DOUNIT S. et HEMATI M.

COMBUSTION DE PREMELANGES AIR-GAZ NATUREL EN REACTEUR LIT FLUIDISE : ETUDE EXPERIMENTALE DE LA ZONE DE DESENGAGEMENT

Salah DOUNIT^{1,*} et Mehrdji HEMATI² ¹ Laboratoire de Génie des Procédés, Université Kasdi Merbah Ouargla, Ouargla 30000, Algérie ² Laboratoire de Génie Chimique U.M.R 5503 – ENSIACET 4, allée Emile Monso - BP 44362, 31030 TOULOUSE Cedex 4, France * sdounit@yahoo.fr

RESUME. La combustion de pré-mélanges air – gaz naturel dans un réacteur à lit fluidisé contenant des particules inertes a été étudiée expérimentalement à des températures de lit dense variant entre 650 et 800 °C. Au cours de cette étude, les effets du facteur d'air du mélange combustible, de la hauteur du lit au minimum de fluidisation, de la vitesse superficielle du mélange combustible, de la granulométrie des particules solides et de la température du lit dense ont été examinés. Les résultats obtenus ont permis d'estimer une température de lit dense, de l'ordre de 800 °C, en dessous de laquelle les phénomènes qui se produisent dan la zone de désengagement conditionnent le comportement général du réacteur. Dans cette situation, parmi les paramètres opératoires examinés, seules la température de la couche dense, la vitesse superficielle du gaz et la granulométrie des particules solides exercent un effet notable sur l'évolution du système réactionnel.

Mot clés : Combustion, gaz naturel, lit fluidisé, désengagement

ABSTRACT. The combustion of natural gas - air mixtures in fluidised bed reactors containing inert media has been investigated experimentally at dense bed temperatures ranging between 650 and 800 °C. During this study, the effects of the excess air factor, the dense bed height at minimum fluidising velocity, the superficial gas velocity and the solid particles mean diameter were examined. The obtained results has permitted to determine some limit bed temperature, which arounds 800 °C, below which the whole reactor behaviour is governed by phenomena taking place in the freeboard region. In this situation, among the studied operating parameters, only the dense bed temperature, the superficial gas velocity and the particles mean diameter exert an important effect on the system evolution.

Key words : Combustion, natural gas, fluidised bed, freeboard region

1. INTRODUCTION.

Les mesures des coefficients de transfert de chaleur entre un lit fluidisé et les parois qui l'entourent ont révélé des valeurs comprises entre 3 et 8 fois leurs valeurs mesurées entre un lit fixe traversé par un gaz et les parois du réacteur [1]. Cette propriété, combinée avec l'isothermicité de la couche fluidisée constatée expérimentalement dans la plupart des situations, a rendu ce type de contacteurs très performant vis-à-vis des réactions nécessitant d'une part un contact intime entre le gaz et les particules solides et d'autre part, un apport externe ou une évacuation d'énergie. Les lits fluidisés ont ainsi été intégrés dans de nombreux procédés industriels tels que ceux relatifs aux traitements thermiques des particules solides (séchage, calcination) ou encore l'incinération des déchets solides de différentes natures. Dans ce dernier cas, le pouvoir calorifique du solide traité est généralement faible et ne permet pas d'entretenir la réaction chimique gouvernant sa transformation. C'est pourquoi dans l'industrie, l'incinération des déchets est réalisée dans des réacteurs à lits fluidisés chauffés par combustion interne de gaz naturel. Ce dernier est en effet considéré comme une des sources d'énergie les plus propres car à des températures inférieures à 850 °C, la formation des NO_x est très réduite [2].

Plusieurs études théorique et expérimentales concernant la caractérisation du processus de combustion du gaz naturel en lit fluidisé ont été réalisées [2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10]. Ces études ont permis d'observer différents comportements du réacteur selon la température à laquelle est portée la couche dense. A des températures de lit dense inférieures à une température limite, la réaction chimique a lieu entièrement dans la zone de désengagement et conduit à une augmentation

significative de la température du milieu réactionnel. Sadilov et Baskakov [8] ont ainsi mesuré expérimentalement des températures supérieures à la température théorique de flamme dans la région d'éruption des bulles près de la surface du lit dense. Lorsque la température du lit dense dépasse la valeur limite, mesurée expérimentalement par différents auteurs entre 800 et 860 °C, la combustion du gaz naturel a lieu essentiellement au sein de la couche dense. Dans ces conditions, les mesures expérimentales réalisées par Pré-Goubelle [6] sur un lit fluidisé contenant des particules de sable de diamètre moyen variant entre 350 et 550 μ m ont montré que la conversion de la totalité du méthane est réalisée sur une petite distance proche du distributeur de gaz. Ce résultat corrobore les observations effectuées dans un travail antérieur réalisé par Baskakov et Makhorin [3] qui ont mis en évidence l'existence d'un écart significatif entre la température du milieu réactionnel dans la zone proche du distributeur (autour de 1480 °C) et la température moyenne de la couche dense (1100 °C).

Dans le domaine du traitement thermique des solides divisés, certains procédés imposent des températures de travail relativement faibles (inférieures à 750 °C) afin de ne pas altérer les propriétés physiques de ces particules. Dans ce cas de figure, la température du lit dense est maintenue à une valeur faible, par conséquent, la combustion du méthane est réalisée de façon quasi-intégrale dans la zone de désengagement qui est une zone diluée contenant une distribution non uniforme des particules solides. Il apparaît ainsi nécessaire de mener un travail expérimental visant la caractérisation du processus de combustion dans cette zone avant d'étudier les réactions propres au processus chimique concerné.

Les principaux travaux bibliographiques réalisés dans ce domaine sont soit des études relatives à l'hydrodynamique de cette zone [11, 12, 13, 14, 15], soit des études qui concernent des réactions simples, isothermes et du premier ordre [10, 16, 17]. Néanmoins, ces études théoriques ont permis de mettre en évidence l'important rôle joué par la zone de désengagement vis-à-vis de l'évolution de la réaction chimique à cause de l'importante augmentation de la surface de contact direct entre la phase gazeuse et les particules solides.

L'objectif du travail expérimental présenté dans cet article est la caractérisation du processus de combustion du gaz naturel dans la zone du désengagement du réacteur et l'étude de l'influence des différents paramètres opératoires sur les mécanismes réactionnels mis en jeu. Les résultats de cette étude serviront par ailleurs à valider le modèle de réacteur établi.

2. INSTALLATION EXPERIMENTALE.

Sur la figure 1 nous avons reporté un schéma de l'installation expérimentale utilisée au cours de cette étude. Le réacteur utilisé est une colonne en acier de 180 mm de diamètre et de 1400 mm de hauteur. Elle est surmontée d'une zone cylindro-conique de 360 mm de diamètre et de 1000 mm de hauteur servant à récupérer toutes les particules projetées dans la zone de désengagement. Cette colonne est munie de deux distributeurs à plaques perforées de 3,6 % et de 0,4 % de porosité délimitant un petit espace appelé chambre de pré-mélange destiné à parfaire le mélange de l'air et du gaz naturel. Le réacteur est muni axialement de capteurs de températures et de pressions. Les grandeurs mesurées par ces différents capteurs sont enregistrées dans un micro ordinateur via une série de modules d'acquisition. Par ailleurs, le suivi de l'évolution du système réactionnel le long du réacteur est réalisé grâce à une série de sondes de prélèvement d'échantillons gazeux reliées aux analyseurs infrarouge et paramagnétique. Ces derniers permettent de déterminer les teneurs en CH₄, O₂, CO et CO₂ dans le gaz sec. Afin de maintenir la température de la couche dense à une valeur désirée, le réacteur est muni d'une double enveloppe dans laquelle de l'air peut circuler. La régulation de la température du lit est alors réalisée grâce à un thermocouple placé dans la couche dense et relié à un régulateur P.I.D. En cas de dépassement de la température de consigne, le régulateur commande l'ouverture d'une vanne pneumatique et permet de refroidir les parois du réacteur par circulation d'air dans la double enveloppe.

Cette installation expérimentale est munie de deux dispositifs de sécurité. Le premier dispositif est un brûleur pilote placé dans la zone cylindro-conique du réacteur. Ce brûleur pilote permet



Figure 1 : Représentation schématique de l'installation expérimentale.

d'une part d'amorcer la réaction de combustion du méthane dans le réacteur, et d'autre part d'achever la conversion de tous les imbrûlés en sortie de celui-ci. Quant au second dispositif de sécurité, il est constitué d'un thermocouple placé dans la chambre de pré-mélange et relié à un régulateur tout ou rien. Lorsque la température de la chambre de pré-mélange dépasse une valeur de consigne, choisie largement inférieure à la température d'auto-inflammation du mélange combustible air – gaz naturel, le régulateur coupe automatiquement l'alimentation du réacteur en gaz naturel. Les particules solides utilisées sont des particules de sable de quartz alpha. Leur diamètre moyen est de 350 μ m, et leur vitesse minimale de fluidisation est de 8 cm/s mesurée à 20 °C. Les conditions opératoires retenues pour la réalisation des essais de combustion de pré-mélange gazeux sont regroupées dans le tableau 1.

Essai	Masse de solide (kg)	U/U _{mf} à 20 °C	Taux d'excès d'air	dp (µm)	Paramètre variable
C1	9 12 15	2	1,2	350	Masse totale de solide
C2					
C3					
C4	12	3	1,2	350	Vitesse superficielle du
C5		4			mélange gazeux
C6	12	2	1	350	Taux d'excès
C7			1,5		d'air
C8	12	2	1,2	100	Granulométrie des
C9				550	particules

Tableau 1 : Conditions opératoires des essais de combustion de pré-mélanges gazeux.

3. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Initialement, nous allons présenter un essai type de combustion en commençant par les mesures effectuées en phase de chauffage du réacteur et en finissant par l'exploitation des mesures réalisées en régime permanent. Les conclusions tirées à partir de cet essai type peuvent être généralisées pour les autres expériences réalisées dans les conditions opératoires regroupées dans le tableau 1.

3.1 Exemple type de combustion

Les conditions opératoires retenues pour réaliser cet essai sont celles correspondant à l'essai C2. Afin de restreindre notre étude aux phénomènes qui se produisent dans la zone de désengagement, la température du lit a été fixée à 800 °C.

3.1.1 Evolution du système en phase de chauffage

Le suivi de l'évolution du système réactionnel en phase de chauffage du réacteur intervient au niveau des mesures des températures à différentes axiales positions dans le réacteur. Sur la figure 2, nous avons reporté les résultats des temporelles mesures des températures réalisées à une fréquence d'acquisition de 1 Hz au cours de la période de chauffage du lit entre 100 et 800 °C. Le thermocouple qui indique la température du lit étant celui placé à 170 mm du distributeur. Conformément aux observations relatées par plusieurs auteurs [4, 6, 9], cette figure met en évidence le caractère progressif



Figure 2 : Mesure des températures le long du réacteur en régime transitoire.

du déplacement du foyer de combustion des régions les plus proches du brûleur pilote vers la surface du lit pour pénétrer ensuite à l'intérieur de la couche dense. En effet, nous remarquons qu'à faibles températures de lit dense (inférieures à 400 °C), plus la position de la mesure est éloignée du distributeur, plus la valeur de la température du milieu réactionnel est élevée. Ce comportement indique que dans ces conditions, la combustion du gaz naturel a lieu près de la sortie du réacteur. Au fur et à mesure que la température du lit augmente, les écarts entre les températures mesurées à différents nivaux dans la zone de désengagement et la température du lit dense diminuent, ce qui signifie que la zone de combustion commence à s'approcher de la surface du lit dense. Lorsque la température du lit dépasse 700 °C, la figure 2 met en évidence une baisse rapide de la température mesurée dans la région proche du brûleur pilote indiquant que dans ces conditions, l'intégralité de la conversion du méthane a lieu sur une faible distance au-dessus de la surface du lit dense. Enfin, pour des températures de lit dense supérieures à 780 °C, la quasi-totalité de la réaction a lieu à l'intérieur de la couche dense car nous observons une diminution de la température du milieu réactionnel au-dessus de la surface de celle-ci. Les importantes fluctuations de la température mesurées au-dessus de la surface du lit dense à des températures de lit inférieures à 780 °C et provoquées par l'explosion des bulles de gaz en surface du lit diminuent de façon significative lorsque la combustion s'opère au sein de la couche dense.

DOUNIT S. et HEMATI M.

3.1.2. Mesures en régime permanent

A/ Mesures des températures

Sur la figure 3, nous avons reporté les profils axiaux des écarts entre les températures mesurées le long du réacteur et la température du lit dense correspondant, et cela pour les valeurs des températures de lit dense de 650, 700, 750 et 800 °C. Conformément aux observations réalisées en régime transitoire, cette figure fait apparaître le déplacement de la zone de combustion, caractérisée par une montée significative de la température du milieu réactionnel, des régions proches du brûleur pilote à faibles températures du lit dense vers la surface de la couche dense lorsque la température de celle-ci augmente. Par ailleurs, cette figure met en évidence une indépendance de l'évolution de la



Figure 3 : Profils axiaux des écarts entre les températures mesurées à chaque hauteur dans la zone de désengagement et la température du lit dense.

température du milieu réactionnel en fonction de la hauteur dans les régions situées au-dessus de la zone de combustion du méthane. Ce comportement indique que lorsque la totalité du gaz naturel introduit dans le réacteur est converti, l'évolution de la température du milieu réactionnel est gouvernée uniquement par les pertes thermiques à travers les parois du réacteur.

B/ Mesures des pertes de charge.

La mesure des profils des pertes de charge et de leurs fluctuations se fait à l'aide d'une série de quatre capteurs de pression différentielle préalablement étalonnés. Sur la figure 4, nous avons reporté un exemple du profil axial des pertes de charge mesuré en régime permanent à une température de lit dense de 700 °C. A partir de cette figure, nous pouvons localiser la surface du lit dense expansé définie par Miyauchi [18] comme la hauteur à laquelle la fraction volumique occupée par la phase bulle est égale à celle occupée par la phase émulsion, ε_{a} . Cette hauteur correspond point vérifiant au l'équation :



Figure 4 : Profil axial des pertes de charge mesuré à T_{lit} = 700 °C.

$$\frac{dP}{dz} = \varepsilon_e \cdot (1 - \varepsilon_{mf}) \cdot \rho_s \cdot 10^{-3}$$

$$= 0.5 \cdot (1 - \varepsilon_{mf}) \cdot \rho_s \cdot 10^{-3}$$
(1)

 ρ_s : masse volumique des particules de sable

 ε_{mf} : degré de vide au minimum de fluidisation des particules.

Pour cet exemple, la hauteur du lit dense a été estimée à 260 mm. Par ailleurs, à partir d'une acquisition à haute fréquence des évolutions temporelles des chutes de pression mesurées le long du réacteur, nous avons reporté sur la figure 5 les évolutions des écarts type normés de ces fluctuations autour des valeurs moyennes en fonction de la température de la couche dense. Cette figure montre que dans la zone de désengagement, cette grandeur atteint sa valeur maximale à une température de lit de l'ordre de 800 °C pour diminuer ensuite jusqu'à atteindre des valeurs comparables à celles mesurées dans le lit dense. Ce constat confirme à nouveau les résultats obtenus par d'autres chercheurs [3] qui ont montré que l'inflammation explosive des bulles de gaz à



Figure 5 : Ecarts types des fluctuations des pertes de charge à différents niveaux dans le réacteur pour différentes températures de lit.

la sortie du lit dense s'accompagne d'une augmentation de l'amplitude des pulsations de la pression dans cette zone.

C/ Evolution du système réactionnel

La figure 6 montre un exemple des profils axiaux des fractions molaires des espèces majoritaires présentes dans le gaz sec, en l'occurrence le méthane, l'oxygène, et le dioxyde de carbone, mesurés à une température de lit dense de 700 °C (dans les conditions de l'essai C2). Cette figure montre qu'à cette température du lit, la combustion du méthane a lieu entièrement dans la zone de désengagement sur une distance de 400 mm au-dessus de la surface du lit. Les évolutions progressives des teneurs en différentes espèces indiquent que la combustion du méthane dans la zone de désengagement du réacteur se fait suivant un processus de réactions lentes. Il est à noter que ce comportement est opposé à la nature explosive de cette réaction dans les milieux homogènes.

Concernant les émissions de CO, nous avons reporté sur la figure 7 les profils axiaux des fractions molaires de cette espèce obtenus à différentes températures de la couche dense. Cette figure met en évidence dans tous les cas des évolutions sous forme cloche qui indiquent que le CO constitue une espèce intermédiaire dans une succession de deux réactions consécutives. La



Figure 6 : Profils axiaux des fractions molaires des espèces majoritaires présentes dans le gaz sec ($T_{lit} = 700$ °C).



COMBUSTION DE PREMELANGES AIR-GAZ NATUREL EN REACTEUR LIT FLUIDISE : ETUDE EXPERIMENTALE DE LA ZONE DE DESENGAGEMENT

prédominance de la réaction de formation du CO dans un premier temps par rapport à la réaction de sa destruction conduit à une accumulation de cette espèce, alors que le phénomène inverse se produit lorsque la source de formation du CO, c'est à dire le méthane, est presque épuisée. Ce schéma réactionnel est confirmé par la figure 8 où nous avons reporté les évolutions des fractions molaires de CO dans le mélange gazeux en fonction du taux de conversion du méthane. Nous remarquons en effet que d'une manière générale, la teneur en CO dans les effluents gazeux ne commence à diminuer que lorsque le taux de conversion du méthane dépasse 80 %.



Figure 8 : Evolution des fractions molaires de CO mesurées à différentes températures de la couche dense.

3.2. Influence des paramètres opératoires.

Parmi les paramètres opératoires susceptibles d'affecter l'évolution du système réactionnel dans le réacteur, nous avons étudié en plus de l'effet du facteur d'air du mélange combustible défini comme le rapport entre le débit volumique d'air introduit réellement dans le réacteur et le débit d'air nécessaire pour une combustion stœchiométrique du méthane, l'effet de la hauteur du lit au minimum de fluidisation, de la vitesse superficielle du mélange combustible et de la granulométrie des particules solides. Les domaines de variation de ces paramètres sont reportés dans le tableau 2.

Les résultats de cette étude paramétrique ont permis de mettre en évidence une très faible influence du facteur d'air lorsque celui-ci dépasse 1,2. Néanmoins, pour des valeurs correspondant à un mélange stœchiométrique ou légèrement en défaut d'air, une augmentation significative des émissions de CO a été détectée. Notons que ces résultats sont an accord avec ceux obtenus précédemment par Pré-Goubelle [6]. Au même titre que le facteur d'air, les résultats obtenus ont permis de montrer que l'évolution du système réactionnel n'est que très faiblement affectée par la hauteur du lit au minimum de fluidisation. Cette faible influence de ce facteur a été attribuée au fait qu'aux températures de lit dense retenues (650 à 800 °C), l'essentiel de la réaction chimique a lieu dans la zone de désengagement et que dans ces conditions, le pré-mélange gazeux subit uniquement un préchauffage au sein de la couche dense.

Contrairement à ces constatations, les résultats expérimentaux ont montré que la vitesse superficielle du mélange gazeux et la granulométrie des particules solides sont des paramètres qui affectent de façon significative le processus réactionnel dans la zone de projection.

3.2.1. Effet de la vitesse superficielle du mélange gazeux

L'effet de la vitesse superficielle du mélange gazeux combustible a été étudié en faisant varier sa valeur entre 2 et 4 fois la vitesse minimale de fluidisation des particules à 20 °C. Cela correspond à des vitesses situées entre 10 et 24 fois U_{mf} à la température du lit.

Sur les deux figures 9 et 10, nous avons reporté à titre d'exemple les profils axiaux des températures et des taux de conversion du méthane mesurés à 700 °C pour les trois vitesses superficielles du mélange gazeux retenues. Ces figures montrent que la zone de combustion est d'autant plus éloignée de la surface du lit dense que la vitesse superficielle du mélange gazeux est levée. Ce comportement s'explique par la coexistence de deux effets qui affectent simultanément l'aspect thermique et réactionnel des réactions mises en jeu : Une augmentation de la vitesse superficielle du gaz conduit d'une part à une réduction du temps de séjour des réactifs dans le réacteur, et d'autre part à une augmentation de la hauteur de projection des particules solides imputable à la formation de bulles de plus grande taille en surface du lit dense. Ces particules

solides exercent un effet inhibiteur vis-à-vis de la réaction de conversion du méthane à cause de leur importante capacité calorifique volumique comparée à celle des effluents gazeux. Cependant, l'effet de ce dernier facteur semble être minime devant l'effet du temps de séjour des réactifs dans la colonne. Notons que les résultats obtenus à des températures de lit dense égales à 650, 700 et 750 °C présentent les mêmes caractéristiques et conduisent ainsi aux mêmes conclusions tirées à 700 °C.

Contrairement à cela, le comportement observé à 800 °C présente des différences considérables. En effet, à cette température de la couche dense, nous avons enregistré une augmentation de la conversion du méthane en sortie du lit lorsque la vitesse superficielle du mélange gazeux augmente. Ce comportement indique une accélération de la réaction de conversion du méthane dans le lit dense, notamment au sein des bulles de gaz. Ce phénomène peut être attribué à l'augmentation de la taille de ces bulles dans le lit qui génère d'une part une réduction des échanges convectifs de chaleur entre la phase bulle et la phase émulsion, et d'autre part une augmentation de la hauteur d'extinction des flammes. La combustion du méthane dans les bulles tend alors vers une combustion homogène de nature explosive. Il est à noter que ces observations réalisées à 800 °C sont en accord avec les résultats obtenus par Pré-Goubelle [6] à des températures de lit dense variant entre 830 et 950 °C.



Figure 9 : Profiles des températures le long du réacteur à différentes vitesses du gaz.





3.2.2. Effet de la granulométrie des particules

L'effet de ce paramètre a été étudié en employant trois lots de particules de sable homogène en taille de diamètres moyens égaux à 100, 350 et 550 µm. Au cours de ces expériences, la puissance de chauffe du réacteur a été gardée constante en maintenant le débit volumique du mélange gazeux constant et équivalent à deux fois le débit au minimum de fluidisation des particules de 350 µm de diamètre moyen. Dans ces conditions, les propriétés hydrodynamiques du lit fluidisé diffèrent d'un lot de particules à un autre. Sur les figures 11 et 12, nous avons reporté un exemple des résultats obtenus à 700 °C concernant les profils des températures et ceux des taux de conversion du méthane mesurés pour les trois tailles des particules retenues. Ces figures mettent en évidence l'important effet exercé par ce paramètre et montre qu'une réduction de la taille moyenne des particules de sable de 550 µm à 100 µm engendre un déplacement de la zone de combustion des régions proches de la surface du lit dense vers les zones proches de la source d'ignition. Ce déplacement de la zone de combustion est le résultat de la combinaison de deux effets : La réduction de la taille des particules conduit d'une part à une augmentation significative de la rétention solide dans la zone de désengagement et génère d'autre part un accroissement important de la surface d'échange thermique entre la phase gazeuse et les particules solides. Ainsi, à travers ces deux phénomènes, lorsque la taille des particules est réduite, les réactions intervenant dans le processus de conversion

COMBUSTION DE PREMELANGES AIR-GAZ NATUREL EN REACTEUR LIT FLUIDISE : ETUDE EXPERIMENTALE DE LA ZONE DE DESENGAGEMENT

DOUNIT S. et HEMATI M.

du méthane sont inhibées près de la surface du lit dense et se produisent dans des régions plus diluées, c'est à dire près de la sortie du réacteur. La valeur maximale atteinte par la température du mélange gazeux dans la zone de combustion du méthane dans ce cas est beaucoup plus importante que celle atteinte en présence de grosses particules comme le montre la figure 12. Comme conséquence directe de cette différence de température à laquelle la combustion est réalisée, le taux de formation du CO est multiplié par un facteur 5 lorsqu'on passe des particules de 550 μ m de diamètre moyen aux particules de 100 μ m de diamètre moyen. Notons que l'ensemble des conclusions présentées dans ce paragraphe concernant les mécanismes mis en jeu à une température de lit dense de 700 °C reste valable aux autres températures de lit examinées car, d'une manière générale, les mêmes observations expérimentales ont été réalisées dans ces différentes situations.



Figure 11 : Profils des températures mesurés pour les trois lots de particules $(T_{lit} = 700 \text{ }^{\circ}\text{C}).$



Figure 12 : Taux de conversion du méthane le long du réacteur pour les trois types de particules ($T_{lit} = 700$ °C).

4. CONCLUSION

Dans le contexte de ce travail, une étude expérimentale des mécanismes mis en jeu lors de la combustion du gaz naturel en réacteur à lit fluidisé contenant des particules inertes a été réalisée. L'étude entreprise a été focalisée sur l'exploration des phénomènes qui se produisent dans la zone de désengagement où l'essentiel de la transformation chimique a lieu à des températures de lit dense inférieures à 800 °C. L'ensemble des expériences effectuées a permis de tirer les conclusions suivantes :

- Une augmentation de la température de la couche dense génère un déplacement de la zone de combustion du méthane vers la surface du lit dense. Lorsque la température du lit dépasse une valeur limite, de l'ordre de 800 °C, la zone de combustion pénètre à l'intérieur de la couche dense,
- Le facteur d'air et la hauteur du lit au minimum de fluidisation sont des paramètres qui ne produisent que très peu d'effet sur l'évolution du système réactionnel,
- A des températures de lit dense inférieures à 800 °C, auquel cas la transformation chimique est réalisée intégralement dans la zone de désengagement, la vitesse d'oxydation du méthane est d'autant plus faible que la vitesse superficielle du mélange gazeux est élevée. La réduction du temps de séjour du gaz dans le réacteur est la principale cause. Par ailleurs, l'avancement de la réaction dans la zone de désengagement dépend de la taille des particules. Pour une vitesse de gaz fixée, la réduction de la taille des particules ralentit le processus de combustion du méthane,

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] Mickley H. S. et Fairbanks D. F. ; The mechanism of heat transfer in fluidized beds ; AIChE J., <u>3</u>, 374 (1955).

[2] Foka M., Chaouki J., Guy C. et Klvana D. ; Natural gas combustion in a catalytic turbulent fluidized bed"; Chem. Eng. Sci., **49**, 4261-4276 (1994).

[3] Baskakov A.P. et Makohrin K.E. ; Combustion of natural gas in fluidized beds ; Inst. of Fuel symp. Series, C3-1 (1975).

[4] Dounit S. ; Combustion du gaz naturel en réacteur à lit fluidisé : étude expérimentale et modélisation de la zone dense et de la zone de désengagement ; Thèse de Doctorat ENSIGC-INP Toulouse (2001).

[5] Dounit S., Hémati M. et Steinmetz D. ; Natural gas combustion in fluidised bed reactors between 600 and 850 $^{\circ}$ C : Experimental study and modelling of the freeboard ; Powder Technology, **120**, 49-54 (2001).

[6] Pré-Goubelle P. ; Contribution à l'étude expérimentale et à la modélisation de la combustion du gaz naturel en réacteur à lit fluidisé ; Thèse de Doctorat INP-ENSIGC Toulouse (1997).

[7] Pré, P., Hémati M. et Marchand B. ; Study of natural gas combustion in fluidised beds: modelling and experimental validation ; Chem. Eng. Sci., **53** (16), p 2871 (1998).

[8] Sadilov P. V. et Baskakov A. P. ; Temperature fluctuations at the surface of a fluidized bed with gas combustion occuring therein ; Int. J. of Chem. Eng., **13** (3), p 449 (1973).

[9] Van Der Vaart D. R. ; The combustion of gas in a fluidized bed ; PhD Thesis, University of Cambridge (1985).

[10] Van Der Vaart D. R. ; Mathematical modelling of methane combustion in a fluidized bed; Ind. Eng. Chem. Res., **31**, pp 999-1007 (1992).

[11] Fournol A. B., Bergougnou M. A. et Baker C. G. J. ; Solids entrainment in a large gas fluidized bed ; Can. J. of Chem. Eng., **51**, 401-404 (1973).

[12] George S. E. et Grace J. R. ; Entrainment of particles from aggregative fluidized beds ; AIChE Symp. Series, **176**, 67-73 (1978).

[13] Kunii D. et Levenspiel O. ; Entrainment of solids from fluidized beds: I. Hold-up of solids in the freeboard ; Powder Technology, **61**, 193-206 (1990).

[14] Wen C.Y. et Chen L.H. ; Fluidized bed freeboard phenomena : entrainment and elutriation; AIChE J., **28** (1), 117-128 (1982).

[15] Zenz F. A. et Weil N. A. ; A theoretical-empirical approach to the mechanism of particle entrainment from fluidized beds ; AIChE J. **4** (4), 472-479 (1958).

[16] Chen G. T., Shang J. Y. et Wen C. Y. ; Freeboard model for fluidized bed combustors ; In Fluid. Sci. and Tech., M. Kwauk and D. Kunii edns., Science press, Beijing (1982).

[17] Yates J. G. et Rowe P. N. ; A model for chemical reaction in the freeboard region above a fluidized bed ; Trans. Instn. Chem. Engrs., **55**, 137 (1977).

[18] Miyauchi T. ; Concept for successive contact mechanism for catalytic reaction in fluid beds ; J. of Chem. Eng. of Japan, $\underline{7}$ (3), 201-207 (1974).