

LIMITATION DES ÉMISSIONS DE NO_x : DU PILOTE EXPÉRIMENTAL À L'INCINÉRATEUR INDUSTRIEL DE DÉCHETS URBAINS

Florent Jabouille, Xiaohua Zhou, Bernard Brégeon, Jean-Claude Goudeau*

Laboratoire de Combustion et de Détonique

Des études expérimentales orientées vers la limitation des émissions de NO_x ont été menées en parallèle sur un réacteur pilote, et dans deux incinérateurs industriels d'ordures ménagères. Les résultats obtenus montrent que les émissions de NO_x peuvent être limitées par optimisation des paramètres de combustion. Par ailleurs le pilote se révèle être un outil précieux dont les résultats sont qualitativement transposables à l'échelle industrielle.

Experimental studies about NO_x emissions control have been conducted both in a pilot reactor and in two municipal solid waste incinerators. NO_x emissions can be reduced by combustion parameters optimization. The pilot is able to realize a lot of experiments whose results are transposable to the industrial scale ; It is therefore a precious tool.

INTRODUCTION

Le traitement des déchets par voie thermique est un procédé vieux d'un siècle. Outre la destruction de la fraction organique, il permet de limiter la mise en décharge et peut donner lieu à une récupération d'énergie. Les différentes techniques développées font l'objet d'études et de recherches dans le but d'en améliorer l'efficacité notamment en matière de pollution tant au niveau des résidus solides que des émissions gazeuses. Les études développées par Zhou et al.¹ au Laboratoire de Combustion et de Détonique (L.C.D.) ont permis de mettre au point un pilote simulant une tranche verticale de déchets en combustion dans un four à grilles industriel.

Les travaux présentés ici portent sur des études expérimentales menées en parallèle sur le pilote² d'une part, et dans deux incinérateurs industriels d'ordures ménagères³ d'autre part. Les objectifs de ces travaux sont de limiter la formation d'oxydes d'azote par des techniques primaires, c'est à dire par modification des paramètres de combustion, et de proposer des solutions aux industriels spécialisés dans le traitement thermique des déchets.

DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

Le pilote

Il s'agit d'un réacteur à lit fixe à contre-courant : le front d'in-

flammation se propage dans le lit solide dans le sens descendant, alors que l'air primaire (air sous grille) est injecté à la base du combustible et se déplace suivant un courant ascendant. Ce type de combustion à contre courant est celui rencontré dans les fours à grilles d'usines d'incinération d'ordures ménagères⁴.

Le montage (figure 1) est composé de six parties principales :
– le réacteur (figure 2) équipé de thermocouples permettant de suivre le déplacement du front d'inflammation dans le lit de combustible et les températures des phases solides et gazeuses, d'un capteur de pression ;
– le dispositif d'alimentation et de préchauffage de l'air comburant ;
– le système d'extraction des fumées et de piégeage des cendres ;
– la balance électronique (permet de suivre la perte de masse au cours de la combustion) ;
– l'analyseur de gaz (mesure en continue des pressions partielles en O₂, CO, NO, NO₂, SO₂) ;
– le système d'acquisition et de traitement des données.

Les produits incinérés durant cette étude sont représentatifs de la fraction combustible des déchets. Ils sont composés de matières ligno-cellulosiques telles que le bois, le papier et le carton, et de plastiques. Afin d'éviter un certain nombre de problèmes (effet de synergie, pollution...) le plastique utilisé au cours de nos expériences est dépourvu de dérivés chlorés tels qu'en contient le PVC par exemple. De même, le carton d'emballage constituant le mélange combustible expérimental est trié de manière à écarter les parties imprimées. Cartons et plastiques sont réduits de manière à obtenir des éléments d'une dimension approxi-

Tableau I : Composition centésimale de l'échantillon expérimental

Élément	Bois	Carton	P.E.T.	
Pourcentage massique (%)	24	60	16	
Composition élémentaire (%)	C	50.9	43.73	84.54
	H	5.76	5.7	14.18
	O	42.1	44.93	0
	N	0.2	0.09	0.06
	S	0.04	0.21	0.03

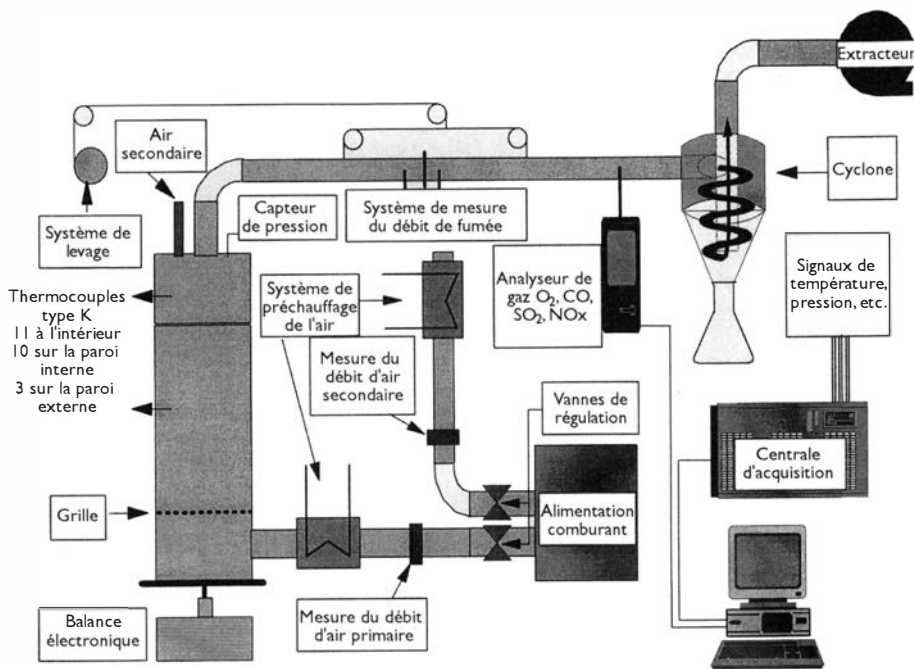


Figure 1 : Le réacteur à lit fixe

mative de 20 x 20 mm². A l'exception des plastiques, les constituants du mélange combustible sont séchés à l'étuve à 105°C pendant un délai minimum de douze heures. La composition du mélange final (Tableau 1) est établie à partir d'études statistiques sur la production de déchets de pays en voie de développement. La masse totale de l'échantillon sec utilisé au cours des expériences réalisées sur le réacteur est de 300 g, ce qui correspond à une hauteur de lit voisine de 38 cm, soit une densité apparente de l'ordre de 0.05. La porosité du lit est quant à elle de l'ordre de 0.87. Les paramètres opératoires dont l'influence a été étudiée sont les suivants :

- le débit et la température de préchauffage de l'air primaire,
- le débit et la température de préchauffage de l'air secondaire,
- la fraction d'air admis sous la grille,

- l'étagement de l'air secondaire (sur un, deux ou trois niveaux),
- le taux d'humidité du combustible.

Les usines d'incinération

Les expériences menées à l'échelle industrielles ont été effectuées sur deux usines d'incinération d'ordures ménagères exploitées par la société Tiru (Traitement Industriel des Résidus Urbains) en région parisienne.

L'usine d'incinération d'Issy-les-Moulineaux

Sa capacité est de 540 000 t/an réparties sur quatre fours de 17 t/h. La nature et les points de mesure sont reportés dans le tableau 2.

Tableau 2 : Liste de la nature des mesures (UIOM Issy-les-Moulineaux)

Nature de la mesure	Points de mesures
CO, CO ₂ , O ₂ , NO _x	A la voûte
CO, CO ₂ , O ₂ , NO _x	Avant le laveur
Mâchefers	
Imbrûlés des cendres	
Températures	A la voûte
Températures	Aux points entrée sortie de l'échangeur thermique
Température de l'air	Entrées airs primaire et secondaire
Température du circuit d'eau vapeur	
Débit d'air	Entrées airs primaire et secondaire
Débit fumée	Débit vapeur
Température vapeur	
Vitesse de grille	
Vitesse d'alimentation	
Distribution de l'air primaire	
CO, NO _x , HCl, SO _x	Cheminée

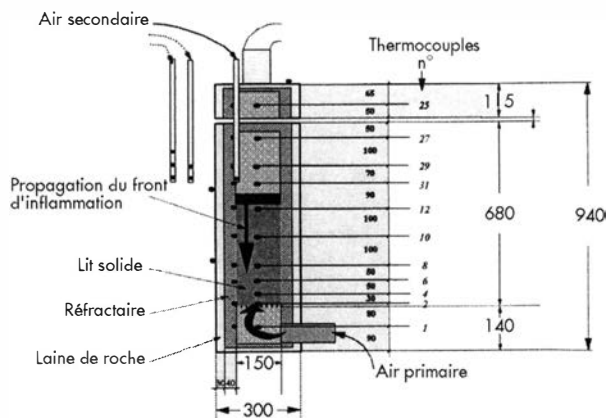


Figure 2 : Position des capteurs dans le corps du réacteur (valeurs exprimées en mm)

Les résultats présentés dans cet article sont relatifs à l'évolution des émissions de NOx en fonction du rapport air primaire/air total. D'autres paramètres expérimentaux tels que l'influence de la distribution d'air primaire sous la grille et la vitesse de celle-ci ont également été étudiés³.

Les expériences sont effectuées pour trois distributions de l'air primaire sous la grille, avec trois valeurs du rapport air primaire/air total et deux vitesses de grilles. Le débit total d'air introduit dans l'incinérateur demeure constant.

L'usine d'incinération de Saint-Ouen

Mise en service en 1990, elle dispose d'une capacité de traitement de 630 000 t/an. L'usine est composée de trois fours

d'incinération de 28 t/h de déchets, et de trois chaudières produisant chacune 72 t/h de vapeur à 380°C sous 40 bars. La nature et les points de mesure sont reportés dans le tableau 3.

Tableau 3 : Liste de la nature des mesures (UIOM Saint-Ouen)	
Nature de la mesure	Points de mesures
CO, CO ₂ , O ₂ , NO _x , N ₂ O, HCl	Avant le laveur
CO, CO ₂ , O ₂ , NO _x	Avant le laveur
Teneur en poussière	
Mâchefers	
Imbrûlés des cendres	
Températures	A la voûte
Températures	Aux points entrée sortie de l'échangeur thermique
Température de l'air	Entrées airs primaire et secondaire
Température du circuit d'eau vapeur	
Débit d'air	Entrées airs primaire et secondaire
Débit fumé	
Débit vapeur	
Température vapeur	

Les paramètres opératoires sont :

- la température de préchauffage de l'air primaire,
- le rapport air primaire/air total.

Les expériences sont effectuées pour trois valeurs du rapport air primaire/air total (60 %, 72 % et 80 %, à débit d'air total constant) et trois valeurs de température de préchauffage de l'air (15, 50, 90°C).

RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

Les facteurs d'émissions d'oxydes d'azote étudiés sur les deux types de dispositif sont :

- le rapport air primaire/air total,
- la température de préchauffage du comburant.

Types de mécanismes de formation des NO_x

La cinétique de formation du monoxyde d'azote dépend de la température du milieu réactif et de la pression partielle en dioxygène, le NO thermique étant particulièrement sensible à la température alors que le NO du combustible dépend fortement de la concentration en O₂. Compte tenu des températures mises en jeu, le NO est probablement issu du mécanisme du NO du combustible.

Les expériences menées au LCD² pour évaluer l'influence du débit d'air total sur le taux d'émissions de NO_x ont conduit aux résultats présentés sur les figures 3, 4 et 5, l'air secondaire étant introduit sur 1 ou plusieurs niveaux.

Le taux d'émissions de NO et la pression partielle en dioxygène sont des fonctions croissantes du débit d'air total. Nous pouvons également constater qu'en fonction des différents paramètres opératoires, la pression partielle en monoxyde d'azote dans les fumées peut varier du simple au double.

D'autre part les températures enregistrées dans la phase gazeuse (figure 4) ne varient pas ou très peu en fonction du paramètre étudié.

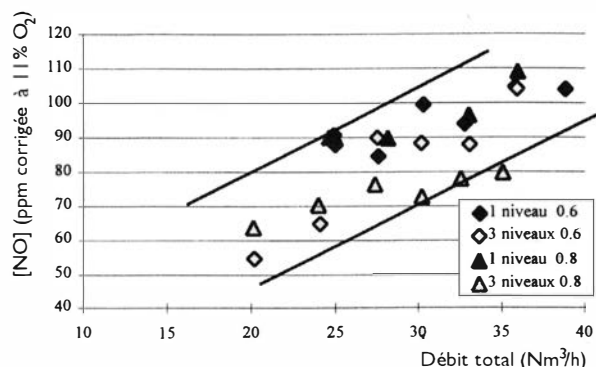


Figure 3 : Pression partielle de monoxyde d'azote dans les fumées en fonction du débit d'air total

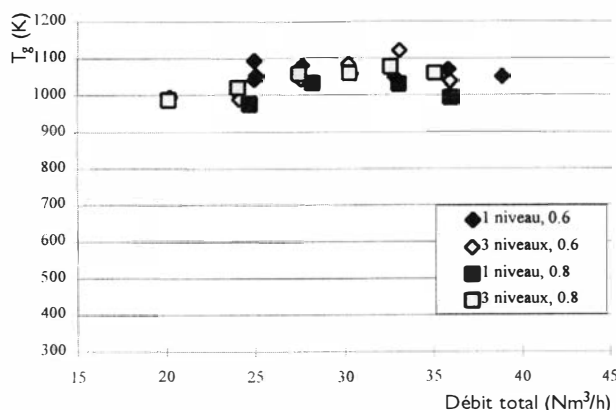


Figure 4 : Variation de la température moyenne dans la phase gazeuse en fonction du débit d'air total.

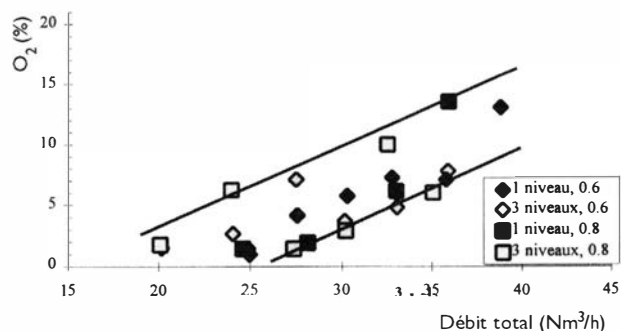


Figure 5 : Pression partielle en dioxygène résiduel dans les fumées en fonction du débit d'air total.

Les tendances observées confirment donc le fait que le monoxyde d'azote est essentiellement formé à partir du mécanisme du NO du combustible.

Les essais réalisés à l'échelle industrielle par Zhou³ montrent que bien que des vitesses de grilles différentes entraînent des variations de température de combustion, elles n'affectent pas ou peu les émissions de NO_x. Dans ce cas la formation de NO_x ne dépend pas de la température mais plus particulièrement de la combustion dans le lit solide : c'est la caractéristique type du NO_x de combustible.

Influence du rapport air primaire/air total

Les figures 6 et 7 représentent la production de NO_x en

fonction du rapport air primaire/air total pour les expériences menées respectivement dans les UIOM d'Issy-les-Moulineaux et de Saint-Ouen.

Dans les deux cas la production de NOx est une fonction décroissante du rapport air primaire/air total. Les expériences menées sur le pilote conduisent aux mêmes tendances (figures 8, 9 et 10) lorsque l'air secondaire n'est pas étagé (1 niveau d'injection). La distribution de la densité de réaction sur le lit solide et les possibilités d'un bon mélange des produits de gazéification peuvent expliquer cette tendance générale. La transformation de l'azote contenu dans la matière volatile en NOx dépend de deux facteurs : un bon mélange de l'oxygène avec l'azote constitutif et la réaction chimique entre eux. Le temps nécessaire pour la réaction peut être négligeable devant celui nécessaire à un mélange homogène. Le temps de transport de ces produits de pyrolyse de la surface du lit solide à la zone réactionnelle turbulente (zone d'injection d'air secondaire) est d'environ 0.5 à 1 seconde. Quand le rapport air primaire/air total est faible, la gazéification (et la combustion) a lieu d'une façon prépondérante dans la partie supérieure de la grille, la couche en combustion est plus épaisse, ce qui entraîne localement un accroissement de la quantité d'espèces dévolatilisées, qui vont être soumises à un milieu d'autant plus oxydant que le débit relatif d'air secondaire est élevé. La fin de zone de combustion concerne éventuellement l'oxydation du carbone fixe résiduel.

Quand le rapport air primaire/air total est plus élevé, les pro-

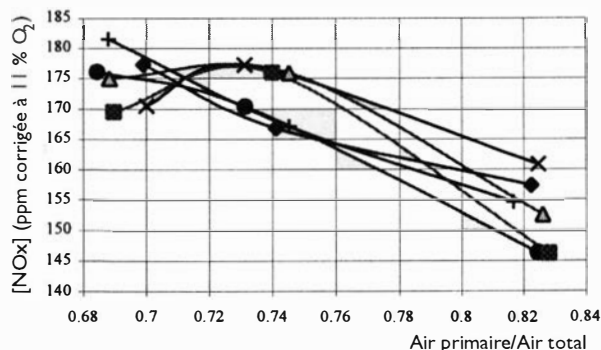


Figure 6 : Concentration en NOx en fonction du rapport air primaire/air total (Issy-les-Moulineaux)

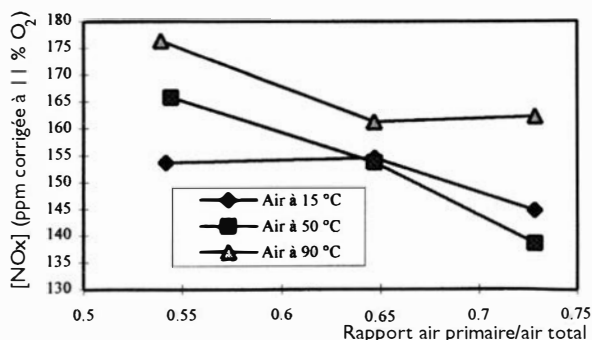


Figure 7 : Concentration en NOx en fonction du rapport air primaire/air total (Saint-Ouen)

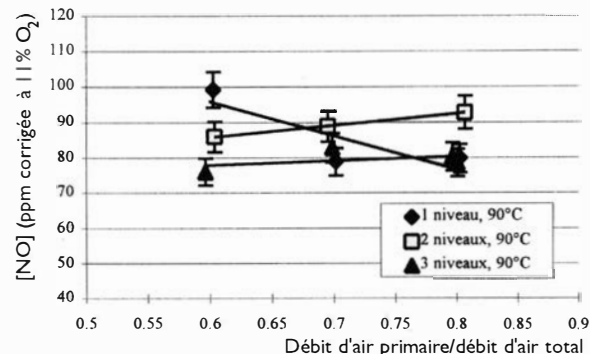
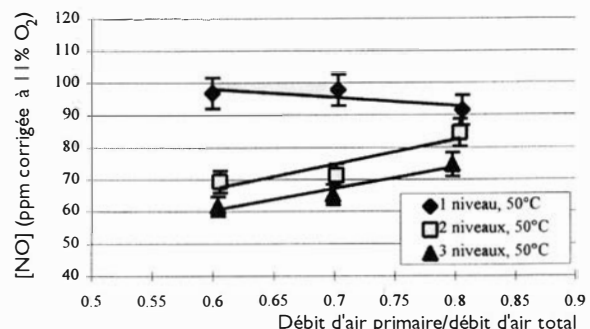
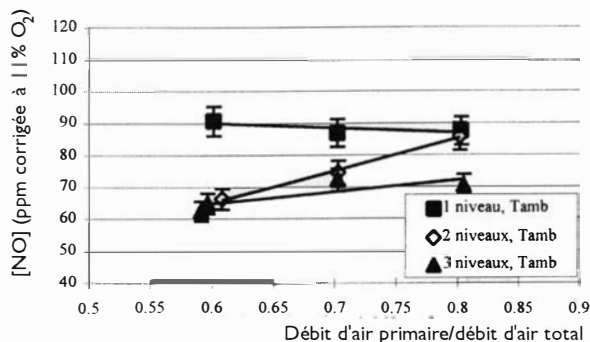


Figure 8, Figure 9, Figure 10
Influence de la fraction d'air admis sous grille sur la teneur en monoxyde d'azote des fumées, lorsque l'air secondaire est étagé ou non, sans préchauffage du comburant (fig. 8), avec un préchauffage à 50°C (fig. 9) et à 90°C (fig.10).

duits de pyrolyse sont libérés de façon plus homogène le long de la zone de combustion. Ceci entraîne un meilleur mélange et la transformation de l'azote constitutif en NOx est essentiellement due à l'oxygène de l'air primaire. Ce qui se passe au niveau de l'injection d'air secondaire est alors comparable à un effet de recirculation : les espèces de type NX sont transformées en N₂ par réaction avec le NO déjà formé.

Influence de la température de préchauffage de l'air

Que ce soit dans le cadre de l'étude réalisée sur le réacteur à lit fixe ou celle menée à l'échelle industrielle, le préchauffage de l'air primaire modifie considérablement la vitesse de propagation du front d'inflammation ; une élévation de

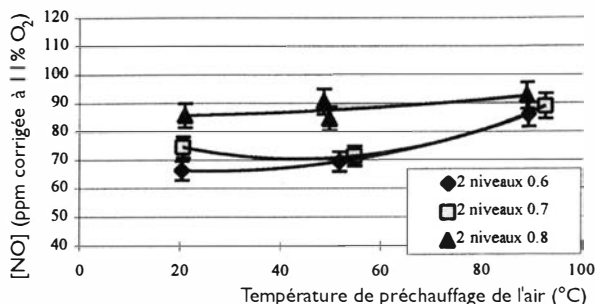


Figure 11 : Variation de la teneur en monoxyde d'azote dans les fumées en fonction de la température de préchauffage de l'air, lorsque l'air secondaire est injecté sur deux niveaux.

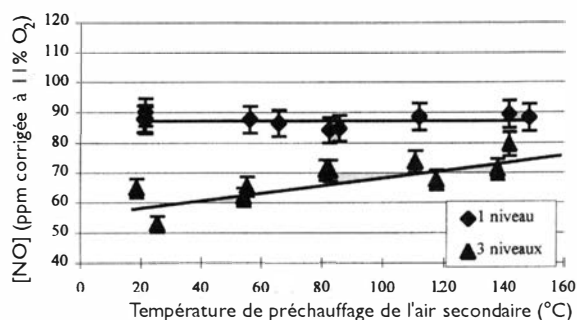


Figure 12 : Influence de la température de préchauffage de l'air secondaire lorsqu'il est étagé ou non sur la teneur en monoxyde d'azote dans les fumées (air primaire à température ambiante).

cette température entraîne une augmentation de la vitesse de déplacement du front, ce qui induit une augmentation de l'épaisseur de la couche en combustion. Comme dans le cas d'une diminution du rapport air primaire/air total, ceci se traduit par une augmentation du taux de NOx comme l'indiquent la figure 7 relative aux expériences effectuées à l'UIOM de Saint-Ouen et la figure 11 pour les essais en laboratoire.

Lorsque les conditions d'admission d'air primaire sont constantes la réactivité au niveau du lit solide reste invariable. Ainsi une variation du taux d'émission de monoxyde d'azote dans ces conditions ne peut être due qu'à une modification de la réactivité dans la phase gazeuse.

La figure 12 reflète les résultats obtenus sur le pilote où seule la température de l'air secondaire a varié. Elle indique qu'à débit d'air constant (dans les conditions normales de température et de pression), la température de préchauffage de l'air secondaire n'a pas d'effet sur les émissions de monoxyde d'azote, tout au moins sur le domaine de température considéré (de 20 à 150°C), si l'air secondaire n'est pas étagé. En revanche si l'air secondaire est injecté sur plusieurs niveaux, le taux de monoxyde d'azote est une fonction croissante de la température de préchauffage de l'air secondaire.

Influence de l'étagement de l'air secondaire

L'ensemble des phénomènes de dégradation thermique et de combustion au niveau du lit de combustible solide sont gouvernés par le débit et la température de préchauffage de l'air primaire. Cependant nous avons pu constater que la teneur en oxydes d'azote dans les fumées pouvait varier sensiblement en fonction des conditions d'injection de l'air secondaire⁵. Cette technique est déjà largement utilisée pour réduire les émissions de NOx dans le cas de combustibles « conventionnels ».

Les figures 8, 9 et 10 relatives à des expériences réalisées sur le pilote indiquent clairement une inversion de tendance lorsque l'injection « simple » d'air secondaire est remplacée par une injection multiple.

Plusieurs séries d'essais dont les conditions sont reportées dans le tableau 4 ont été effectuées sur le réacteur afin d'évaluer l'influence de l'étagement de l'air secondaire sur les émissions d'oxydes d'azote.

A titre d'exemple, la figure 13 représente l'évolution du NO en fonction du nombre de niveaux d'injection d'air secondaire pour une température de préchauffage de l'air de 50°C.

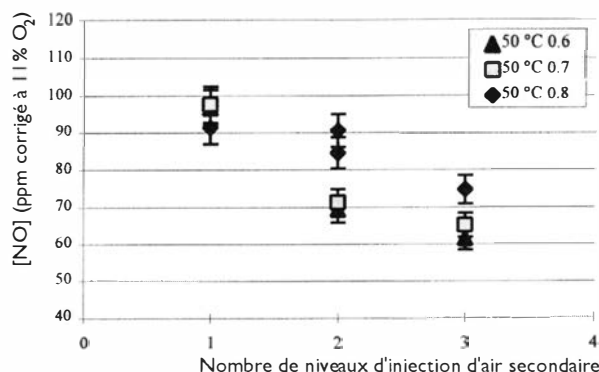


Figure 13 : Variation de la teneur en monoxyde d'azote dans les fumées en fonction du nombre de niveaux d'injection d'air secondaire, avec une température de préchauffage de l'air de 50°C.

Ce graphique, ainsi que les résultats obtenus à des températures de préchauffage différentes², mettent clairement en évidence le rôle positif de l'étagement de l'air secondaire sur la réduction des émissions de monoxyde d'azote. La diminution du taux de NO peut atteindre 35% en injectant l'air secondaire sur trois niveaux, lorsque la température de préchauffage de l'air est inférieure à 50°C.

Pour des conditions d'apport d'air primaire invariantes, les

Tableau 4 : Conditions opératoires des expériences relatives à l'influence de l'étagement de l'air secondaire	
Paramètre opératoire	Domaine
Débit d'air total	~ 24 Nm ³ /h
Température de préchauffage de l'air	20 à 90 °C
Fraction d'air comburant admis en air primaire	0.6, 0.7 et 0.8
Étagement de l'air secondaire	1, 2 ou 3 niveaux

conditions de dégradation thermique et de combustion dans le lit solide sont identiques ; ainsi la quantité de NO formée à ce niveau est elle aussi constante pour des conditions de débit et de température de préchauffage de l'air primaire données. La diminution de la teneur en NO dans les fumées constatée provient donc d'une modification des mécanismes de combustion dans la phase gazeuse. A débit d'air secondaire constant, le fait de multiplier les niveaux d'injection induit la formation de zones successives de richesse différente.

Ce procédé consiste à diviser le foyer en plusieurs zones distinctes de richesse différente. Théoriquement, la première zone doit présenter un caractère réducteur afin de minimiser la formation de monoxyde d'azote tandis que la seconde zone, plus pauvre donc plus oxydante, permet de compléter la combustion des résidus imbrûlés gazeux.

Les expériences réalisées montrent que la multiplication des zones a un effet bénéfique sur la diminution des NOx. En considérant que chacune des zones créée est le siège d'une combustion localement plus intense, et que cette intensité de combustion est fonction de la pression partielle en dioxygène, alors à débit d'air secondaire égal, chacune des zones créées est d'autant moins oxydante que le nombre de niveaux d'injection est grand. Globalement la quantité d'oxygène apportée au combustible est la même. Chacune des zones étant relativement moins oxydante, elle génère une quantité moindre de NO. D'autre part, il n'est pas impossible que les zones intermédiaires relativement plus riches aient un pouvoir suffisamment réducteur pour réduire le NO formé dans les zones inférieures. Ce procédé a toutefois ses limites, dictées par les phénomènes de transfert de chaleur. En effet, un débit d'air secondaire trop important a tendance à refroidir la zone réactive et risque d'entraîner une extinction, ce qui a pour conséquence d'augmenter la quantité d'espèces imbrûlées gazeuses.

CONCLUSION

L'objectif de cette étude est de limiter les émissions d'oxydes d'azote par des techniques dites primaires, c'est à dire par modification (optimisation) des paramètres de combustion. L'hétérogénéité des déchets et les effets de synergie de chacun des paramètres peuvent conduire à des états différents de combustion. Les différents résultats exposés dans le présent article font référence à des expériences réalisées sur un pilote d'une part et à l'échelle industrielle d'autre part : les corrélations pilote UIOM sont bonnes. Les conclusions peuvent être résumées comme suit :

- 1- Les oxydes d'azote sont essentiellement issus de l'oxydation de l'azote constitutif du combustible. Leur formation dépend d'une part de la volatilisation du combustible solide et d'autre part de la réactivité des espèces dévolatilisées ;
- 2- leurs émissions peuvent être limitées par : les contrôles de la fraction d'air admis sous grille et de sa température. Dans ce cas il s'agit essentiellement d'une action au niveau

de la dégradation au niveau du combustible solide ;

3- les expériences menées sur le pilote indiquent que les meilleurs résultats en matière de limitation des émissions de NOx sont obtenus en étageant l'admission d'air secondaire. Cette « piste » peut permettre de prévoir des modifications à apporter sur les installations futures ;

4- le pilote s'avère être un outil précieux dans la mesure où il offre la possibilité de réaliser un grand nombre d'expériences dont les résultats sont qualitativement transposables à l'échelle industrielle. Un tel programme d'études ne peut être envisagé dans une usine d'incinération compte tenu du coût qu'il engendre, du temps nécessaire à sa mise en œuvre et à sa réalisation et du cahier des charges de l'exploitant. Les études expérimentales effectuées au moyen de ce réacteur vont se poursuivre au laboratoire sur divers types de combustibles. Elles seront complétées par un modèle mathématique réalisé à partir du code de calcul Fluent, et de la théorie développée par Zhou^{1, 6} sur la vitesse de déplacement du front d'inflammation dans un solide poreux. Ce modèle prend en compte l'ensemble des lois de l'aérothermochimie. L'association de l'outil expérimental et de l'outil mathématique permettra à terme d'optimiser les systèmes de combustion de déchets solides, tant d'un point de vue géométrique (dimensionnement de la chambre de combustion, système d'alimentation du combustible et du comburant), que d'un point de vue opératoire (température de préchauffage et débits d'air).

* **Florent Jabouille, Jean-Claude Goudeau, Bernard Brégeon**
Laboratoire de combustion et de détonique - UPR 9028, CNRS - ENSMA, site du futuroscope - 86960 FUTUROSCOPE Cedex - FRANCE - tel : (33) 49 49 82 90, fax : (33) 49 49 82 91

* **Xiaohua Zhou**

Compagnie générale de chauffe - Chine - C404-C405 Beijing Lufthansa Center - N° 50 Liangmaoia Road - Chaoyang District - Beijing 100016 P.R. China - Tel : (8610) 465 1346/465 1347, fax : (8610) 465 1367

Bibliographie

1. X. Zhou, *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 (mars 1994).
2. F. Jabouille, *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 (janvier 1996).
3. X. Zhou, *Influence des paramètres de fonctionnement sur la performance thermique et la formation d'émissions polluantes en incinérateur*, Rapport de stage Post-Doctoral (Mai 1995).
4. W.R. Seeker, *Waste combustion*, Proc. 23rd Symposium (International) on Combustion, Orléans France (22-27 Juillet 1990).
5. F. Jabouille, X. Zhou, S. Kerdsuwan, B. Brégeon, J.-C. Goudeau, *NOx emissions of municipal solid wastes incineration ; Experiments in a counter flow fixed bed reactor and in a rotary kiln incinerator*, The third Asian Pacific International Symposium on Combustion and Energy Utilization, Dec. 11, 15 1995 Hong-Kong.
6. X. Zhou, J. L. Torero, J.-C. Goudeau, B. Brégeon, *On the propagation of a reaction front through a porous fuel in the presence of an opposed forced flow : application to mixtures characteristic of municipal waste*, Combustion Science and Technology (sous presse).