

Optimisation du mélange charbon de terre-balles de riz destiné à la gazéification

Lantosoa Razanamparany RATSIMAMANGA^{1,2*}, José ANDRIAMAMPIANINA²
et Martina MEINCKEN¹

¹ Université de Stellenbosch, Laboratoire du Département des Forêt et Science du Bois,
Stellenbosch, Afrique du Sud

² Institut Supérieur de Technologie d'Antananarivo, Département de Génie Industriel,
Antananarivo, BP 8122, Madagascar

* Correspondance, courriel : lantorazanamparany@gmail.com

Résumé

La co-utilisation du charbon avec des matières premières alternatives et plus durables offre une approche réaliste pour réduire les coûts et les risques associés à leur conversion, tout en tenant compte de la valorisation des biomasses. La démarche de cette étude consiste alors à élaborer un combustible innovant dont la préparation mérite des investigations. Nous présentons l'identification expérimentale des propriétés caractéristiques de différents mélanges « charbon-balles de riz » selon les pourcentages massiques 90-10, 80-20 et 60-40, en prenant comme référence celles du charbon (100-0) et de la balle de riz (0-100). Des analyses thermogravimétriques permettent d'évaluer les cinétiques de réactions par la méthode de Coast-Redfern. Les résultats révèlent que l'ajout de biomasse au charbon réduit ses teneurs en éléments producteurs de gaz nocifs : le soufre et l'azote. La quantité de cendre diminue avec le taux de biomasse, alors qu'elle accompagne la première forte dégradation du charbon de terre à 467 °C. La plus haute valeur du facteur pré exponentiel A du mélange 90-10 lui confère un rang comparable au charbon pur à une valeur d'énergie d'activation E non négligeable, avec un fort coefficient de corrélation de la méthode d'analyses cinétiques ci-appliquée. L'échantillon 90-10 représente ainsi un combustible destiné à la gazéification, possédant un taux massique optimal de biomasse.

Mots-clés : *optimisation, thermogravimétrie, dégradation, réactivité, cinétique, conversion.*

Abstract

Optimization of the blend coal-rice husk for gasification

The co-use of coal with alternative and more sustainable raw materials offers a realistic approach to reduce the costs and risks associated with their conversion, while taking into account the biomass valuation. The approach of this study is then to develop an innovative fuel whose preparation deserves investigation. We present the experimental identification of the characteristic properties of various mixtures "coal/rice husk" according to the weight percentages 90-10, 80-20 and 60-40, taking as reference those of the coal (100-0) and the rice husk (0-100). Thermogravimetric analysis make it possible to evaluate the kinetics of reactions using the Coast-Redfern method. The results reveal that the addition of biomass to coal reduces its levels of elements producing harmful gas : sulphur and nitrogen. The quantity of ash decreases with the biomass rate,

while it accompanies the first strong degradation of the coal at 467 °C. The higher value of the pre-exponential factor A of the mixture 90-10 gives it a rank comparable with pure coal at a value of activation energy E which is not negligible, with a high correlation coefficient of the kinetic analysis method applied. The 90-10 sample thus represents a fuel, at an optimal mass rate of biomass, intended for gasification.

Keywords : *optimization, thermogravimetry, degradation, reactivity, kinetics, conversion.*

1. Introduction

La gazéification est un processus à la frontière entre la pyrolyse et la combustion. Elle consiste à convertir les matières carbonées ou organiques en un gaz de synthèse combustible, appelé « syngas », à des températures élevées et en présence limitée d'oxygène ou d'air. Ce syngas peut être stocké et utilisé comme combustible à un stade ultérieur. Il est composé principalement d'hydrogène (H₂), de monoxyde de carbone (CO) et de méthane (CH₄) [1, 2], qui possèdent des caractéristiques thermochimiques très favorables à la combustion et exploitées pour la production d'énergie dans le cadre de l'électrification rurale. La gazéification de la biomasse offre une alternative durable aux combustibles fossiles pour la production d'énergie. L'avantage des biocarburants par rapport à ces combustibles est leur caractère renouvelable [3], dans ce sens que le CO₂, qui est produit lors de son utilisation à des fins énergétiques, est celui capté lors de sa croissance [4]. C'est donc une source de carbone renouvelable [5]. Compte tenu de l'augmentation de l'impact sur l'environnement de l'accroissement de l'activité humaine, les énergies renouvelables sont d'une importance croissante d'un point de vue environnemental dans le domaine de la substitution des énergies fossiles. La gazéification de la biomasse et sa mise en œuvre restent cependant complexes dans la mesure où elle implique la maîtrise d'un ensemble d'équipements, depuis la préparation du combustible jusqu'à la production d'électricité [3, 5, 6]. Le développement de l'utilisation des énergies renouvelables est essentiel pour faire face à la double problématique de l'épuisement des ressources fossiles et des rejets de gaz néfastes de ces dernières. Actuellement, la biomasse est l'énergie renouvelable la plus utilisée dans le monde devant l'énergie hydraulique et les autres sources d'énergie comme la géothermie, le solaire ou l'éolien [5]. Plusieurs travaux de recherche [4, 7 - 9] ont décrit les propriétés de la balle de riz et son potentiel en tant que biocombustible.

[4, 7] ont caractérisé les propriétés physiques et chimiques de la balle de riz utilisées comme biocarburant. D'après les travaux de recherche [10], les coques de riz sont très résistantes à l'absorption de l'humidité et à la désintégration des champignons, inattaquables par les insectes, inodores et ne sont pas corrosives. Cette étude traite le cas particulier de Madagascar, avec sa forte disponibilité en balles de riz [11] et son potentiel en matière de ressource en charbon [12]. Puisque, la croissance significative de la part de l'électricité produite à partir des sources d'énergie renouvelable traduit le développement durable, la biomasse qui représente le gisement le plus important devrait à terme jouer un rôle important dans cette stratégie [13]. Le développement de l'utilisation des énergies renouvelables est essentiel pour faire face à cette double problématique. Ainsi, la co-pyrolyse est choisie comme matière de base dans cette étude de recherche, dans ce sens qu'on ne peut pas se passer du charbon fossile d'ici 2050 pour couvrir les besoins en énergie du Pays, tout en essayant toutefois de réduire sa production en le mélangeant avec de la biomasse. La co-combustion du charbon de terre avec de la biomasse dans les usines de transformation a été reconnue comme une approche prometteuse pour améliorer la durabilité de la production d'énergie [14 - 19]. Des Chercheurs ont déjà évoqué l'importance de l'ajout de biomasse au charbon, comme l'augmentation de puissance calorifique de combustion [17] et la réduction des gaz polluants dans la co-gazéification charbon-biomasse, par rapport à la gazéification du charbon pur [14]. Dans cette optique, des analyses immédiates et élémentaires sont effectuées pour caractériser les échantillons des mélanges charbon/balle de riz. Et comme l'analyse

thermogravimétrie (TGA) est très appropriée pour l'analyse thermique des biocarburants, dans ce sens où elle décrit le comportement de dégradation thermique pendant la combustion [16, 17, 20] une évaluation des résultats permet de déterminer les paramètres cinétiques, tels que le facteur de fréquence ou le facteur pré exponentiel A, le coefficient de corrélation R et l'énergie d'activation E obtenue par la méthode Coats-Redfern. L'analyse cinétique fournit des informations sur les étapes de réactions. Ces diverses analyses mènent à l'identification du mélange optimal destiné à la gazéification. Le but est de réduire l'utilisation des combustibles fossiles, de valoriser la balle de riz et de minimiser les rejets polluants du gaz de synthèse produit.

2. Matériel et méthodes

2-1. Échantillons

Le charbon de terre du type Tshinkondeni d'Afrique du Sud est mélangé avec la balle de riz (BDR) de la région centrale du Madagascar. Cette balle de riz est broyée à l'aide de l'ultra centrifuge Retsch ZM 200, et tamisée pour retenir les particules dans la gamme de taille comprise entre 250 μm et 850 μm . Le charbon de terre broyé et la balle de riz tamisée sont mélangés respectivement à des pourcentages massiques de 90-10, 80-20 et 60-40. Des échantillons de référence à 100 % de charbon de terre et à 100 % de balle de riz sont aussi préparés. La masse de chaque composant des différents mélanges est pesée à l'aide de la balance AS 220/C/2S avec une précision de 10^{-3} mg.

2-2. Analyse immédiate : « Proximate analysis »

Pour caractériser les combustibles, l'analyse dite « immédiate » mesure la teneur en humidité (H), la teneur en cendre (Cd), le contenu volatile (MV), le contenu énergétique ou le pouvoir calorifique (PC), la teneur en carbone fixe (CF) et la densité apparente (ρ). Pour s'assurer de la précision des résultats, les mélanges et les échantillons de référence sont analysés à trois reprises. La densité est déterminée selon la norme ISO 17828 : 2015, et la teneur en humidité selon l'ISO 18134-1 : 2015 par la méthode sèche au four. La teneur en cendre est mesurée grâce à un four à moufle selon l'ISO 18122 : 2015. Toutes les pesées sont précédées d'une remise des échantillons à 20 °C dans un dessiccateur à gel de silice. La teneur en matières volatiles (MV) est déterminée selon l'ISO 18123 : 2015. Les teneurs en cendres (Cd) et en matières volatiles (MV) sont mesurées grâce à un four à moufle respectivement selon l'ISO 18122 : 2015 et l'ISO 18123:2015. Le pouvoir calorifique (PC) est défini dans un calorimètre à bombe dans une atmosphère d'oxygène pur à 3 000 kPa selon l'ISO 1928 : 2009. La teneur en carbone fixe (CF) est calculée selon *l'Équation*

$$CF = 100 - MV - Cd \quad (1)$$

où, CF est la teneur en carbone fixe en mg, MV la teneur en matières volatiles en mg, Cd la teneur en cendre en mg.

2-3. Analyse élémentaire : « Ultimate analysis »

L'analyse dite « élémentaire » détermine notamment les teneurs en azote (N), en carbone (C), en soufre (S), en silicium (Si) et en chlore (Cl). Elle est réalisée par le Laboratoire d'analyse externe agréé « Bemlab, Somerset West, South Africa ». Les teneurs en hydrogène (H) et en oxygène (O) sont obtenues respectivement par les relations [3].

$$H = 0,052 CF + 0,062 MV \quad (2)$$

$$O = 0,304 CF + 0,416 MV \quad (3)$$

où, H est la teneur en hydrogène, CF la teneur en carbone fixe, MV la teneur en matières volatiles et O la teneur en oxygène.

2-4. Analyse thermogravimétrique

Cette analyse est effectuée à l'aide de l'instrument, l'analyseur thermogravimétrique TGA Q 500. Des échantillons broyés de masse 10 mg ont été chauffés dans un creuset en aluminium avec un débit d'azote de 60 ml/mn, en maintenant une vitesse de chauffage constante de 10 °C/mn dans un intervalle de température compris entre 23 °C et 600 °C. La masse d'échantillon résiduelle en fonction du changement de température est enregistrée. Ce qui nous permet d'obtenir la courbe TGA (Thermogravimetric Analysis) et la courbe dérivée DTA (Differential Thermogravimetric Analysis).

2-5. Analyse cinétique et méthode de Coats-Redfern

La constante cinétique k de toute réaction chimique s'exprime d'après la Loi d'Arrhenius

$$k = Ae^{\frac{-E}{RT}} \quad (4)$$

où, k est la constante cinétique, A le facteur pré exponentiel d'Arrhenius, E l'énergie d'activation en kJ/mol, T la température au cours de la réaction et R la constante des gaz parfaits en J/mol/°K.

Par ailleurs, la conversion de la combustion α de l'échantillon [21 - 23] est définie par l'expression

$$\alpha = \frac{m_T - m_0}{m_f - m_0} \quad (5)$$

où, m_T est la masse en mg de l'échantillon à la température T considérée, m_0 et m_f respectivement la masse en mg au début et à la fin de la réaction.

La vitesse de réaction du processus de combustion peut être décrite à l'aide des deux **Équations** d'Arrhenius **(6) et (7)** suivantes en fonction du temps t en seconde et de la température T en degré Kelvin.

$$\frac{d\alpha}{dt} = A \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \cdot f(\alpha) \quad (6)$$

$$\frac{d\alpha}{dT} = \frac{A}{\beta} \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \cdot f(\alpha) \quad (7)$$

où, $\beta = \frac{dT}{dt}$ est la vitesse de chauffage en °C/s et $f(\alpha)$ la fonction de mécanisme. Si on considère une réaction du premier ordre,

$$f(\alpha) = 1 - \alpha \quad (8)$$

$$\frac{d\alpha}{dT} = \frac{A}{\beta} \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \cdot (1 - \alpha)$$

$$\int \frac{d\alpha}{1-\alpha} = \int \frac{A}{\beta} \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) dT$$

Si on pose

$$u = e^{\frac{-E}{RT}} ; du = \frac{E}{RT^2} e^{\frac{-E}{RT}} dT, \text{ on a}$$

$$dT = \frac{du}{\frac{E}{RT^2} e^{\frac{-E}{RT}}} = \frac{du}{u \frac{E}{RT^2}}, \text{ nous avons alors}$$

$$-\ln(1 - \alpha) = \frac{A}{\beta} \int \frac{du}{\frac{E}{RT^2}}$$

A une température fixée T correspondant à une conversion α , on peut faire sortir $\frac{E}{RT^2}$ de l'intégrale

$$-\ln\left(\frac{1}{T^2} \ln(1 - \alpha)\right) = \ln\left(\frac{AR}{\beta E}\right) - \frac{E}{RT} \tag{9}$$

où, E [kJ/mol] est l'énergie d'activation, R égale à $8,314 \text{ J.mol}^{-1} . ^\circ\text{K}^{-1}$, la constante des gaz parfaits et A [s^{-1}] le facteur pré-exponentiel d'Arrhenius.

L'Équation (9) est celle utilisée par Coats et Redfern, laquelle définit une droite $y = f(x)$. Le tracé de la courbe de l'Équation (9) définit un indice

$$y = \ln\left(-\frac{1}{T^2} \ln(1 - \alpha)\right)$$

utilisé pour évaluer la réactivité de la combustion de la biomasse [22], qui par rapport à la variable x égale à $(1 / T)$, résulte une fonction linéaire, une droite de pente $(-E/R)$, et d'interception $[\ln(\frac{A.R}{\beta.E})]$. La courbe a été obtenue par Excel, qui utilise la méthode du moindre carré pour signaler le coefficient de corrélation R^2 , indiquant la précision du tracé. L'énergie d'activation E peut être calculée à partir de la pente de la droite ajustée, et le facteur d'Arrhenius s'en suit déterminer à partir de l'interception, avec l'énergie d'activation connue. L'analyse cinétique détermine la vitesse de réaction chimique k , à l'aide de la relation semi-empirique (4). Le facteur pré-exponentiel A d'Arrhenius mentionne le nombre de collisions de molécules, et l'énergie d'activation E décrit le comportement de l'échantillon lors des processus de décomposition à l'état solide. L'analyse TGA montre la réactivité et la dégradation de l'échantillon [24, 25], tout en considérant la conversion (5) décrivant la perte de masse à chaque élévation de température. Toutes les données de l'appareil TGA seront exploitées par le logiciel Excel, pour représenter la courbe TGA. La courbe DTG est une fonction dérivée de la perte de masse, pour laquelle les points d'inflexion de la courbe TGA correspondent à des pics. L'équation (9) montre le rapport entre la masse, le temps et la température par la conversion α et le taux de chauffage β , respectivement. Les paramètres cinétiques E et A fournissent des informations sur la vitesse de réaction et la quantité de collisions intermoléculaires pendant les réactions.

3. Résultats et discussion

3-1. Analyses immédiate et élémentaire

Les résultats d'analyses sont présentés dans le **Tableau 1**.

Tableau 1 : Caractéristiques des combustibles [Laboratoire du Département des forêts et science du bois/Université de Stellenbosch et Bemlab/ Somerset Mall/ Afrique du Sud. 2016]

	PARAMETRE	Mélanges charbon de terre/balles de riz (BDR)				
		Charbon 100 %	Mélange 90-10	Mélange 80-20	Mélange 60-40	BDR 100 %
Analyse immédiate (base sèche)	Humidité, H [%]	0,56	1,01	1,64	2,65	7,29
	Matières volatiles, MV [%]	19,22	27,90	31,17	43,33	72,93
	Cendre, Cd [%]	16,10	16,65	17,16	17,13	17,66
	Carbone fixe, CF [%]	64,68	55,45	51,67	39,54	9,41
	Pouvoir calorifique, PC [MJ/kg]	29,94	28,35	26,49	23,93	14,83
	Densité apparente, ρ [kg/m ³]	1050	877	821	698	383
Analyse élémentaire	Carbone, C [%]	62,5	48,02	47,10	4,90	42,1
	Hydrogène, H [%]	4,56	4,61	4,62	4,74	5,01
	Oxygène, O [%]	28,81	30,14	30,54	32,65	37,58
	Azote, N [%]	1,46	1,25	1,06	1,2	0,35
	Soufre, S [mg/kg]	0,11	0,09	0,08	0,07	0,04
	Silicium, Si [mg/kg]	208,75	233,8	266,81	347	556,24
	Chlore, Cl [mg/kg]	710,40	834,72	799,2	1108	1704,96

Les teneurs en humidité H, en matières volatiles MV, en cendres Cd, croissent linéairement avec les taux en BDR dans les combustibles, de 0,56 à 7,29 % ; de 19,22 à 72,93 % ; de 16,10 à 17,66 %. Ces teneurs sont des propriétés les plus importantes pour l'utilisation de la biomasse comme combustible, car ils affectent toutes les chaînes d'approvisionnement et les coûts associés, à savoir les transports, les stockages, les valeurs calorifiques des contenus, les méthodes de conversion et l'utilisation finale. Ces trois caractéristiques rendent nuisibles à la gazéification. Tandis que les teneurs en carbone fixes CF, les pouvoirs calorifiques PC et les densités en décroissent de 64,68 à 9,41 % ; de 29,94 à 14,83 MJ/kg ; de 1050 à 383 kg/m³ respectivement, alors que des fortes valeurs de ces trois dernières caractéristiques sont les plus recherchées dans la conversion des combustibles pour la production de syngas [26]. Pour l'analyse élémentaire, les hautes concentrations en H, O, Si, Cl des mélanges et des balles de riz 100 %, sont préoccupantes pour tout réacteur de conversion, car leurs significatives valeurs élevées provoquent la scorification et la corrosion dans le réacteur. L'augmentation des substances volatiles est l'effet de la présence accrue d'hydrogène résultant du rapport H/C plus élevé dans la biomasse [26]. La teneur élevée en oxygène sert d'indice au pouvoir calorifique faible, la présence massive de liaisons C-O et C-H justifie de plus faible potentiel énergétique des biomasses, moins énergétiques que les liaisons C-C dans les charbons de terre [27]. Par contre, les faibles teneurs en N, S de la balle de riz et des trois mélanges leurs associent dans les rangs de combustibles appropriés pour la gazéification, dans ce sens que des taux élevés en ces éléments favorisent la formation des gaz polluant l'environnement [26]. Nous tenons à remarquer que les caractéristiques de la balle de riz dépendent de sa région d'origine [7]. Par exemple, le **Tableau 2** montre certaines propriétés de la balle de riz de Madagascar par rapport à dix variétés de balle de riz sélectionnées et analysées en Ouganda [7]. Leurs pouvoirs calorifiques sont comparables, mais leurs teneurs en carbone fixe plus faibles et leurs contenus volatiles plus élevés.

Tableau 2 : Comparaison des caractéristiques des BDR de l'Ouganda et de Madagascar

	ρ [kg/m ³]	H [%]	MV [%]	Cd [%]	CF [%]	C [%]	PV [MJ/kg]
Ouganda	88,8 – 124,3	9,2-11,2	58,8 – 66,4	15,9 – 25,6	14,8 – 17,8	30 – 34,5	12,8 – 14,5
Madagascar	383	7,29	72,93	17,66	9,41	42	14,83

Ainsi, on devrait mélanger de la biomasse avec du charbon fossile si on veut réduire les rejets polluants de leur gaz de synthèse, tout en conservant un pouvoir calorifique élevé.

3-2. Analyses gravimétriques

La perte de masse due à la dégradation thermique des différents échantillons est illustrée sur les graphiques TGA et DTG des *Figures 1 et 2*.

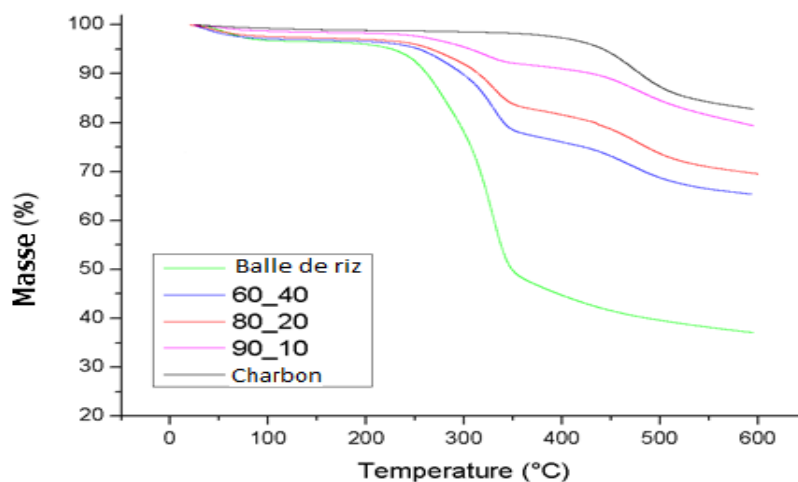


Figure 1 : *Courbes TGA des cinq échantillons*

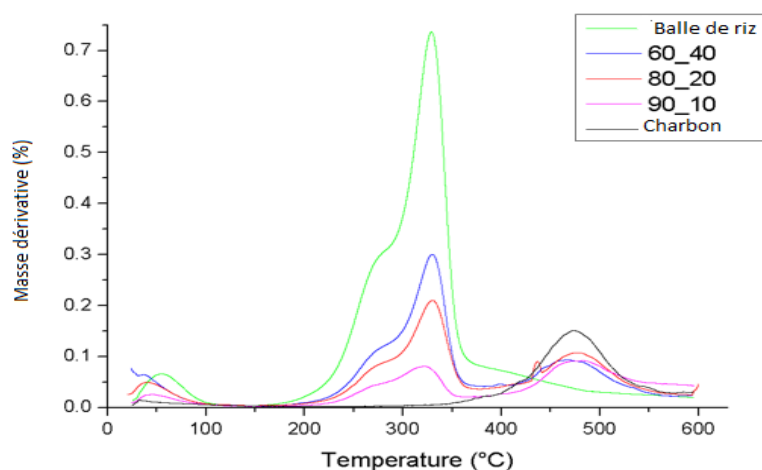


Figure 2 : *Courbes DTG des cinq échantillons*

Sur la *Figure 1*, on observe qu'en certains points, chaque courbe change de concavité. Les points d'inflexion peuvent être remarquables par le fait qu'ils constituent des extremums sur les graphes de leurs courbes dérivées sur la *Figure 2*, et formant ainsi les pics de dégagement maximal de matières.

Tableau 3 : *Pics de températures T_1 , T_2 , et masses résiduelles à 600°C*

Echantillon	T_1 [°C]	T_2 [°C]	Résidu à 600°C [%]
Charbon 100 %		467	83
90-10	330	465	80
80-20	328	464	70
60-40	320	452	65
BDR 100 %	328		37

Le **Tableau 3** énumère les températures auxquelles les pics se situent sur la courbe DTG (T_1 et T_2) et le poids résiduel à 600 °C. Un petit pic peu avant 100 °C a été remarqué pour tous les échantillons, car il constitue l'évaporation de l'eau présente dans les échantillons [23]. La première zone de température comprise entre 150 et 400 °C correspond au processus de combustion volatile. La seconde comprise entre 400 et 600 °C, au processus de combustion de carbone fixe de la biomasse [22]. Le premier pic marque le début de la dégradation de la matière lignocellulosique de la biomasse. Le charbon n'a aucune réaction à cette température. Les travaux de recherche [18] nous permettent d'observer la dégradation de l'hémicellulose, de la cellulose et de la lignine de la balle de riz respectivement dans les plages de température comprise entre 150 et 350 °C, 275 et 380 °C puis 250 et 550 °C. Les débuts de la décomposition du charbon qui apparaissent aux deuxièmes pics des mélanges se chevauchent tous avec les dégradations des lignines des biomasses. La décomposition de la cellulose commence à 275 °C et persiste jusqu'à 380 °C, tandis que l'hémicellulose commence sa décomposition à 150 °C et continue jusqu'à 350 °C [28]. Enfin, la décomposition de la lignine s'étend à toute la plage de température, commençant bien au-dessous de 250 °C et persistant au-dessus de 550 °C. La perte maximale de masse correspond à la libération maximale des substances volatiles, qui se produit à la température montrant un pic sur la courbe DTG [25]. La **Figure 2** montre que la balle de riz (BDR) a un pic entre 200 et 400 °C. Les mélanges de charbon-BDR ont deux pics entre 200 et 600 °C, tandis que le charbon n'a qu'un seul pic autour de 500 °C. Le charbon présente sa principale décomposition thermique à 467 °C, ce qui prouve qu'il s'agit d'un charbon de haute qualité.

Le lignite, classé comme charbon de rang inférieur, atteint sa combustion maximale en dessous de 400 °C. La BDR a son pic autour de 270 °C, ce qui peut être attribué à la dégradation de la lignine, des hémicelluloses. Les valeurs de T_1 sont relativement proches pour chaque échantillon de mélanges. Plus la masse restante est élevée à 600 °C, plus l'échantillon est thermiquement stable, ce qui est souhaitable et sollicité pour la gazéification à des plus hautes températures. La biomasse avec une faible stabilité thermique se dégrade plus rapidement à basses températures. Les masses résiduelles des mélanges sont ainsi liées à des teneurs élevées en cendres, alors qu'ils vont affronter à la gazéification. Celui à moins de cendres sera le mieux adapté aux réacteurs de gazéification. La décomposition thermique pour le cas du charbon n'est pas encore terminée à 600 °C [1]. A 350 °C, la carbonisation primaire du charbon commence par la libération de gaz carbonique CO_2 , d'hydrogène H_2 , du monoxyde de carbone CO et de groupes alkyle aromatiques [1]. La gamme entre 350 °C et 700 °C correspond à la pyrolyse ou la volatilisation primaire (perturbation des liaisons hydrogène), au cours de laquelle le carbone C , les composés d'hydrogène (H) et d'oxygène (O) sont libérés. Entre 500 et 750 °C, dégagement d'hydrogène (H_2) atteint une valeur maximale. Dans la gamme comprise entre 600 et 800 °C, les monoxydes de carbone (CO), le gaz carbonique (CO_2), l'eau (H_2O), l'hydrogène (H_2) et le méthane (CH_4) sont les principaux produits de dégradation. La deuxième réaction du charbon commence autour de 800 °C, dans laquelle se produit une oxydation partielle, ce qui signifie qu'à 600 °C, la décomposition du charbon n'est pas terminée et la masse restante est constituée de plus de cendres au fur et à mesure que le combustible contient plus de biomasse [2]. La conversion du charbon est terminée dans la gamme de température comprise entre 900 et 1 200 °C, puis le taux de production de gaz de synthèse est maximal dans cette gamme de température [26].

3-3. Analyses cinétiques

La méthode de Coast-Redfern est appliquée en exploitant les données thermogravimétriques. Elle a permis de dresser le **Tableau 4** pour l'analyse cinétique, dans deux plages de températures [150-400 °C] et [400-600 °C].

Tableau 4 : Energie d'activation E, facteur pré-exponentiel A et coefficient de corrélation R² entre deux intervalles de températures

		Température	Pente	Interception	E [kJ/mol]	A [s ⁻¹]	R ²
Mélanges charbon de terre - balles de riz (BDR)	Charbon 100 %	150 – 400 °C	-3731	-7,1912	31,02	0	0,86
	90 – 10	150 – 400 °C	-7907,6	0,5202	65,74	0,06.10 ⁶	0,97
	80 – 20	150 – 400 °C	-8524,4	1,457	70,87	0,17.10 ⁶	0,97
	60 – 40	150 – 400 °C	-9060,5	2,3792	75,33	0,46.10 ⁶	0,98
	BDR 100 %	150 – 400 °C	-10020	4,0697	83,31	2,77.10 ⁶	0,98
	Charbon 100%	400 – 600 °C	-15077	5,9255	125,35	26,67.10 ⁶	0,86
	90 – 10	400 – 600 °C	-14329	4,71	119,13	7,52.10 ⁶	0,90
	80 – 20	400 – 600 °C	-13064	3,29	108,61	1,66.10 ⁶	0,86
	60 – 40	400 – 600 °C	-13296	3,7457	110,54	2,66.10 ⁶	0,86
	BDR 100 %	400 – 600 °C	-9498,8	-1,033	78,84	0,02.10 ⁶	0,83

Comme ont confirmé les Auteurs des travaux de recherche [29], les combustibles solides de rang supérieur présentent de grandes valeurs d'énergies d'activation et des facteurs pré-exponentiels. Les valeurs élevées de l'énergie d'activation E peuvent être expliquées par la teneur élevée en carbone dans les échantillons [25]. Cependant, on a remarqué que même si les échantillons contiennent plus de carbone, la réactivité dépend de la plage de température. Par exemple, le mélange 90/10 a une énergie d'activation E = 65,74 kJ/mol, inférieure par rapport à celles des autres mélanges 80/20 et 60/40, respectivement 70,87 et 75,33 kJ/mol dans la première plage de température (150-400 °C), mais une valeur de E supérieure dans la gamme de 400 °C à 600 °C. De même, la balle de riz manifeste moins d'activité thermique dans la plage de température supérieure comprise entre 400 et 600 °C, indiquée par l'énergie d'activation inférieure E, qui croît avec l'augmentation de la teneur en charbon. Cependant, la décomposition de la lignine contribue également à l'énergie d'activation E dans cette gamme de température, ce qui explique pourquoi l'énergie d'activation des balles de riz est encore relativement élevée. Dans la plage de température inférieure, l'interception est négative pour le charbon, on peut alors négliger le facteur pré exponentiel d'Arrhenius $A \approx 0$. Comme on peut le voir sur le **Tableau 4**, le charbon ne réagit guère dans la plage de température comprise entre 150 et 400 °C.

L'énergie d'activation E croît avec l'augmentation de la teneur en BDR dans cette gamme de température. Les biomasses sont très actives dans cette plage. Les facteurs de corrélation R² sont tous au-dessus de 0,8. Pour le charbon, dans la gamme de température inférieure, c'est-à-dire 150 °C-400 °C, R² est égal à 0,86 comme il le sera dans 400 °C-600 °C. Il est significativement plus faible pour la BDR à 400 °C-600 °C et les mélanges. Cela s'explique par les différentes décompositions chimiques très diverses qui se produisent à ces températures. La méthode Coats-Redfern diminue d'applicabilité avec de multiples réactions [22], mais puisque R² est toujours proche de 0,9, la méthode est appropriée pour cette analyse. Les travaux de recherche [1] nous permettent de noter que, pour la co-gazéification du mélange de biomasse et de charbon, la fraction massique de la biomasse (balles de riz et bambou mélangés au lignite) ne devrait pas dépasser 30 % en poids pour réduire les émissions de gaz carbonique (CO₂) et de dioxyde de soufre (SO₂), puis ne doit pas dépasser 20 % pour minimiser les émissions d'oxydes d'azote NO ou NOx. L'échantillon aura une énergie d'activation E plus importante dans la zone de combustion volatile et une énergie E inférieure dans la zone de combustion de carbone fixe.

4. Conclusion

L'objectif de cette étude est d'optimiser le mélange de charbon et de balle de riz pour la gazéification, afin de diminuer l'utilisation du charbon fossile, et en même temps de valoriser la balle de riz. Les résultats du mélange de 90-10 révèlent la meilleure option de combustible car il a un plus haut pouvoir calorifique. Par rapport aux deux autres mélanges, il est le mieux placé pour être un meilleur biocombustible, car il a la plus basse teneur en cendres avant la gazéification, et par rapport au charbon 100 %, il a la plus basse teneur en soufre et azote, sources de gaz polluants au cours de la gazéification. Le mélange 90-10 présente à la fois un minimum d'azote et de soufre et un maximum d'énergie.

Références

- [1] - K. JAYARAMAN, E. BONIFACI, N. MERLOM, I. GOKALP, High ash coal pyrolysis and gasification studies in argon, steam and air ambiance for syngas production. *Proceeding of the European Combustion Meeting*, (2013)
- [2] - OA. AKINWELY, Co-gasification of coal and biomass : Impact on condensate and syngas production. PhD thesis, Stellenbosch University, (2012)
- [3] - M. MEINCKEN, L. TYHODA, Biomass quality, chapter 8. In *Bioenergy from wood*, ed. Thomas Seifert, Springer Doderecht, (2014)
- [4] - I. QUISPE, RODRIGO NAVIA, RAMZY KAHHAT, Energy potential from rice husk through direct combustion and fast pyrolysis, areview. *Journal of Waste Management*, (2016)
- [5] - JOSEPH BILLAUD, « Gazéification de la biomasse en réacteur à flux entrainé : Etude expérimentale et modélisation », Thèse de doctorat, Université de Toulouse, (2015) 203 p.
- [6] - LE QUYENLUU, A. HALOG, Rice husk based bioelectricity vs. Coal-fired electricity: Life cycle sustainability assessment case study in Vietnam. *Procedia CIRP*, 40 (2016) 73 - 78
- [7] - PW. OLUPOT, A. CANDIA, E. MENYA, R. WALOZI, Characterization of rice husk varieties in Uganda for biofuels and their techno-economic feasibility in gasification. *Chemical Engineering Research and Design*, 107 (2016) 63 - 72
- [8] - IO. OBILADE, Use of rice husk ash as partial replacement for cement in concrete. *International Journal of Engineering and Applied Sciences*, Vol. 5, N°04-ISSN 2305-8269 (2014)
- [9] - HUANG ZHEN-KUN, QF. LU, Q. LIN, X. CHENG, Microstructure, properties and lignin-based Modification of wood-Ceramic from rice husk and coal tar pitch. *Journal of Inorganic and organometallic Polymers and Materials*, Vol. 22, Issue 5, (2012) 1113 - 1121 p, Doi : 10.1007/s10 904-012-9708-6
- [10] - N. M. KHALIL, E. M. HASSAN, M. M. E. SHAKDOFA, M. FARAHAT, Beneficiation of the huge waste quantities of barley and rice husks as well as coal fly ashes as additives for Portland cement, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 20 (2014) 2998 - 3008
- [11] - J. ANDRIAMAMPINANINA, Production d'électricité à l'aide de moteur de cogénération alimenté par gaz de synthèse. *Bulletin de l'Académie Nationale des Arts des Lettres et des Sciences*. Antananarivo Madagascar, Tome XCIV12, ISSN 1728 - 4317, (2014)
- [12] - JD. RAMAROSON, Contribution à l'étude de transformation du charbon de terre de la Sakoa en combustible domestique. PhD de l'Ecole Supérieure Polytechnique d'Antananarivo Université de Madagascar, Chap. 1 :8-4, (2010) 23 p.
- [13] - IVAN NYGAARD, FILIFING DEMBELE, IBRAHIMA DAOU, ADAMA MARIKO, FAMAKAN KAMISSOKO, NANOUROU COULIBALY, RASMUS L.BORGSTROM, THILDE BECK BRUUN, Lignocellulosic residues for production of electricity, biogas or second generation biofuel : A case study of technical and sustainable potential of rice straw in Mali, *Renewable and Sustainable Energy, Reviews*, 61 (2016) 202 - 212

- [14] - A. ATA EI, A. AZIMIZ, SB. KALHORIZ, MF. ABARI, H. RADNEZHAD, Performance analysis of co-gasifier for waste in agriculture, *International Journal of Recycling of Organic Waste in Agriculture*, (2012) 1 - 6
- [15] - T. MADHIYANON, P. SATHITRUANGSAK, S. SOPONRONNARIT, Co-firing characteristics of rice husk and coal in a cyclonic fluidized-bed combustor (Ψ -FBC) under controlled bed temperature, *Fuel*, 90 (2011) 2103 - 2112
- [16] - G. AGARWAL, B. LATTIMER, Physicochemical, kinetic and energetic investigation of coal-biomass mixture pyrolysis, *Fuel Processing Technology*, 124 (2014) 174 - 187
- [17] - P. SARKAR, SG. SAHU, N. CHAKRABORTY, AK. ADAK, Studies on potential utilization of rice husk char in blend with lignite for co combustion application, *Thermal Analysis and Calorimetry*, Vol. 115, Issue 2, (2014) 1573-1581 p. Doi : 10.1007/s10973-013-3499-z
- [18] - K. QIU, H. ZHANG, H. ZHOU, B. ZHOU, L. LI, K. CEN, Experimental investigation of ash deposits characteristics of co-combustion of coal and rice hull using a digital image technique, *Applied Thermal Engineering*, Vol. 70, Issue 1, 5 (2014) 77 - 89 p.
- [19] - S. MEESUK, JP. CAO, K. SATO, Y. OGAWA, T. TAKARADA, The effects of temperature on product yields and composition of bio-oils in hydrolysis of rice husk using nickel-loaded brown coal char catalyst, *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 94 (2012) 238 - 245
- [20] - Z. YU, S. FANG, Y. LIN, Y. LIAO, X. MA, Investigation of Rice straw Combustion by using Thermogravimetric Analysis, *Energy Procedia*, 75 (2015) 144 - 149
- [21] - E. KHAGHANIKAVKANI, MN. FARID, Thermal pyrolysis of polyethylene : Kinetic study, *Energy Science and Technology*, Vol. 2, N°1 (2011) 1 - 10 p. DOI: 10.3968/j. est. 1923847920110201 597
- [22] - Q. WANG, W. ZHAO, H. LIU, C. JIA, H. XU, Reactivity and kinetic analysis of biomass during combustion, *Energy Procedia*, 17 (2012) 869 - 875
- [23] - N. KOGA, Ozawa's Kinetic method for analysing thermoanalytical curves : History and theoretical fundamentals, *Journal of Thermal Analysis Calorimetry*, (2013), DOI 10. 1007/s 10973-012-2882-5
- [24] - GHANIA OUNOUGHENE, Etude des émissions liées à la décomposition thermique de nano-composites : application à l'incinération, *Génie des procédés*. Ecole des Mines de Nantes, (2015)
- [25] - ZHAOSHENG YU, SHIWEN FANG, YOUSHENG LIN, YANFEN LIAO, XIAOQIAN MA, Investigation of Rice Straw Combustion by Using Thermogravimetric Analysis, *Energy Procedia*, 75 (2015) 144 - 149
- [26] - AKINWALE OLUFEMI ABOYADE, Co gasification of coal and biomass: Impact on condensate and syngas production, for the degree of Doctor of philosophy Faculty of Engineering Stellenbosch University Chemical engineering, (2012)
- [27] - JEROME LEMONON, Valorisation énergétique et matière du revêtement de sol stratifié par pyrolyse & gazéification, thèse de doctorat de l'Université de Lorraine Laboratoires d'Etudes et de Recherches sur le Matériau Bois, (2012)
- [28] - DIANA C. MARIN, ANTONELA VECCHIO, LEANDRO N. LUDUEÑA, DIANA FASCE, VERA A. ALVAREZ and PABLO M. STEFANI, Revalorization of Rice Husk Waste as a Source of Cellulose and Silica, *Fibers and Polymers*, Vol. 16, N°2 (2015) 285 - 293. DOI 10.1007/s12221-015-0285-5
- [29] - ZHANG LIHUI, DUAN FENG, HUANG YAJI, Effect of organic calcium compounds on combustion characteristics of rice husk, sewage sludge, and bituminous coal : Thermogravimetric investigation, *Bioresource Thechnology*, 180 (2015) 62 - 71