.  
The effect of different reburning fuels on NO<sub>x</sub> reduction  
Fuel, Vol. 73, N°9, pp1443-1446, 1994

## REFERENCES

- [45] Bilbao R., Millera A., Alzueta M.U.,  
Influence of the temperature and oxygen concentration on NO<sub>x</sub> reduction in the natural gas reburning process  
Industrial Engineering Chemical Research, Vol. 33, pp 2846-2852, 1994
- [46] Martin G.H., Nastoll W.  
L'ajout du reburning aux chaudières et aux fours pour un meilleur contrôle des NO<sub>x</sub>  
NOXCONF, Conférence sur la pollution atmosphérique d'origine industrielle,  
Paris, mars 2001
- [47] Bilbao R., Millera A., Alzueta M.U., Prada L.,  
Evaluation for the use of different hydrocarbon fuels for gas reburning  
Fuel, Vol. 76, pp 1401-1407, 1997
- [48] Kolb T., Jansohn P., Leuckel W.,  
Reduction of NO<sub>x</sub> emission in turbulent combustion by fuel] staging] effects of mixing and stoichiometry in the reduction zone  
22<sup>th</sup> symposium International on Combustion, pp1193-1203, 1988
- [49] Spliethoff H., Greul U., Rudiger H., Hein K. R. G.,  
Basic effects on NO<sub>x</sub> emissions in air staging and reburning at a bench-scale test facility  
Fuel, Vol 75, N°5, pp560-564, 1996
- [50] Kristensen P. G., Glarborg P., Dam-Johansen K.,  
Nitrogen chemistry during burnout in fuel-staged combustion  
Combustion and Flame, N°107, pp211-222, 1996
- [51] Seo A. , Hase K.,  
Study on NO<sub>x</sub> reduction in reburning  
Combustion Science and Technology, Vol. 131, pp381-393, 1998
- [52] Bilbao R., Millera A., Alzueta M.U.,  
Experimental study of the influence of the operating variables on natural gas reburning efficiency  
Industrial Engineering Chemical Research, Vol. 34, pp 4531-4539, 1995
- [53] Gas Research Institute  
Utilities review reburn as NO<sub>x</sub> control option  
Gas Research Bulletin, décembre 1994
- [54] Département de l'Energie des Etats-Unis (U.S. D.O.E.)  
Clean Coal Technology : reburning technologies for the control of nitrogen oxides emissions from coal-fired boilers  
Topical report number 14, mai 1999,  
Site internet [www.fe.doe.gov](http://www.fe.doe.gov)
- [55] Rhine J.M., Egan A., Hesselmann G., Antifora A.,  
Development and validation of the design tools used for the gas reburn demonstration at Longannet, Scotland  
International Gas Research Conference,  
San Diego, 8-11 novembre, 1998

## REFERENCES

- [56] Golland E.S., Macphail J., Mainini G.,  
Longannet Unit 2 return to service after gas reburn retrofit,  
International Joint Power Generation Conference  
Baltimore, 23-26 août, 1998
- [57] Lanigan T., Rhine J.,  
The demonstration of gas reburning technology on a 600 MWe boiler at Longannet,  
World Gas Conference,  
Copenhagen, juin 1997
- [58] Sommer T. M.  
Demonstration of Gas Reburning-Sorbent Injection Technology for NO<sub>x</sub>/SO<sub>2</sub> Emission  
Control,  
Fourth Annual Clean Coal Technology Conference: The Global Opportunity, september 1995
- [59] May T.J., Rindahl E.G., Booker T., Keen R.T., Light M.E., Engelhardt D.A., Ritz H.J.,  
Pratapas J.M.,  
Gas reburning in Tangentially, Wall- , and Cyclone- fired boilers  
3th Annual Clean Coal Technology Conference, 1994
- [60] Site internet du Gas Research Institute, [www.gri.gov](http://www.gri.gov)
- [61] Borio R., Lewis R.D., Keough M.B.  
Reburn technology for NO<sub>x</sub> control on a cyclone fired boiler,  
Proceedings of the 1991 Joint Symposium on Stationary Combustion NO<sub>x</sub> control,  
Washington, 1991
- [62] Yagiela A.S., Maringo G.J., Newell N.J., Farzan H.  
Update on coal reburning technology for reducing NO<sub>x</sub> in cyclone boilers  
Proceedings of the 1991 Joint Symposium on Stationary Combustion NO<sub>x</sub> control,  
Washington  
Vol. 2, Session 3, 1991
- [63] Daugherty E.D., Bradshaw D.T., Butler T.F., Kazemersky P.M.  
Reduction of NO<sub>x</sub> emissions for a 175 MWe boiler by micronized coal reburning  
“Sharing technological achievements to meet challenges”  
Proceedings of the UNIPED/IEA Conference on thermal power generation and the  
environment,  
Hambourg, 1993  
Réf: 933en2.11
- [64] Golland E.S., Macphail J  
Gas reburn demonstration project  
Projet CECA n°SF 394/94/UK-IR-IT, 1997
- [65] P.E.I.  
Longannet Demonstrates gas reburning  
p.38, mars 1998

## REFERENCES

- [66] Ghiribelli L., Pasini S., Benedetto D., De Santis R., Mainini G.  
Results from the application of a gas reburning technology on a 600 MW coal fired boiler  
Proceedings of the EPRI-DOE-EPA Combined Utility Air Pollution Control Symposium,  
Atlanta, Georgie  
Vol. 2, Session 12, pp. 1-12, TR-113187-V2, août 1999
- [67] Hesselmann G., Hepburn P., Fish S.,  
NO<sub>x</sub> reduction by air staging and reburning  
Rapport ESCSC Technical Research Coal, contract n° 7220/ED/050, 1996
- [68] Bertacchi S., Donatini F., Pasini S.  
The control of nitrogen oxides (NO<sub>x</sub>) emissions in Enel's oil and coal fired units  
Power Gen Europe 98  
Milan, 9-11 juin, 1998
- [69] Bertacchi S., Cenci V., De Santis R., Mainini G., Pasini S., Sorrenti R.  
Reburning: ENEL and ANSALDO experience in designing, installing and operating  
reburning systems in large oil-fired power station boilers  
EPRI-DOE-EPA Combined Utility Air Pollutant Control Symposium, 25-29 Août 1997
- [70] Rosi  
Vado Ligure coal reburn demonstration project  
Projet CECA n° SF/O119/95/IT/UK/IR, 1997
- [71] Hesselmann G., Pasini S., Mainini G.  
Large-scale coal-over-coal reburn successful at Italy's Vado Ligure  
Modern Power Systems, p. 21, mars 2001
- [72] Laflesh, Hall, Kotler  
Three stage combustion (reburning) on a full scale operating boiler in the USSR  
Proceedings of the 1991 Joint Symposium on Stationary Combustion NO<sub>x</sub> control,  
Washington  
Vol. 2, Session 3, 1991
- [73] 1999 Conference on reburning for NO<sub>x</sub> control  
NETL Publications, 1999 Conference proceedings  
Site internet [www.fetc.doe.gov](http://www.fetc.doe.gov)
- [74] Engelhardt D., Folsom B., Latham C., Payne R., Sommer T., Brocato H., Maziarz M.  
Updated experience using reburn technology for utility boiler NO<sub>x</sub> emissions reduction  
Proceedings of the EPRI-DOE-EPA Combined Utility Air Pollution Control Symposium,  
Vol. 2, Session 12, pp. 37-55, TR-113187-V2, août 1999
- [75] Spliethoff H.  
Large scale trials and development of fuel staging in a 160MW coal fired boiler  
Proceedings of the 1991 Joint Symposium on Stationary Combustion NO<sub>x</sub> control,  
Washington  
Vol. 2, Session 7B, 1991

## REFERENCES

- [76] Borman G.L., Ragland K.W.  
Combustion engineering  
Mcgraw- Hill International Editions, ISBN 0-07-115978- 9, 1998
- [77] Monnot G.  
La combustion dans les fours et chaudières  
Publications de l'Institut Français du Pétrole  
Editions Technip, ISBN 2-7108-0320-8, 1978
- [78] Therssen E.  
Etude de la dévolatilisation de charbons pulvérisés dans une flamme plate de propane – 203 p.  
Th : Chimie : Lille 1 : 1993 ; 1059
- [79] Gourichon L.  
Seconde série de données expérimentales sur les flammes de grandes dimensions  
Rapport CERCHAR n°SPE/LGo 90-510-380, Novembre 1990
- [80] Gourichon L.  
Combustion de mélanges de charbon sous forme pulvérisée  
Rapport final CECA n° 7220-ED/0136, Août 1994
- [81] Gaz de France  
Les brûleurs et éléments chauffants industriels à gaz  
Notes techniques documentaires  
Brochure BT 103, Edition révisée, septembre 1968
- [82] Nazeer W.A., Jackson R.E., Peart J.A., Tree D.R.  
Detailed measurements in a pulverized coal flame with natural gas reburning  
Fuel , Vol. 78, pp. 689-699, 1999
- [83] Liu H., Hampartsoumian E., Gibbs B.M.  
Evaluation of the optimal fuel characteristics for efficient NO reduction by coal reburning  
Fuel, Vol.16, N°11, pp 985-993, 1997
- [84] Liu H., Hampartsoumian E., Gibbs B.M.  
Comparative performance of different coals and natural gas for the reduction of NO by reburning  
Proceedings of the 2<sup>nd</sup> international conference on combustion and emissions control  
The institute of Energy, Londres, 1995
- [85] Yang Y.B., Hampartsoumian E., Gibbs B.M.  
The effects of temperature, mixing and volatile release on NO reduction mechanisms by coal reburning  
27<sup>th</sup> Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute, pp 3009-3017, 1998
- [86] Peyrucat J.F.  
Le contrôle avancé progresse à pas comptés  
Mesures, n°708, Octobre 1998

## REFERENCES

- [87] Dreyfus G.  
Les réseaux de neurones  
Encyclopedia Universalis, 1999
- [88] Jodouin J.F.  
Les réseaux de neurones : principes et définitions  
Ed. Hermès, 1999  
ISBN 2-86601-435-9
- [89] Weinfeld M.  
Réseaux de neurones  
Les techniques de l'ingénieur  
Doc. H 1 990, pp1-17
- [90] Les réseaux de neurones  
Sagaut J.  
Cours d'utilisation du logiciel Netral
- [91] Mazzola A.  
Integrating artificial neural networks and empirical correlations for the predictions of water-subcooled critical heat flux  
Revue Général de Thermique, Vol. 36, pp 799-806, 1997
- [92] Dreyfus G.  
Réseaux de neurones : maintenant, il faut y aller !  
Mesures, n°699, Novembre 1997
- [93] Guide d'utilisation de Neural Connection 2.0,  
SPSS Inc./Recognition Systems Inc.
- [94] Delmas D., Mariot P.  
Concept et applications des réseaux neuromimétiques  
Neuro Nimes 91, 4ème Journées internationales, 4-8 Novembre 1991, Nîmes
- [95] La commande neuronale  
Renotte C.  
Cours de commande adaptative, neuronale et floue  
Faculté Polytechnique de Mons, Belgique
- [96] Lohninger H.  
Evaluation of neural networks based on radial basis functions and their application to the prediction of boiling points from structural parameters  
Journal of Chemical Information and Computer Sciences, Vol. 33, pp 736-744, 1993
- [97] Holmes R., Mayes I.W., Squires R.T., Chakraborty R.K.  
Intelligent performance optimisation of power station boilers (GNOCIS project)  
Rapport PowerGen/ETSU, [www.powertech.co.uk](http://www.powertech.co.uk)
- [98] Barnett M.W.  
Les réseaux de neurones...pour rendre un process "intelligent"  
Mesures, n°712, Février 1999



## REFERENCES

- [99] Zhu Q., Jones J.M., Williams A., Thomas K.M.  
The predictions of coal/char combustion rate using an artificial neural network approach  
Fuel, Vol. 78, pp1755-1762, 1999
- [100] Reifman J., Feldman E.E., Wei T.Y.C., Glickert R.W.  
An intelligent emissions controller for fuel lean gas reburn in a coal-fired power plants  
Journal of the Air and waste Management Association, Vol. 50, pp 240-251, 2000
- [101] Makansi J.  
Plants gain confidence in optimization software  
Power, septembre/octobre 1998
- [102] Reifman J., Feldman E.E.  
Identification and control of NO<sub>x</sub> emissions using neural networks  
Journal of the Air and Waste Management Association, Vol. 48, pp 408-417, 1998
- [103] Neelakantan R., Guiver J.  
Applying neural networks  
Hydrocarbon processing, septembre 1998
- [104] Glarborg P., Miller J.A., Kee R.J.  
Kinetic modeling and sensitivity analysis of nitrogen oxide formation in well-stirred reactors  
Combustion and flame, Vol. 65, pp 177-202, 1986
- [105] Miller J.A., Bowman C.T.  
Mechanisms and modeling of nitrogen chemistry in combustion  
Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 15, pp 287-338, 1989
- [106] Kilpinen P., Glarborg P., Hupa M.  
Reburning chemistry : a kinetic modeling study  
Industrial Engineering Chemical Research, Vol 31, pp 1477-1490, 1992
- [107] Glarborg P., Kristensen P.G., Jensen S.H., Dam-Johansen K.  
A flow reactor study of HNCO oxidation chemistry  
Combustion and flame 98 : 241-258 (1994)
- [108] Glarborg P., Miller J.A.  
Mechanism and modeling of hydrogen cyanide oxidation in a flow reactor  
Combustion and Flame 99 : 475-483 (1994)
- [109] Westenberg A.A.  
Kinetics of NO and CO in lean, premixed hydrocarbon-air flames  
Combustion Science and Technology, Vol. 4, pp 59-64, 1971
- [110] Hill S.C., Smoot L.D.  
Modeling of nitrogen oxides formation and destruction in combustion systems  
Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 26, pp. 417-458, 2000
- [111] Williams A., Pourkashanian M., Jones J.M., Rowlands L.  
A review of NO<sub>x</sub> formation and reduction mechanisms in combustion systems with particular reference to coal

## REFERENCES

Journal of the Institute of Energy, September 1997, 70, pp102-113

[112] Guide d'utilisation de Fluent

[113] Eaton A.M., Smoot L.D., Hill S.C., Eatough C.N.

Components, formulations, solutions, evaluation and application of comprehensive combustion models

Progress in Energy and combustion science, Vol. 25, pp. 387-436, 1999

[114] Escaich Alain-Etienne

Une description améliorée de la combustion turbulente dans les flammes de charbon pulvérisé

Th : Physique : Energétique : CORIA-Rouen : 2000

[115] Bilbao R., Alzueta M. U., Millera A., Duarte M.

Simplified kinetic model of the chemistry in the *reburning* zone using natural gas

Industrial Engineering Chemical Research, Vol 34, N°12, 1995

[116] Rota R., Bonini F., Servida A., Morbidelli M., Carra S.

Modeling of the *reburning* process

Combustion Science and technology, Vol 123, pp 83-105, 1997

[117] Ernola P., Hupa M., Kjaldmann L., Oksanen P.

Detailed modelling of NO<sub>x</sub> emissions in fuel staging

Nordic Gas Technology Centre –1989

[118] Ehrhardt K., Toqan M., Jansohn P., Teare J.D., Beer J.M., Sybon G., Leuckel W.

Modeling of NO<sub>x</sub> *reburning* in a pilot scale furnace using detailed reaction kinetics

Combustion Science and Technology, Vol 131, pp 131-146, 1998

[119] Braun-Unkhoff M., Frank P., Stapf D., Leuckel W.

Analyses of NO<sub>x</sub> *reburning* under plug low reactor conditions

3 rd Workshop on modelling of chemical reaction systems,

Heidelberg, Allemagne, 24-26 juillet 1996

[120] Frenkel, M., Kabo, G.J., Marsh, K.N., Roganov, G.N., Wilhoit, R.C.,

Thermodynamics of organic compounds in the gas state,

Thermodynamics Research Center, College Station, Texas, USA, (1994).

[121] Kee, R.J., Rupley, M., Miller, J.A.,

Chemkin II : a Fortran chemical kinetics package for the analysis of the gas-phase chemical kinetics,

Sandia National Laboratories, 1990.

[122] Bodenstein, M.,

Die Ermittlung des Mechanismus chemischer Reaktionen,

Helvetica Chimica Acta, 18 (1935), 743-759.

[123] Kuperjans, S., Kennedy, I.M.,

Measurements of NO<sub>x</sub> in turbulent diffusion flames with high speed co-flow air.

In F.L. Dryer and R.F. Sawyer (Eds.), Physical and chemical aspects of combustion, Gordon and Breach Science Publishers, Amsterdam, (1997).

## *REFERENCES*

# Etude de la réduction des oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>) par surcombustion réductrice (procédé « reburning »)

## Résumé :

Le reburning consiste à réduire les émissions de NO<sub>x</sub> en étageant la combustion : un combustible principal est brûlé dans une zone légèrement oxydante, un combustible complémentaire et de l'air de combustion sont successivement injectés en aval de cette zone, créant respectivement une zone réductrice permettant la transformation des NO<sub>x</sub> et une zone oxydante achevant la combustion. L'efficacité de ce procédé dépend de divers facteurs dont les températures et teneurs en NO<sub>x</sub> à l'entrée des zones, les temps de séjour des gaz et la stœchiométrie dans ces zones. L'étude a été faite sur un four pilote de 4 MW afin de connaître l'efficacité de charbons et du gaz naturel (dénué d'azote réactif) comme combustible secondaire. Une modélisation avec des réseaux de neurones corrèle les résultats mais n'extrapole pas en dehors du domaine étudié. La mécanique numérique des fluides, bien que restreinte au niveau hydrodynamique, permet de répondre aux hypothèses faites au cours des expérimentations.

## Mots clefs :

*combustion, surcombustion réductrice, recombustion, combustion étagée, azote-oxyde, NO<sub>x</sub>, charbon, gaz naturel, réseau neuronal, mécanique fluide numérique*

## Study of nitrogen oxides reduction by reburning process

## Abstract :

The basic idea of reburning is to reduce NO<sub>x</sub> emissions by staging the combustion : a main fuel is burned in a zone with a slight excess air which brings about the formation of NO<sub>x</sub> from fuel and atmospheric nitrogen. Additional fuel is injected in order to create downstream this zone, a fuel-rich atmosphere propitious to NO<sub>x</sub> transformation and a final oxidizing zone completing the combustion of unburned products is created by the injection of additional air. The efficiency of reburning process depends on several variables as the temperature and NO<sub>x</sub> concentrations at the inlet of these zones, stoichiometry and residence time in the zones. The study was performed on a 4 MW pilot-scale furnace in order to compare the efficiencies of four different coals and of natural gas as additional (reburning) fuels. Artificial neural networks correlate well the experimental data but do not allow the extrapolation of the obtained relation to unexplored domains. Computational Fluid Dynamic (CFD) with Fluent software, in 2-dimensional approach, gave satisfactory results when applied to experiments without reburning, but failed to model correctly the results with reburning.

## Keywords

*combustion, reburning, fuel staging, nitric-oxide, NO<sub>x</sub>, coal, natural gas, neural network, Computational Fluid Dynamic*

- Présentation aux Rencontres Recherche-Industries (7<sup>ème</sup> édition), Pollutec 2001, Paris, décembre 2001 d'un poster intitulé « Réduction des oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>) lors de la combustion du charbon pulvérisé par le reburning au charbon : étude sur un four pilote (3 à 6 MWth) et modélisation par la mécanique numérique des fluides (C.F.D.) ».

Communication parue dans « Les innovations des éco-industries, Pollutec 2001 », Ed. J. Vigneron, M. Lacam, Publications Economica – Environnement & Techniques, mai 2002, 2pp.

Auteur : Sorriau O., Delvinquier V., Czernicki M., Pietrzyk S., Caillat S., Baudoin B.

- Présentation au 8<sup>ème</sup> Congrès de Génie des Procédés, Nancy (France), octobre 2001, d'un poster intitulé « Réduction des oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>) lors de la combustion du charbon pulvérisé par le reburning au gaz naturel : étude sur un four pilote (3 à 6 MWth) »

Article disponible sur CD-Rom du 8<sup>ème</sup> congrès Francophone de Génie des Procédés, Nancy, octobre 2001, 8 pp.

Auteur : Sorriau O., Delvinquier V., Czernicki M., Pietrzyk S.

- Présentation à la Conférence Internationale sur les émissions de NO<sub>x</sub> et N<sub>2</sub>O d'origine industrielle, NOXCONF 2001, Paris, mars 2001, d'une communication intitulée « Réduction des oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>) par le *reburning* au gaz naturel sur un four de 4 MWth (étalement combiné du combustible et de l'air de combustion) »

Article paru dans « NOXCONF 2001, conférence internationale sur la pollution atmosphérique », ADEME Editions, 2001, ISBN 2-86817-575-9

Auteur : Sorriau O., Delvinquier V., Czernicki M., Pietrzyk S.

- Présentation aux Rencontres Recherche-Industries (6<sup>ème</sup> édition), Pollutec 2000, Lyon, novembre 2000 d'un poster intitulé « Réduction des Oxydes d'Azote (NO<sub>x</sub>) lors de la combustion du charbon pulvérisé par le reburning au gaz naturel dans un four d'étude de flammes

Communication parue dans « Les innovations des éco-industries, Pollutec 2000 », Ed. J. Vigneron, Publications Economica – Environnement & Techniques, 2000, 2pp.

Auteur : Sorriau O., Delvinquier V., Czernicki M., Pietrzyk S.

- Présentation aux Rencontres Recherche-Industries (5<sup>ème</sup> édition), Pollutec 1999, Paris, novembre 1999 d'un poster intitulé « Réduction des Oxydes d'Azote (NO<sub>x</sub>) par étalement du combustible (*Reburning*) lors de la combustion du charbon pulvérisé dans un four de 4 MWth

Communication parue dans « Les innovations des éco-industries, Pollutec 1999 », Ed. J. Vigneron, Publications Economica – Environnement & Techniques, 1999, 2pp.

Auteur : Sorriau O., Delvinquier V., Czernicki M., Pietrzyk S.