

CARACTÉRISATION EXPERIMENTALE DE L'ÉMISSION D'OXYDES D'AZOTE DANS L'INCINÉRATION DES DÉCHETS MÉNAGERS EN FOUR À GRILLES

Thomas Rogaume*, Florent Jabouille*, Moussa Sougoti**, Pétronille Kafando**, Jean Kouliadiati**, Marc Auzanneau*, Jean-Claude Goudeau*

* Laboratoire de combustion et de détonique UPR 9028 CNRS, ENSMA - ** Laboratoire de physique et chimie de l'environnement, Université de Ouagadougou

Face à un gisement de déchets en constante évolution, l'incinération est devenue une alternative très intéressante au sein des filières de gestion des déchets. Néanmoins la combustion est génératrice de polluants, notamment gazeux parmi lesquels les oxydes d'azote. L'étude des mécanismes de formation de ces espèces montre une très forte dépendance de leur rendement de formation vis à vis de la richesse locale en oxygène. Ainsi, notre étude a été menée afin d'étudier l'influence des débits d'air comburant sur la formation des NOx lors de l'incinération des déchets ménagers en four à grille. Cette étude permet de noter l'importance de la répartition des airs entre les injections primaires et secondaires.

In front of a deposit of waste in constant evolution, the incineration became a very interesting alternative within the fields of management of waste. Nevertheless the combustion is generative of polluting, notably gas among whom nitrogen oxides. The study of the mechanisms of formation of these species shows a very strong dependence of their yield face to face of the local level in oxygen. So, our study was led to determine the influence of the excess air on the formation of NOx during the incineration of municipal solid wastes. This study allows to note the importance of the distribution of the airs between the primary and secondary injections.

INTRODUCTION

Parmi les procédés de traitement et d'élimination mis en œuvre, les procédés thermiques constituent des moyens fiables de réduction de la taille et du volume des déchets. Parmi ces techniques, l'incinération peut, en outre, permettre une récupération d'énergie. Néanmoins, elle est génératrice de pollution, notamment gazeuse avec émissions d'oxydes de carbone, de soufre, d'azote, de produits chlorés (dioxines et furanes), de composés organiques volatils, d'hydrocarbures polycycliques aromatiques, de poussières...

Parmi les espèces gazeuses émises, les oxydes d'azote posent un certain nombre de problèmes : ils sont en partie responsables de la destruction de la couche d'ozone, de la formation de brouillards oxydants et de pluies acides. Lors de l'incinération des déchets ménagers en four à grilles, la majorité des oxydes d'azote formés (95 %) se trouve sous forme de monoxyde d'azote (NO), Abbas & al. (1997). Trois mécanismes ont à ce jour été mis en évidence : le NO thermique, le NO précoce et le NO du combustible. Il est communément admis que pour la plupart des systèmes de combustion ayant une température inférieure à 1250°C (tels que l'incinérateur de déchets ménagers) les oxydes d'azote ont pour principale source l'azote constitutif du combustible. Sorum & al. (2001) lors de leurs travaux sur la combustion des déchets ménagers concluent que le NO est formé à 95 % par le mécanisme du NO du combustible, lorsque la teneur en oxygène est de 12 %.

L'étude de leurs mécanismes de formation et de destruction lors de l'incinération des déchets fait l'objet de travaux depuis un certain nombre d'années au sein du Laboratoire de combustion et de détonique. En effet, Zhou (1994) et Jabouille & al. (1996) ont permis le développement et la validation d'un pilote simulant la combustion d'une tranche verticale de déchets en combustion dans un four à grilles industriel. Le détail des mécanismes de formation des oxydes d'azote a été préalablement réalisé, Rogaume (1999).

La description des différentes techniques primaires de réduction des oxydes d'azote montre l'importance des conditions de richesse dans la chambre de combustion. En effet, De Soete (1989) et Miller & Bowman (1989) ont noté, au cours de leurs travaux sur la combustion du charbon, l'importance de la concentration en dioxygène et de la température sur la conversion de l'azote constitutif du combustible en NO. La présente étude est consacrée à la détermination de l'influence des excès d'air et de leur répartition (air primaire, air secondaire) sur les mécanismes de combustion et sur la formation des oxydes d'azote et du monoxyde de carbone. Elle fait suite aux travaux de Zhou (1994) et de Jabouille (1996), à partir d'un déchet modèle composé de bois, de carton et de plastiques.

DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

Le réacteur à lit fixe à contre courant permet l'étude de la combustion d'une tranche verticale de déchets lors de son déplacement le long des grilles au cours du temps. Ce dispositif mis au point par Zhou (1994) a permis d'obtenir des résultats industriellement Jabouille & al. (1996). Suite à ces différents travaux, un nouveau dispositif de même principe mais de taille plus importante a été développé afin de se rapprocher des conditions industrielles, notamment concernant les ratios de débits de comburant. Le principe reste le même : l'allumage se fait par le haut et le front d'inflammation se propage au sein du lit solide dans le sens descendant. Inversement, l'air primaire est injecté à la base du combustible et se propage dans le sens ascendant. Ce dispositif permet l'étude de la vitesse de propagation du front d'inflammation, du transfert de chaleur et de la formation des espèces gazeuses.

La figure 1 illustre la corrélation entre un four industriel à grilles et le réacteur à lit fixe à contre courant.

Les températures dans le solide et dans la chambre de combustion en phase gazeuse, la pression partielle des principaux effluents gazeux dans les fumées, les températures et débits de comburant sont mesurés en continu. Le dispositif expérimental comporte 7 éléments principaux :

- le réacteur à lit fixe proprement dit ;
- le dispositif d'alimentation, de mesure et de préchauffage du comburant ;
- le conduit d'évacuation des fumées ;
- l'analyseur de gaz à cellules électrochimiques ;
- le système de piégeage des cendres volantes et d'extraction des fumées ;
- la boucle de recirculation des fumées ;
- le système d'acquisition et de traitement des résultats.

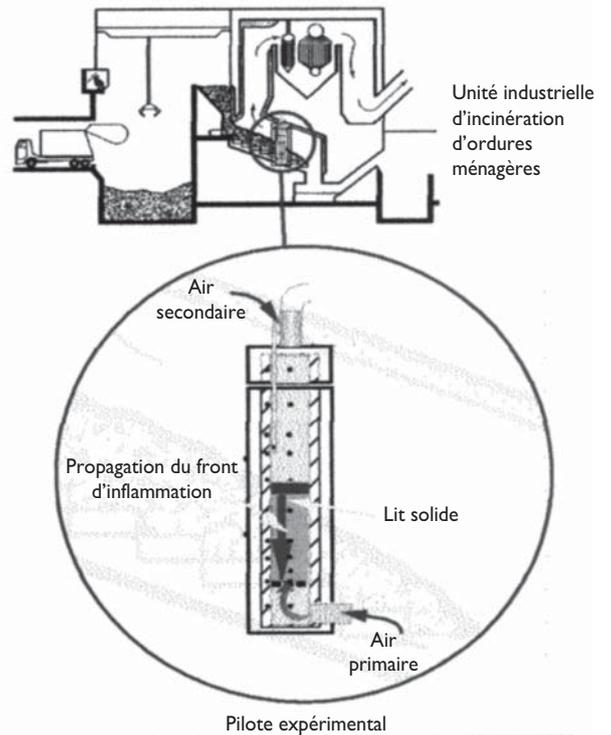


Figure 1 : Du four à grille au réacteur à lit fixe à contre courant.

Une illustration du dispositif est présentée figure 2. Le réacteur dont une coupe schématique est présentée sur la figure 3 est un cylindre de 2 mètres de haut dont le diamètre intérieur est de 0,2 m. Il est constitué d'éléments en inox isolés thermiquement et dont la paroi interne est en ciment réfractaire, ce qui permet de reproduire fidèlement les parois d'un four d'incinération industrielle.

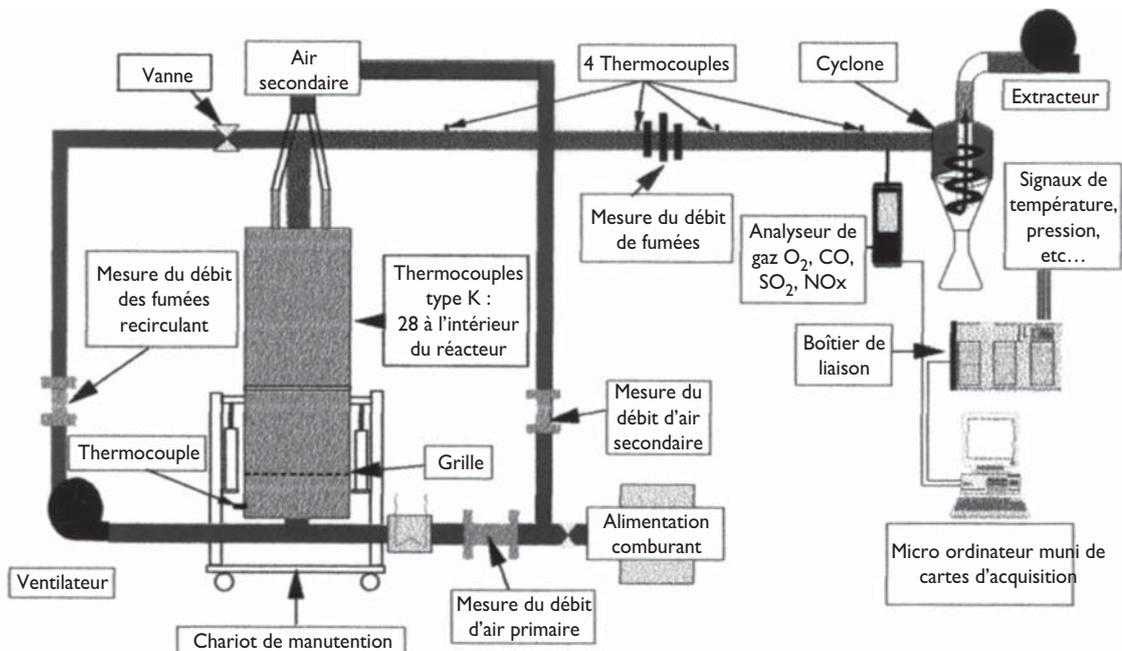


Figure 2 : Vue d'ensemble du réacteur à lit fixe à contre courant

La partie recevant le combustible solide est haute de 0,8 m. La zone de combustion en phase gazeuse a une hauteur de 1,2 m. Le réacteur est équipé de 28 thermocouples de type K (chromel-alumel) disposés le long de l'axe du réacteur. Ils sont distants de 50 mm dans la partie « solide » et de 100 mm au sein de la zone de combustion en phase homogène (exceptés les trois premiers (n° 15, 16 et 17) distants de 50 mm).

Le réacteur dispose à sa base d'un compartiment d'injection d'air primaire.

Au sommet du réacteur, un couvercle équipé de deux passages permet l'injection de l'air secondaire et assure la liaison avec le conduit d'évacuation des fumées. L'injection est effectuée au moyen de deux canes identiques à trois orifices d'injection chacune.

Les débits d'injection que ce soit en air primaire ou en air secondaire sont réglés par deux débitmètres massiques. L'analyse des gaz de combustion est effectuée en continu à l'aide d'un analyseur Testo 350 fonctionnant avec des cellules électrochimiques. Il mesure les quantités de CO, NO, NO₂, SO₂ et O₂ et calcule les taux de CO₂ en fonction de l'oxygène et du type de combustible.

A l'extrémité du conduit de fumées, un extracteur de forte puissance permet de maintenir une très légère dépression dans tout le dispositif expérimental. Ainsi, la combustion au sein du réacteur n'est jamais perturbée par une surpression. Cet extracteur est couplé au cyclone qui permet de récupérer les cendres volantes et les poussières entraînées par les fumées.

L'ensemble des signaux provenant des multiples capteurs (température, débits, analyse des gaz) converge vers un micro ordinateur pour le stockage des données.

Une acquisition est réalisée toutes les cinq secondes durant tout le cycle de combustion.

DESCRIPTION DU COMBUSTIBLE

Le "déchet modèle" utilisé lors de nos expériences a la composition suivante :

- 41 % de bois ;
- 37 % de carton ;
- 19 % de polyéthylène téréphtalate ;
- 3 % de polyamide.

Les pourcentages de répartition entre les constituants ont été déterminés à partir de la composition des déchets ménagers. Outre l'utilisation des combustibles sous leurs formes standards (bois, cartons, plastiques), les hypothèses suivantes ont été faites, afin de prendre en compte l'ensemble de la fraction combustible des ordures ménagères : les complexes et textiles ont une nature qui se rapproche de celle du plastique ; les combustibles non classés ont une structure relativement proche de celle du bois. Dans le cadre de notre étude, l'influence de l'humidité et des inertes sur le processus de combustion n'a pas été abordée. En effet, des travaux précédents ont montré que ces facteurs n'avaient pas d'influence notable sur les mécanismes de formation des oxydes d'azote, Jabouille (1996) et Massiot (1997).

Une analyse élémentaire de chaque composant du mélange combustible a été effectuée afin de caractériser avec précision notre combustible et de pouvoir déterminer les bilans matières. Pour cela des échantillons de chaque composant ont été analysés pour le dosage des éléments C, H, O, N, S. Le tableau 1 fait le bilan des compositions massiques (en pourcentage) de chaque composant.

A partir de ces valeurs et en fonction de la proportion de

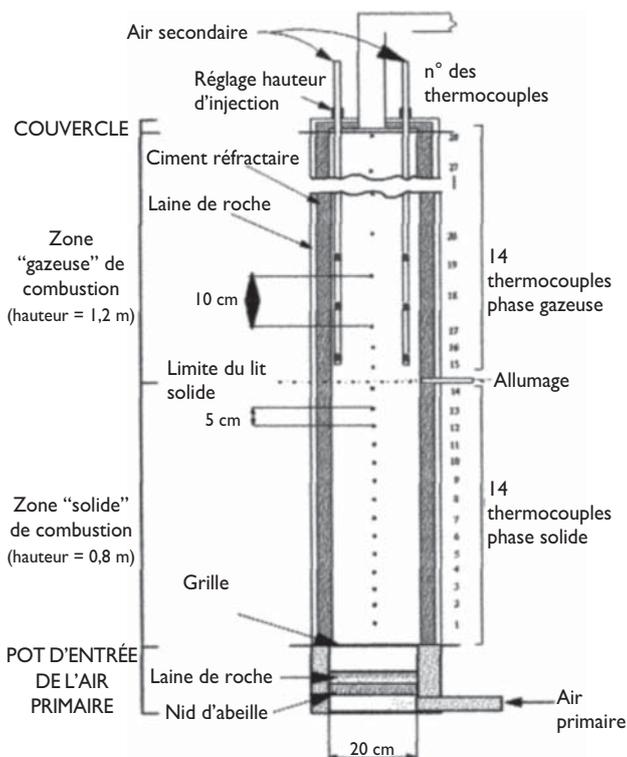


Figure 3 : Présentation du réacteur à lit fixe à contre courant

Tableau 1 : Composition élémentaire des composés du mélange expérimental

Eléments	Bois	Carton	PET	Polyamide
C	47,6 %	39,5 %	62 %	62,4 %
H	6,4 %	5,8 %	4,2 %	9,8 %
O	45,3 %	44,3 %	33,2 %	15,7 %
N	0,2 %	0,2 %	0,1 %	12,0 %
S	0,2 %	0,3 %	0,3 %	0,1 %

Tableau 2 : Compositions élémentaires du mélange expérimental et des déchets ménagers

Eléments	Déchet modèle	O. M.
Carbone (C)	47,8 %	52 %
Hydrogène (H)	5,6 %	8 %
Oxygène (O)	41,7 %	38 %
Azote (N)	0,53 %	0,5 %
Soufre (S)	0,25 %	0,3 %

chaque constituant, la composition massique du mélange combustible a été calculée et comparée à celle des déchets ménagers (tableau 2).

On remarque que la composition chimique du déchet modèle utilisé lors de notre étude est tout à fait comparable à celle des ordures ménagères.

CONDITIONS OPÉRATOIRES

Connaissant la vitesse de perte de masse du combustible et les débits comburants pour chaque expérience, il est possible de déduire les conditions de richesse de la combustion : ratio entre le besoin en oxygène pour une combustion dite complète (donc dépendant de la vitesse de perte de masse) et l'oxygène fournie à la combustion (par l'intermédiaire de chaque débit comburant). Or, lors de l'incinération des déchets ménagers, la combustion se fait dans des conditions semi-oxydantes, donc en excès d'air. Ainsi, nous exprimerons les résultats en fonction de l'excès d'air de combustion dans chaque zone réactionnelle. Celui-ci est défini par le rapport (comburant/combustible) et est exprimé par rapport à la stœchiométrie : un excès d'air de 1 correspond à la stœchiométrie. La détermination des excès d'air est alors réalisée pour chaque condition expérimentale car il dépend de la valeur des débits comburants et de la vitesse de perte de masse mesurée.

Le tableau 3 présente l'excès d'air correspondant à chaque condition expérimentale testée.

Les différents débits sont présentés en $Nm^3.h^{-1}$.

Q_1 est le débit d'air primaire et est associé à l'excès d'air primaire e_1 .

Q_2 est le débit secondaire et permet le calcul de l'excès d'air secondaire e_2 .

Q_t qui est le débit total, définit l'excès d'air total e_t .

Les conditions expérimentales testées correspondent à un excès d'air total compris entre 1,2 et 3,7. L'excès d'air primaire a varié dans une gamme allant de 0,6 à 2,5 et l'excès d'air secondaire entre 0,5 et 1,2.

Tableau 3 : Définition des conditions expérimentales

Q_1	35	35	40	40	40	45	45	45	50
Q_2	35	45	35	40	45	35	40	45	35
Q_t	70	80	75	80	85	80	85	90	85
e_1	0,6	0,6	0,75	0,75	0,75	0,8	0,8	0,8	1
e_2	0,6	0,8	0,65	0,75	0,85	0,6	0,7	0,8	0,7
e_t	1,2	1,4	1,4	1,5	1,6	1,4	1,5	1,6	1,7
Q_1	50	50	55	55	55	55	60	60	60
Q_2	40	45	25	35	40	45	35	40	45
Q_t	90	95	80	90	95	100	95	100	105
e_1	1	1	1,1	1,1	1,1	1,1	1,3	1,3	1,3
e_2	0,8	0,9	0,5	0,7	0,8	0,9	0,8	0,9	1
e_t	1,8	1,9	1,6	1,8	1,9	2	2,1	2,2	2,3
Q_1	65	65	65	75	75	85	85	95	95
Q_2	35	40	45	35	45	35	45	35	45
Q_t	100	105	110	110	120	120	130	130	140
e_1	1,4	1,4	1,4	1,8	1,8	2,1	2,1	2,5	2,5
e_2	0,8	0,9	1	0,8	1	0,9	1	0,9	1,2
e_t	2,2	2,3	2,4	2,6	2,8	3	3,1	3,4	3,7

Afin d'en faciliter l'exploitation et l'extrapolation sur d'autres unités expérimentales, les résultats sont présentés dans les paragraphes suivants en fonction de l'excès d'air ainsi défini.

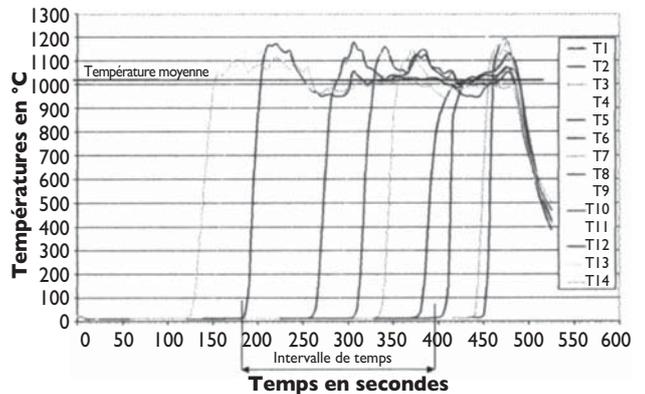
CARACTÉRISTIQUES DE LA COMBUSTION

Répartition des températures de combustion

La figure 4 ci dessous présente l'évolution de la température au sein de la zone primaire de combustion : celle-ci est caractérisée par la combustion qui prend place entre la grille et le sommet du lit solide à $t=0$. La zone primaire correspond alors à la zone de décomposition et d'oxydation du combustible. Y prend place aussi la combustion des produits volatils en mélange avec l'air primaire.

La figure 5 présente l'évolution des températures en zone

Figure 4 : Évolution de la température en zone primaire de combustion



gazeuse de combustion : cette zone est caractérisée par la combustion des produits issus de la première zone en mélange avec l'air secondaire. Elle s'étend du sommet du lit solide à $t=0$ jusqu'au sommet du réacteur.

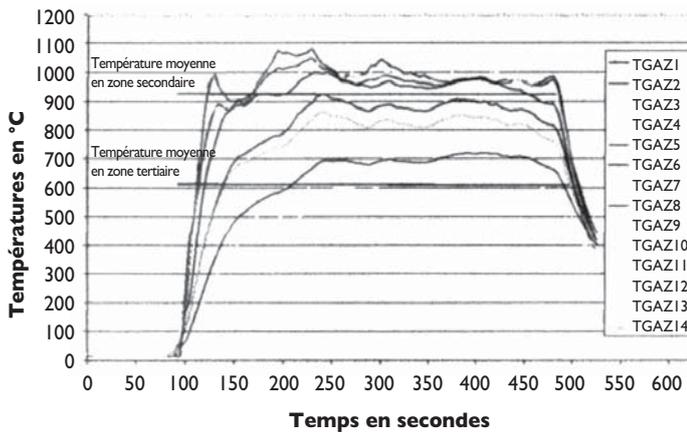
- On distingue clairement 2 zones de combustion :
- la zone secondaire qui est caractérisée par la combustion des produits issus de la première zone en mélange avec l'air secondaire ;
 - la troisième zone nommée tertiaire où la température est plus faible et où prend fin la combustion.

Évolution de la vitesse de perte de masse

La figure 6 présente l'évolution de la vitesse de perte de masse en gramme par seconde en fonction du débit primaire (Q_1) exprimé également en gramme par seconde, pour deux débits secondaires ($Q_2=35$ et $45 Nm^3.h^{-1}$).

La figure 6 montre que la vitesse de perte de

Figure 5 : Évolution de la température en zone gazeuse de combustion.

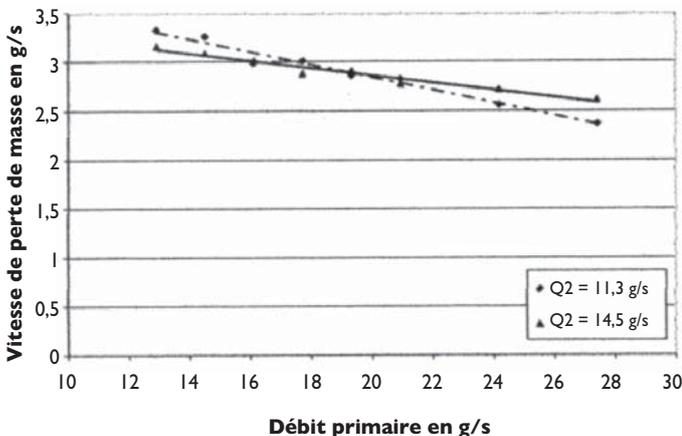


masse est fortement dépendante du débit primaire, quel que soit le débit d'air secondaire : elle décroît de façon linéaire en fonction de l'élévation de ce paramètre. Les échanges thermiques de la zone gazeuse de combustion vers le solide sont compensés par la convection forcée engendrée par l'injection d'air primaire : le caractère exothermique d'une combustion plus intense liée à une hausse de la concentration en oxygène (donc des débits comburants) est compensé par le refroidissement créé par l'élévation de la vitesse de passage du comburant au sein du lit combustible. Il y a alors réduction de la vitesse de perte de masse.

Inversement, pour les conditions expérimentales testées, la vitesse de perte de masse est peu influencée par la variation du débit secondaire. La stabilité des températures en zone secondaire de combustion en fonction de la variation du débit d'air secondaire induit un rayonnement constant de cette zone vers la surface du solide. L'influence de ce paramètre est ainsi négligeable.

Évolution des températures

Figure 6 : Évolution de la vitesse de perte de masse en fonction du débit primaire



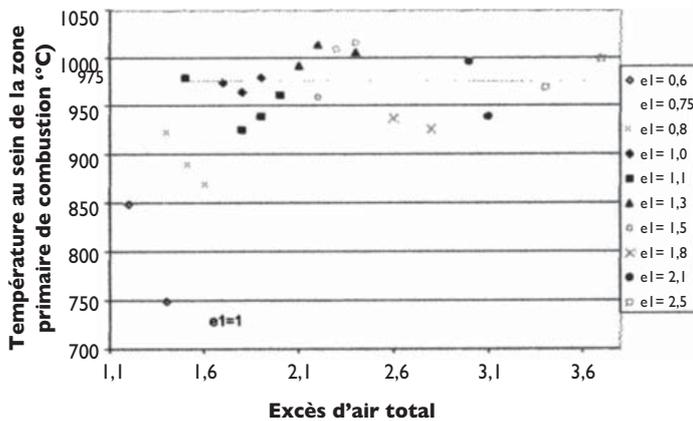
de combustion

Température primaire de combustion

La zone primaire de combustion correspond à la zone où prennent place la dégradation du combustible et la combustion des produits de dégradation issus de cette pyrolyse en mélange avec l'air primaire. La détermination de la température primaire moyenne de combustion est réalisée à partir de la valeur moyenne de la température enregistrée par chaque thermocouple en zone établie de combustion. Un exemple est donnée figure 4. La figure 7 présente alors l'évolution de la température primaire de combustion en fonction de l'excès d'air total. Les résultats sont présentés pour différents excès d'air primaire (e_1).

Deux cas apparaissent selon que l'excès d'air primaire est inférieur ou supérieur à 1, ce qui se traduit par un excès d'air total de 1,6 pour nos conditions expé-

Figure 7 : Évolution de la température en zone primaire de combustion en fonction de l'excès d'air total



rimentales :

– Excès d'air primaire inférieur à 1 :

La température au sein de la zone primaire de combustion est relativement faible. Elle est alors fortement dépendante de l'excès d'air total. En particulier, elle croît nettement avec l'excès d'air primaire. La combustion est alors contrôlée par la vitesse de transport de l'oxygène au sein de la zone réactive. Pour un débit primaire constant, une hausse du débit secondaire, donc de l'excès d'air secondaire, provoque une faible baisse de la température de combustion en zone primaire. L'air secondaire permet un apport en oxygène en zone secondaire de combustion. Il y a alors déplacement de la combustion par convection des produits de dégradation du solide vers la zone secondaire où les températures plus élevées sont dues aux réactions d'oxydation.

–Excès d'air primaire supérieur à 1 :

La température de combustion au sein de la zone primaire est relativement stable et comprise entre 950 et

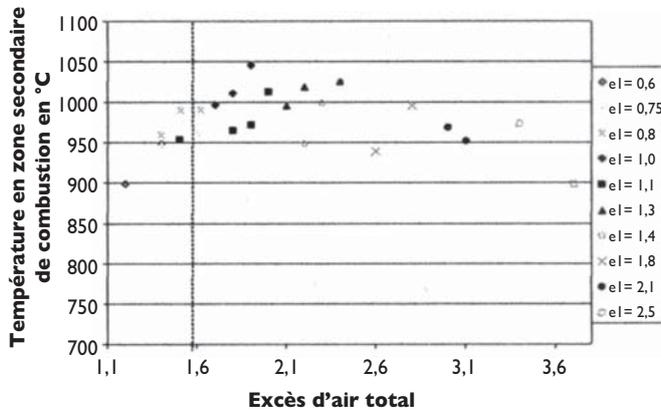
1050°C. Les excès d'air primaire et secondaire n'ont que peu d'influence sur la température, ce qui montre que la vitesse de transport de l'oxygène vers les espèces réactives est très importante devant les vitesses des réactions chimiques qui sont alors le paramètre limitant.

Température secondaire de combustion :

La figure 8 présente l'évolution de la température au sein de la zone secondaire de combustion en fonction de l'excès d'air total, pour différents excès d'air primaire. Cette température est caractéristique de la combustion des produits issus de la première zone en mélange avec l'air secondaire.

L'évolution de la température au sein de la zone secondaire de combustion laisse également apparaître deux régimes distincts selon que l'excès d'air total est inférieur ou supérieur à 1,6, soit l'excès d'air primaire inférieur ou supérieur à 1 :

Figure 8 : Évolution de la température en zone secondaire de combustion en fonction de l'excès d'air total



– Excès d'air total inférieur à 1,6

La température est relativement faible et est très dépendante des débits comburants qu'ils soient primaires ou secondaires. Une hausse de débit augmente l'apport en oxygène qui est en faible concentration. L'oxydation des produits de combustion est alors meilleure et la combustion (plus exothermique) engendre une température plus élevée.

– Excès d'air total supérieur ou égal à 1,6 :

Les températures de combustion sont comprises entre 950 et 1050°C. L'influence de l'excès d'air primaire sur la température secondaire est négligeable. La température en zone secondaire de combustion ne dépend alors principalement que de l'excès d'air secondaire.

EMISSIONS GAZEUSES

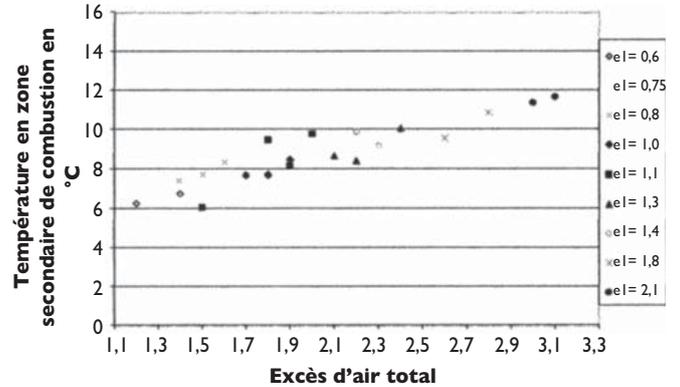
Afin d'évaluer l'influence de chaque paramètre expérimental et plus particulièrement celle des débits d'air primaire et secondaire, les valeurs des émissions de CO et de NO sont exprimées en milligramme de polluant émis par gramme de combustible brûlé. Ce calcul est effectué en zone établie de combustion, à partir de la mesure de la vitesse de perte

de masse du combustible. Les résultats présentés (chaque point) sont la valeur moyenne d'un minimum de trois expériences.

Évolution des teneurs en dioxygène

Les études menées par le passé ont montré que les émissions de NO sont fortement dépendantes de la concentration en dioxygène du milieu réactif, De Soete (1989). De même, les différents travaux de Yetter & al. (1991a et b) montrent que la vitesse d'oxydation du CO est influencée par la teneur en dioxygène.

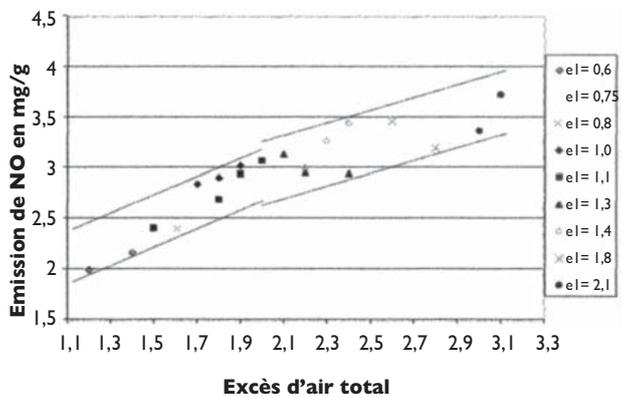
Figure 9 : Évolution de la teneur en dioxygène en fonction de l'excès d'air total



ainsi, il est nécessaire de vérifier l'évolution de la teneur en dioxygène résiduel dans les fumées en fonction de l'excès d'air total, figure 9. Les résultats sont exprimés pour différents excès d'air primaire (el) : De manière générale, une élévation de l'excès d'air total entraîne une hausse de la concentration en dioxygène. De plus, à excès d'air total constant, on constate qu'une hausse du débit d'air primaire s'accompagne d'une hausse du taux de dioxygène. De même, pour un excès d'air primaire constant, la teneur en oxygène croît avec le débit secondaire. Ce résultat est logique puisqu'une hausse des débits comburants implique une élévation de l'oxygène apportée et réduit la vitesse de perte de masse du combustible.

Évolution des émissions de monoxyde d'azote

Figure 10 : influence de l'excès d'air total sur les émissions de NO



La figure 10 présente l'évolution des émissions de NO (le seul oxyde d'azote émis dans nos conditions) en fonction de l'excès d'air total. Les résultats sont exprimés pour différents excès d'air primaire (e_1) :

D'une manière générale, on constate que les émissions de NO varient entre 2 et 3,5 mg.g⁻¹. Les émissions de NO sont une fonction croissante de l'excès d'air total. Néanmoins l'évolution des teneurs en NO peut être divisée en deux zones distinctes selon l'excès d'air total.

Excès d'air total inférieur à 2

Lorsque l'excès d'air total est inférieur à 2, la teneur en dioxygène résiduel est inférieure à 8 %. La croissance des émissions de NO avec l'excès d'air total est forte. Toutefois, pour un excès d'air total constant, les émissions de NO sont très proches les unes des autres et ce, quelle que soit la répartition (excès d'air primaire / excès d'air secondaire). Pour ces conditions, l'excès d'air primaire est inférieur ou égal à 1,1. A excès d'air total constant, les émissions de NO diminuent lorsque l'excès d'air primaire augmente. Une hausse du débit primaire engendre un apport d'oxygène au sein de la zone primaire de combustion. L'oxydation des intermédiaires azotés va alors être plus importante. Le NO va être formé très rapidement et sera réduit par réaction avec les produits de réactions incomplètes (hydrocarbures et surtout espèces azotées de type NHx).

On constate, pour chaque excès d'air primaire, qu'une augmentation du débit secondaire entraîne une augmentation des émissions de NO. En effet, l'excès d'air primaire est faible et la concentration en dioxygène au sein de la zone primaire de combustion est proche de zéro. L'oxydation en zone primaire des intermédiaires azotés tels que le HCN, le NH₃ et le HNCO n'est pas complète et va prendre place au sein de la zone secondaire de combustion (où l'air secondaire est injecté) pour former du NO. L'apport d'air secondaire va alors permettre de compléter la combustion. Le paramètre limitant de la formation du monoxyde d'azote est ainsi la diffusion de l'oxygène : plus le débit d'air secondaire est important et plus l'apport en dioxygène sera grand et plus la turbulence au sein du four sera importante, ce qui favorise l'oxydation des composés azotés pour former du NO.

Excès d'air total supérieur à 2

Lorsque l'excès d'air total est supérieur à 2, la croissance des émissions de NO devient plus faible. Pour ces débits comburants, la teneur en dioxygène résiduel est comprise entre 8 et 12 %. L'excès d'air primaire a une grande influence sur les émissions de NO qui augmentent avec ce paramètre. Dans ces conditions, l'excès d'air primaire est supérieur ou égal à 1,3 et la combustion prend place en excès d'oxygène quelles que soient les zones de combustion au sein du réacteur à lit fixe. Pour des conditions de combustion similaires, De Soete (1989) montre que les émissions de NO sont fortement dépendantes de la richesse locale en dioxygène. Ainsi une hausse du débit primaire permet un apport en dioxygène qui favorise la formation de NO. L'influence de l'air secondaire sur les teneurs en monoxyde d'azote

est plus complexe à interpréter. En effet pour un excès d'air primaire de 1,4 et de 2,1 l'augmentation du débit secondaire génère une hausse des émissions de NO. Inversement pour des excès d'air primaire de 1,3 et de 1,8 les émissions de NO vont décroître avec l'air secondaire. Cette évolution est liée au rendement du mécanisme du NO du combustible qui montre que la formation de cette espèce croît avec la température, De Soete (1989). Pour ces conditions, les débits comburants sont tels que la concentration en oxygène est suffisante dans toutes les parties du four pour garantir une combustion complète. Ces débits favorisent alors une forte turbulence au sein du four et le temps de transport des espèces chimiques et de l'oxygène va être négligeable devant le temps des réactions chimiques. Ainsi la formation et la réduction du NO va dépendre de la cinétique chimique, qui est influencée par les températures et les temps de séjour.

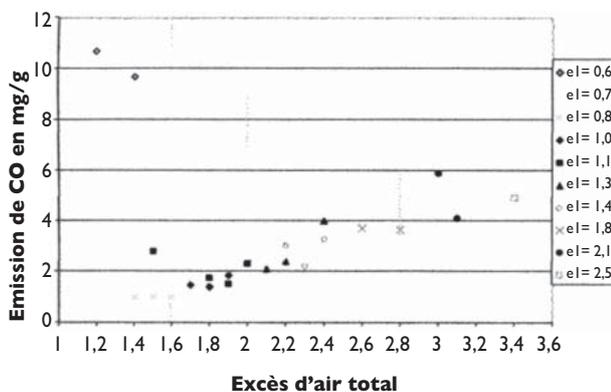
Bilan :

Le bilan du comportement du NO en fonction des excès d'air montre que plus les excès d'air primaire et secondaire vont être faibles et plus les teneurs en NO vont être faibles. Ainsi il est possible de déterminer les conditions expérimentales permettant de limiter les émissions d'oxyde d'azote : un excès d'air primaire compris entre 0,6 et 1,1 correspondant à un débit primaire entre 35 et 55 Nm³.h⁻¹ et un excès d'air secondaire compris entre 0,6 et 0,8 à un débit secondaire compris entre 35 et 40 Nm³.h⁻¹.

Emissions de monoxyde de carbone

L'étude de l'influence des débits d'air sur les émissions de NO a permis la détermination des conditions garantissant un minimum d'émissions. Néanmoins la réduction des émissions de NO ne doit pas favoriser la formation d'autres composés polluants. En effet l'évolution des émissions de CO et de NO ont des tendances inverses en fonction des débits comburants. Ceci a été vérifié par Rogaume Y. (1999) lors de l'incinération de certains déchets industriels. Ainsi nous avons étudié l'influence des débits d'air sur la formation du CO. L'évolution des teneurs en CO en fonction de l'excès d'air total est présentée figure 11. Les évolutions sont présentées pour différents excès d'air primaire (e_1) :

Figure 11 : Évolution des émissions de CO en fonction de l'excès d'air total



L'étude du comportement des émissions de CO permet d'identifier quatre zones distinctes en fonction de l'excès d'air total.

Un excès d'air total supérieur à 1,6 est nécessaire à l'obtention d'une évolution relativement stable des émissions de CO. En dessous de cette valeur, la combustion entraîne de fortes variations des émissions de CO en fonction des excès d'air. Les émissions de CO sont alors conséquentes. Néanmoins, il est important de remarquer que les émissions les plus faibles sont obtenues pour un excès d'air total compris entre 1,5 et 1,6 avec un excès d'air primaire de 0,75 et 0,8.

Excès d'air total inférieur à 1,6

Un excès d'air total supérieur à 1,6 est nécessaire à l'obtention d'émissions relativement stables de CO. En dessous de cette valeur, la combustion entraîne de fortes variations des émissions de CO en fonction des excès d'air. Les émissions de CO sont alors conséquentes. Néanmoins, il est important de remarquer que les émissions les plus faibles sont obtenues pour un excès d'air total compris entre 1,5 et 1,6 avec un excès d'air primaire de 0,75 et 0,8.

Dans le cas de faibles excès d'air, la teneur en oxygène résiduel est inférieure à 8 % et est insuffisante pour que l'oxydation du CO en CO₂ soit complète, ce qui est en accord avec la littérature. En effet, cette oxydation est réalisée par réaction avec le radical O° et principalement avec le radical OH° ($\text{CO} + \text{OH}^\circ \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}^\circ$) qui proviennent des réactions de dissociation de l'eau ($\text{O}^\circ + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{OH}^\circ + \text{OH}^\circ$) et de l'oxygène ($\text{H}^\circ + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}^\circ + \text{OH}^\circ$).

Dans ces conditions expérimentales, l'excès d'air est inférieur à 1. Dans ce cas, la concentration en radical hydroxy est un paramètre prédominant de la vitesse d'oxydation du CO, Yetter & al. (1991 a et b). Or la vitesse de la réaction d'oxydation du CO par le radical hydroxy est plus faible que les vitesses d'oxydation des hydrocarbures. On peut alors conclure que la présence d'hydrocarbures va inhiber l'oxydation du CO, puisque ceux-ci vont être prioritairement oxydés au détriment du CO, Glassman (1996). La conversion du CO en CO₂ est ainsi retardée jusqu'à ce que les produits de combustion et principalement les hydrocarbures soient consommés, Westbrook & Dryer (1984). Ce constat vient renforcer le fait que pour un excès d'air primaire inférieur à 1 (ce qui se traduit ici par un excès d'air total inférieur à 1,6) la combustion est déplacée par convection de la zone primaire vers la zone secondaire de combustion. L'injection d'air secondaire permet de compléter l'oxydation des hydrocarbures pour former du CO qui n'a pas le temps d'être oxydé en CO₂.

Une augmentation des débits comburants permet un apport en oxygène favorisant la formation de radicaux propices à l'oxydation du CO. De plus, la vitesse de la réaction $\text{CO} + \text{OH}^\circ \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}^\circ$ devient une fonction croissante de façon exponentielle de la température à partir de 850°C, Glassman (1996). L'évolution des températures de combustion montre que, pour un excès d'air total inférieur à 1,6, les tempé-

tures sont relativement faibles que ce soit dans la zone primaire ou secondaire de combustion. Une hausse de l'excès d'air primaire ou de l'excès d'air secondaire entraîne une augmentation de la concentration en oxygène ainsi qu'une élévation de la température et favorise ainsi l'oxydation du CO dont les teneurs diminuent.

La formation du CO va donc être limitée par les phénomènes de transport.

Excès d'air total supérieur à 2

Les émissions de CO deviennent alors une fonction croissante de l'excès d'air total. Néanmoins, pour un excès d'air total compris entre 1,6 et 2, les émissions sont relativement stables et inférieures à 2 mg.g⁻¹. Dans ce cas, on constate qu'une variation de l'excès d'air secondaire et de l'excès d'air primaire n'a que peu d'influence sur les émissions de CO.

L'excès d'air primaire est alors compris entre 1 et 1,1 et permet de garantir une combustion en zone primaire avec suffisamment d'oxygène pour que l'oxydation des hydrocarbures soit complète. Le CO ainsi formé va alors être oxydé en CO₂ grâce à l'injection d'air secondaire.

Une élévation de l'excès d'air primaire au delà de 2 entraîne alors une augmentation des émissions de CO. Cette évolution est dans un premier temps contraire à nos attentes compte tenu de certains résultats rencontrés dans la littérature. En effet, un accroissement de l'excès d'air induit une hausse de la concentration en dioxygène et en radicaux O° et OH°, permettant l'oxydation du CO en CO₂. Le comportement des émissions de CO s'explique alors pour diverses raisons :

- Dans ces conditions expérimentales, la combustion au sein du réacteur à lit fixe à contre courant se fait en conditions semi-oxydantes, quelles que soient les zones, puisque les teneurs en dioxygène résiduel dans les fumées sont comprises entre 8 et 10,5 % et que l'excès d'air primaire est supérieur à 1. Yetter & al. (1991a) montrent que dans ces conditions la vitesse d'oxydation du CO est constante quelle que soit la concentration en dioxygène et en radicaux hydroxydes dont les concentrations sont suffisantes pour que l'oxydation des hydrocarbures et du CO ait lieu.
- L'étude préalable de l'influence des excès d'air montre que les températures de combustion sont relativement stables pour un excès d'air total compris entre 1,6 et 2,8. La vitesse d'oxydation du CO est donc relativement constante en fonction de la température. Dryer & Glassman (1973) démontrent même que sous certaines conditions, la vitesse de la réaction $\text{CO} + \text{OH}^\circ \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}^\circ$ peut être diminuée pour une température supérieure à 1000°C.
- L'augmentation des débits comburants engendre une diminution du temps de séjour des gaz de combustion (les températures de combustion étant elles stables) et donc du CO dans les zones de haute température où prennent place les réactions d'oxydation. En effet, une augmentation de l'excès d'air (provenant d'une augmentation des débits comburants) entraîne des vitesses d'écoulement plus impor-

tantes dans le réacteur. Plus l'excès d'air est grand et plus le temps de séjour va être court donc la teneur en CO forte, Yetter & al. (1986).

• Glarborg & al. (1995) et Roesler & al. (1995) montrent que la présence de NO engendre une réduction de la vitesse d'oxydation du CO. Or, les émissions de NO augmentent avec les débits comburants. Une augmentation des excès d'air va ainsi ralentir les vitesses d'oxydation du CO dont les teneurs vont croître.

L'influence de l'air secondaire est difficile à expliciter. En effet, pour des débits secondaires compris entre 35 à 40 Nm³.h⁻¹, l'augmentation du débit d'air entraîne une baisse des émissions de CO alors que pour des débits de 40 à 45 Nm³.h⁻¹, une augmentation de la teneur en CO est observée. Les tendances obtenues sont alors similaires à celles décrites par Krakt & al. (1996) lors de leurs travaux sur l'influence de la turbulence sur l'oxydation du CO humide. En effet, ils montrent que, dans le cas de fortes turbulences, l'oxydation du CO est dans un premier temps favorisée puis dans un second temps inhibée par l'augmentation de la turbulence.

Excès d'air total supérieur à 2,8

Au delà d'un excès d'air total de 2,8, les émissions de CO sont importantes, supérieures à 4 mg.g⁻¹. Ces fortes émissions sont dues à la réduction des températures de combustion et des temps de séjour des gaz au sein des zones propices à la réduction du CO. La vitesse d'oxydation du CO en CO₂ est alors plus faible.

Bilan :

A partir de la description de l'influence des excès d'air sur la formation du CO, il est possible de déterminer les conditions opératoires qui permettent de minimiser les émissions de CO.

Les émissions de CO les plus faibles sont obtenues pour un excès d'air primaire proche de 0,75 à 0,8 et un excès d'air secondaire compris entre 0,75 et 0,85. Toutefois, on note qu'un excès d'air total supérieur à 1,6 est nécessaire à l'obtention d'émissions relativement stables. Ainsi, les conditions permettant de garantir des émissions de CO faibles et stables correspondent à un excès d'air total compris entre 1,7 et 2. Ainsi un excès d'air primaire de 1 et de 1,1 correspondant à un débit primaire compris entre 50 et 55 Nm³.h⁻¹ avec un excès d'air secondaire variant de 0,7 à 0,9 correspondant à un débit secondaire compris entre 35 et 45 Nm³.h⁻¹ apparaissent comme les meilleures conditions expérimentales.

Lorsque l'excès d'air total est supérieur à 2, les phénomènes de transport sont extrêmement rapides et la réduction du CO est dépendante des vitesses des réactions chimiques. Celles-ci sont alors influencées par la concentration en NO et le temps de séjour des gaz dans les zones des températures élevées où prennent place les réactions d'oxydation et de réduction du CO.

CONCLUSION

Deux cas apparaissent selon que l'excès d'air primaire est inférieur ou supérieur à 1, correspondant pour notre étude à un excès d'air total de 1,6. Cette valeur particulière correspond à un changement de régime de combustion.

Dans le cas d'excès d'air primaire inférieurs à 1, les températures de combustion sont plus faibles. La combustion en zone primaire a lieu en défaut d'oxygène. La combustion des produits de pyrolyse se déplace vers la zone secondaire de combustion où l'injection d'air secondaire permet l'oxydation de ces produits. La combustion en zone primaire est alors fortement dépendante de la vitesse de diffusion de l'oxygène, tandis qu'au niveau de la zone secondaire, la combustion est contrôlée par la cinétique chimique. Cette combustion entraîne alors les plus faibles émissions de NO mais engendre de fortes émissions de CO.

Afin d'obtenir une combustion stable avec des températures élevées, il est important d'avoir un excès d'air primaire supérieur à 1. La vitesse de dévolatilisation du combustible est alors rapide. Dans ce cas, les débits permettent de maintenir une combustion en excès d'air dans l'ensemble du four. Pour ces conditions expérimentales, la combustion est dépendante des régimes cinétiques. Les émissions de NO augmentent alors avec les excès d'air, tandis que les émissions de CO passent par un minimum avant de croître elles aussi.

Néanmoins, on note que l'excès d'air total ne doit pas dépasser 2,8 sous peine de réduire la température de combustion par des vitesses d'injection du comburant trop élevées.

A partir de cette étude, on note que l'importance de l'optimisation des conditions d'excès d'air total et plus particulièrement l'importance de la répartition des airs entre air primaire et air secondaire.

Les conditions expérimentales conduisant à la limitation des émissions d'oxydes d'azote et de monoxyde de carbone lors de l'incinération des déchets ménagers sont obtenues pour un excès d'air primaire compris entre 1 et 1,1 correspondant à un débit primaire de 50 à 55 Nm³.h⁻¹ avec un excès d'air secondaire variant de 0,7 à 0,8 ce qui correspond à un débit secondaire compris entre 35 et 40 Nm³.h⁻¹ permettent l'obtention de faibles émissions de CO et de NOx.

*** Thomas Rogeume, Florent Jabouille, Marc Auzanneau et Jean Claude Goudeau**

Laboratoire de combustion et de détonique UPR 9028 CNRS - ENSMA - BP 40109 - 86961 Futuroscope cedex - France.

**** Moussa Sougoti, Pétronille Kafando et Jean Kouliadiati**

Laboratoire de physique et chimie de l'environnement - Université de Ouagadougou - UFR des sciences exactes et appliquées - Département de physique - 03 BP 7021 Ouagadougou 03 - Burkina Faso.

DÉCHETS SCIENCES & TECHNIQUES

REVUE FRANCOPHONE D'ÉCOLOGIE INDUSTRIELLE

NOTE AUX AUTEURS

Déchets, Sciences & Techniques revue francophone d'écologie industrielle publie les résultats de travaux réalisés dans le domaine de l'écologie industrielle, principalement consacrés aux déchets, aux sols pollués et aux impacts environnementaux. Les articles peuvent être proposés par des laboratoires scientifiques ou relater des expériences industrielles. La revue est ainsi le lieu privilégié des échanges entre recherche et expertise.

Les thématiques abordées sont les suivantes :

- 1) Approche bio-physico-chimique du déchet;
- 2) Procédés de traitement des déchets;
- 3) Caractérisation et traitement des sols et sites pollués;
- 4) Évaluation environnementale et management des systèmes et des procédés;
- 5) Ecotoxicologie, toxicologie et santé;
- 6) Économie, droit, sociologie, évaluation des politiques publiques;
- 7) Communication, formation.

CONDITIONS GÉNÉRALES DE PUBLICATION

1 - La langue de rédaction est le français. Les articles doivent être accompagnés d'un résumé en français de 100 mots environ, et d'un résumé en anglais plus conséquent (200 mots environ).

2 - Présentation des articles. L'article type comportera environ 5 pages imprimées incluant textes, figures et références soit l'équivalent de 15 000 signes. Les textes originaux doivent être expédiés sur disquette en mentionnant les logiciels utilisés.

3 - L'auteur doit adresser une version papier en 3 exemplaires pour le comité scientifique, comportant tableaux, figures, ou photographies éventuels. Les fichiers de tableaux ou de figures existants doivent être joints sur la disquette avec originaux papier.

L'article doit impérativement comporter les éléments suivants :

- Titre;
- Nom, qualité et coordonnées de l'auteur ou des auteurs;
- Résumés en français et anglais;
- Mots clés;
- Texte principal;
- Références;
- Nomenclatures (symboles et unités).

4 - L'article doit être accompagné d'une note précisant, la ou les thématique(s) souhaitée(s) par l'auteur, selon la répartition de la revue (de 1 à 7).

5 - Les mises au point et revues bibliographiques sont acceptées dans les mêmes conditions que les articles.

6 - La revue est également ouverte :

- aux résumés de thèse;
- aux résumés de mémoires de DEA et DESS;
- aux rapports de stage de Mastère;
- aux informations sur les colloques et séminaires relatifs aux thématiques de la revue.

ENVOI DES ARTICLES

Coordinatrice et contact : Frédérique Dutel - Insa de Lyon - Domaine scientifique de la Doua - Bâtiment Sadi Carnot - LAEPSI, 9 rue de la Physique - 69621 Villeurbanne cedex - Tél : (33) 4 72 43 82 42 - Fax : (33) 4 72 43 87 17 - Mél : fdutel@insa-lyon.fr

Les articles de la revue sont consultables sur le site pro-environnement.com

Rédacteur en Chef: Pierre Moszkowicz, Directeur du Laboratoire d'analyse environnementale des procédés et des systèmes industriels (Laepsi) à l'Insa de Lyon.

Bibliographie

• Abbas T., Costen P., Lockwood F.C. *A review of current NOx control methodologies for municipal solid waste combustion process*, 4 th european conference on industrial furnaces and boilers, London, 1997.

• De Soete G.G. *Mécanismes de formation et de destruction des oxydes d'azote dans la combustion*. Revue Générale de Thermique, n° 330-331, pp. 353-373, juin-juillet 1989.

• Dryer F.L. & Glassman I. *High temperature oxidation of CO and CH₄*. 14 th international symposium on combustion, the combustion institute, pp 987-1003, 1973.

• Glarborg P., Kubel D., Kristensen P.G., Hansen J., Dam-Johansen K. *Interactions of CO, NOx and H₂O under post-flame conditions*. Combustion Science and Technology, vol. 110-111, pp461-485, 1995.

• Glassman I. *Combustion*, Third edition, Academic Press, 1996.

• Jabouille F., Zhou X., Bregeon B., Goudeau J.C., *Limitation des émissions de NOx : du pilote expérimental à l'incinérateur industriel de déchets urbains*, Déchets Sciences & Techniques n°2, pp.20-25.

• Jabouille F. *Contribution à l'étude des facteurs d'émissions des oxydes d'azote lors de l'incinération de déchets ménagers*, Thèse de doctorat de l'université de Poitiers, 1996.

• Massiot C. *Contribution à l'étude de l'incinération des déchets ménagers contenant des matières inertes*, rapport interne LCD, 1997.

• Miller J.A. & Bowman C.T. *Mechanism and modeling of nitrogen chemistry in combustion*, Progress Energy Combustion Science, vol. 15, pp. 287-338, 1989.

• Roesler J.F., Yetter R.A., Dryer F.L. *Kinetic interactions of CO, NOx, and HCl emissions in postcombustion gases*. Combustion and Flame, 100 pp495-504, 1995.

• Rogaume T., Kouliadiati J., Rogaume Y., Jabouille F., Agbangla C., Goudeau J.C. *Caractérisation et incidence des oxydes d'azote (NOx) sur notre environnement : des impacts à la réduction*, 5^{es} Journées annuelles de la S.O.A.CHIM. Université Abdou Moumouni de Niamey. 2-9 aout 1999, Niamey, République du NIGER.

• Rogaume T. *Caractérisation expérimentale et modélisation de l'émission des polluants dans l'incinération des déchets ménagers*. Thèse de doctorat de l'université de Poitiers, 2001.

• Rogaume Y. *Physico chimie de la dégradation thermique des molécules azotées : cas du polyamide et du polyuréthane*. Thèse de doctorat de l'université de Poitiers, 1999.

• Sorum L., Skreiberg O., Glarborg P., Jensen A., Dam Johansen K. *Formation of NO from combustion of volatiles from municipal solid wastes*. Combustion and Flame vol. 123, pp. 195-212, 2001.

• Westbrook C.K. & Dryer F.L., *Chemical kinetic modeling of hydrocarbon combustion*. Progress Energy Combustion Science, vol. 10, pp. 1-58, 1984.

• Yetter R.A., Dryer F.L., Rabitz H. *Complications of one step kinetics for most CO oxidation*. 21st international symposium on combustion, the combustion institute, pp. 749-760, 1986.

• Yetter R.A., Dryer F.L., Rabitz H. *A comprehensive reaction mechanism for carbon monoxide/hydrogen/oxygen kinetics*. Combustion Science and Technology vol. 79, pp. 97-128, 1991a.

• Yetter R.A., Dryer F.L., Rabitz H. *Flow reactor studies of carbon monoxide/hydrogen/oxygen kinetics*. Combustion Science and Technology vol. 79, pp. 129-140, 1991b.

• Zhou X. *Contribution à l'étude de l'incinération des déchets urbains : expérimentation en réacteur à lit fixe à contre courant, approche théorique du déplacement du front d'inflammation*. Thèse de Doctorat de l'Université de Poitiers, 1994.