

Etude des transferts thermiques d'un coulis d'hydrate de CO₂ dans une boucle pilote de réfrigération secondaire

Salem JERBI⁽¹⁾, Jeremy OIGNET⁽¹⁾, Pascal CLAIN⁽¹⁾, Anthony DELAHAYE^{(1) (*)}, Laurence FOURNAISON⁽¹⁾

¹Plateau du Moulon – 91004 Targé LGP2ES (EA 21) – Irstea, 1 rue Pierre Gilles de Gennes CS 10030
* (auteur correspondant : anthony.delahaye@irstea.fr)

Résumé - L'objectif de ce travail est de présenter les premiers résultats de transfert thermique au sein d'une boucle pilote de réfrigération permettant l'utilisation d'un fluide frigoroporteur diphasique le coulis d'hydrates de CO₂. Afin de caractériser leurs conditions d'échanges thermiques, un dispositif dynamique constitué d'un tube chauffant a été conçu et mis au point pour étudier les coefficients d'échange locaux. La méthode de mesure, validée sur de l'eau, a permis d'obtenir des coefficients d'échange locaux de l'ordre de 2500 Wm⁻²K⁻¹ pour une concentration volumique en hydrates de 18 %. Ces résultats sont du même ordre de grandeur que ceux obtenus avec les coulis de glace.

Nomenclature

D	diamètre, m	λ	température, K
h	coefficient d'échange, W.m ⁻² .K ⁻¹	σ	résistivité électrique, $\Omega.m^{-1}$
I	intensité, A	<i>Indices et exposants</i>	
L	longueur, m	$alim$	fourni par l'alimentation électrique
\dot{Q}	puissance, W	loc	locaux
S	section, m ²	f	fluide
<i>Symboles grecs</i>		r	rayon
ΔT	écart de température, K	p	paroi
ρ	écart de température, kg.m ⁻³		

1. Introduction

Aujourd'hui, le refroidissement secondaire s'avère être une solution alternative pour limiter l'empreinte carbone des systèmes utilisant des fluides frigorigènes. Le refroidissement secondaire peut permettre de réduire les émissions directes de gaz à effet de serre liées à l'utilisation des frigorigènes (systèmes classiques à détente directe). En effet, elle s'appuie sur l'utilisation de fluides frigoroporteurs neutres vis-à-vis de l'environnement (de l'eau par exemple) ayant pour rôle de transporter le froid du lieu de production (salle des machines) jusqu'aux lieux d'utilisation. Cela permet ainsi de réduire et de confiner les quantités de frigorigène mises en jeu. Le refroidissement secondaire nécessite cependant l'emploi d'échangeurs de chaleur et de pompes de circulation additionnels qui génèrent des pertes exergétiques supplémentaires dans le système. Afin de limiter ces pertes, une méthode consiste à véhiculer le froid via un fluide frigoroporteur diphasique (FFD) constitué de matériau à changement de phase (MCP) sous forme de particules solides en suspension dans une phase liquide. Ces particules sont susceptibles d'accumuler par chaleur latente des quantités de froid bien supérieures à l'énergie contenue par chaleur sensible dans leur phase de transport. De plus, les températures mises en jeu dans les FFD sont plus stables, ce qui permet de minimiser les irréversibilités thermodynamiques au niveau des échangeurs.

Actuellement, les FFD les plus courants sont les coulis de glace (mélange d'une phase liquide de transport et de cristaux de glace). Ils sont largement développés en Asie pour des applications de stockage de froid, mais leur développement à l'échelle industrielle en Europe se heurte à la fois à la limitation en puissance des générateurs actuellement employés reposant sur des procédés mécaniques (échangeurs à surface raclée ou surface brossée) et à leur coût élevé. Pour répondre à ce problème, une solution consiste à générer des FFD par voie non mécanique. Les coulis d'hydrates de gaz peuvent être un bon candidat, car un des procédés de fabrication connus repose sur la simple injection de gaz dans une solution aqueuse refroidie. Les hydrates de gaz sont des solides cristallins issus de l'arrangement de molécules d'eau liées entre elles par des liaisons hydrogène constituant des cages autour de molécules de gaz stabilisatrices. De plus, les cristaux d'hydrates de CO₂ ont une chaleur latente de fusion élevée (374 kJ.kg⁻¹), supérieure à celle des cristaux de glace (333 kJ.kg⁻¹). Enfin, ils se forment dans des conditions de température positive adaptées aux applications de climatisation [1].

Une première boucle simplifiée a été conçue dans le cadre d'un précédent travail [2-4], afin de caractériser la formation et l'écoulement des coulis d'hydrates. Ceci a conduit à la mise en place d'un protocole de formation de coulis d'hydrates de CO₂ et à l'étude de l'influence d'additifs (surfactants, antiagglomérants) sur leurs conditions d'écoulements (formation, dispersion, agglomération, instabilités...). Cette boucle ne peut cependant pas être utilisée comme une boucle pilote dans la mesure où le système fonctionne en condition adiabatique et ne gère pas les transferts gazeux liés à la restitution de chaleur de dissociation des coulis d'hydrates. Pour cela une nouvelle boucle pilote équipée d'échangeurs de chaleur a été conçue [5-7]. Afin de caractériser les conditions d'échanges thermiques des coulis d'hydrates de CO₂, un dispositif dynamique constitué d'un réacteur agité et d'une boucle de circulation a été conçu et mis au point. Ce dispositif expérimental permet de former des coulis d'hydrates concentrés jusqu'à 25 % de fraction solide et d'étudier les coefficients d'échange locaux via un tube chauffé électriquement. L'objectif de ce papier est donc de présenter les premiers résultats d'étude thermiques de la nouvelle boucle pilote générant un coulis d'hydrates CO₂.

2. Matériels et méthodes

La nouvelle boucle pilote utilisée pour caractériser un coulis d'hydrate de CO₂ est présentée Figure 1. Le système se divise en deux parties, la première partie concerne la génération d'un coulis d'hydrate de CO₂ au sein du réacteur agité. La seconde partie correspond à la boucle de circulation qui permet ainsi d'étudier l'écoulement du coulis d'hydrate du CO₂ ainsi que les coefficients d'échanges locaux lors de son passage dans le tube chauffant.

2.1. Boucle de circulation

La boucle expérimentale (Figure 1) est constituée d'éléments tubulaires standards en acier inoxydable (316L) de diamètre intérieur $D_{\text{int}} = 7,74$ mm, et de diamètre extérieur $D_{\text{ext}} = 9,52$ mm. La boucle est reliée au réacteur par un système de vannes qui permet de fonctionner en réservoir fermé, en boucle fermée, ou bien avec les deux connectés (Figure 1 et 2). Le fluide circule grâce à une pompe 220-type Axflow Micro Pump (pression différentielle 0,4 MPa, pression statique 10 MPa) à vitesse réglable, équipée d'un variateur (Leroy Somer). Le débit maximum (pour de l'eau) est de 203 l.h⁻¹ correspondant à une vitesse d'écoulement de 1,2 m.s⁻¹, soit un $Re_{\text{max}} \sim 7383$ à 10°C. Ainsi une étude en régime laminaire et turbulent peut être réalisée au sein de cette boucle. Cette boucle est conçue pour étudier les coefficients d'échange thermique via un tube chauffant et restitution d'énergie via un échangeur à plaque lors de la dissociation des hydrates de CO₂. Enfin, l'ensemble du dispositif expérimental (boucle + réacteur) est isolé thermiquement par de la mousse isolante et est placé dans une chambre thermo-régulée.

2.2. Tube chauffant

Un système de mesure des coefficients de transfert de chaleur locaux est inséré sur la boucle, ce qui permet d'avoir une approche plus fine des échanges thermiques. Ce dispositif, un tube chauffant, peut ainsi caractériser les coefficients d'échange selon le type de régime d'écoulement (établi, transitoire) afin de déterminer la zone d'établissement thermique. Une étude bibliographique sur la méthodologie à mettre en œuvre pour mesurer les coefficients d'échanges locaux a été réalisée. Des travaux menés précédemment [8, 9] ont montré la possibilité de mesurer les coefficients d'échange locaux et globaux sur un tube chauffé par effet Joule. Le système consiste à chauffer une partie d'un tube droit de la boucle (620 mm de long) en veillant aux longueurs d'établissement hydrauliques. Le chauffage est assuré en faisant passer un courant électrique au travers des parois du tube. Ce chauffage génère une différence de température entre le tube et le coulis d'hydrates. Afin de limiter les incertitudes, la méthode mise en œuvre nécessite une différence de température supérieure à 5 °C entre la paroi et le fluide. Pour ce faire, il est nécessaire d'apporter une intensité électrique suffisante au tube lors du chauffage par effet Joule. La détermination du courant à apporter au système est réalisée avec de l'eau pour différents écarts de température et en s'appuyant sur la connaissance de la résistivité électrique de l'acier inoxydable ($2.41 \times 10^{-5} \text{ Ohm.m}^{-1}$) et du coefficient d'échange thermique de l'eau en écoulement dans le tube (Figure 3), selon la formule suivante :

$$\dot{Q} = \frac{\sigma L}{S_r} I^2 = h S_p \Delta T \quad (1)$$

$$I = \sqrt{\frac{h \Delta T \pi D S_r}{\rho}} \quad (2)$$

En s'appuyant sur les données des coefficients d'échange relatives aux coulis de glace, compris entre 500 et 2500 $\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$, le dispositif a été conçu pour un coefficient d'échange de transfert supérieur, soit 5000 $\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$, en considérant un ΔT de 10°C entre la température du tube et celle du coulis. Par conséquent, d'après la Figure 3, le système doit être équipé avec une alimentation pouvant délivrer un courant maximum de 200 A et une tension de 6 V. Ainsi, le tube est chauffé à l'aide d'une alimentation électrique Sorensen XFR de MB électronique (6 V-200 A-2,8 kW). L'alimentation est reliée par deux câbles électriques aux extrémités d'un tube de 620 mm de long, isolé électriquement du reste de la boucle par deux raccords en pvc Swagelok résistants à une pression de 3 MPa. Pour déterminer les coefficients d'échange thermique locaux, sept thermocouples de type T sont brasés à l'étain à différentes positions (Figure 4) sur le dessus du tube chauffé électriquement. Le choix de les braser à l'étain est motivé par le fait de ne pas détériorer les thermocouples. En effet, une brasure à l'étain entraîne une température maximum de l'ordre de 100°C, alors que les thermocouples résistent à une température de 350°C. Le tube chauffant et les thermocouples brasés sont isolés thermiquement de l'air ambiant par de la mousse isolante (Figure 4). Pour mesurer la température moyenne du coulis d'hydrates de CO_2 à l'entrée et à la sortie du tube, deux PT 100 sont installées. Cela permet d'évaluer le coefficient d'échange thermique global.

2.3. Détermination des coefficients d'échange thermique

Les coefficients d'échange thermique locaux sont déterminés expérimentalement à partir du flux de chaleur imposé à la paroi par l'alimentation de chauffage et de la différence entre la température de paroi mesurée par chaque thermocouple et la température du fluide :

$$h_{loc} = \frac{\dot{Q}_{a\lim}}{2 \pi r L (T_p - T_f - \Delta T_p)} \quad (3)$$

où ΔT_p représente l'écart de température au travers de la paroi du tube, calculé en intégrant l'équation locale de la conduction de chaleur en supposant une source volumique de chaleur uniformément répartie [10], ce qui donne l'équation suivante :

$$\Delta T_p = \left[\frac{\dot{Q}_{a\lim}}{4 \cdot \pi \cdot \lambda_{inox} \cdot L} \right] \cdot \left[\frac{\xi(1 - \ln \xi) - 1}{1 - \xi} \right] \quad (4)$$

$$\xi = (D_{ext} / D_{int})^2 \quad (5)$$

Le coefficient d'échange moyen est la moyenne des coefficients d'échange locaux après établissement thermique, c'est à dire lorsque le coefficient d'échange local devient constant le long du tube chauffé.

3. Résultats et discussions

Dans cette partie, les résultats thermiques obtenus pour les coulis d'hydrates de CO₂ sont présentés. Une première partie concerne les mesures locales de température et permet d'explicitier la méthode du tube chauffant. Une seconde partie s'intéresse à la détermination des coefficients d'échange thermique, avec une validation de la méthode sur l'eau puis les mesures de coefficient des coulis d'hydrates de CO₂. Dans le cadre de cette étude thermique, le nombre de Reynolds utilisé est relatif à l'eau, même pour différents résultats relatifs aux coefficients d'échange des coulis d'hydrates. Seule la fin de la section concernant les coulis présente une approche comparative entre le nombre de Reynolds pour l'eau et le nombre de Reynolds pour le coulis.

3.1. Mesures de température par la méthode du tube chauffant

La formation du coulis d'hydrates de CO₂ est réalisée en réacteur ouvert avec circulation dans la boucle dynamique. Pour l'étude des coefficients d'échanges thermiques locaux, on utilise la méthode du tube chauffant décrite précédemment. La Figure 5 représente les températures de la paroi du tube et du coulis (en entrée et en sortie de tube) en fonction du temps pour différentes vitesses d'écoulement dans la boucle dynamique, en régime laminaire et turbulent, lors d'un chauffage avec une puissance électrique d'environ 70 W d'un coulis contenant 3 % vol d'hydrates à l'entrée du tube. La Figure 5 montre tout d'abord que la température de la paroi augmente le long du tube, ce qui confirme l'existence d'un échange de chaleur. On observe également une bonne stabilité des plateaux de température de paroi et du coulis, correspondant à un même débit d'écoulement. L'exploitation des mesures de température à différentes vitesses d'écoulement permet ensuite d'évaluer les coefficients d'échange thermique pour le coulis d'hydrates de CO₂.

3.2. Coefficient d'échange thermique pour de l'eau

Dans cette section, la méthode de détermination des coefficients d'échange thermique locaux par le tube chauffant est validée dans la nouvelle boucle pilote avec un écoulement d'eau. Les essais sont réalisés pour différents flux uniformes de chaleur imposés. Les résultats

de coefficients d'échange thermique obtenus sont présentés Figure 6. Le coefficient d'échange local diminue à l'entrée de la zone de mesure jusqu'au second thermocouple. En conclusion, quelque soit le régime d'écoulement laminaire ou turbulent, on observe une décroissance importante du coefficient d'échange local à l'entrée du tube, suivie par une zone avec une valeur quasi constante. Cette évolution classique souligne la présence d'une longueur d'établissement thermique qui, ici, est relativement courte. La Figure 7 représente le nombre de Nusselt en fonction du nombre de Reynolds pour différents flux de chaleur imposés. On constate que l'ensemble des résultats sont en accord avec les corrélations en régime laminaire. En revanche, on observe une divergence en régime turbulent pour les deux plus basses intensités (50 et 70 A). A partir de 90 A, on retrouve un accord entre les valeurs expérimentales et la corrélation en régime turbulent. Cela signifie qu'à partir de cette intensité, le coefficient d'échange ne dépend plus du flux de chaleur, ce qui est une condition généralement respectée pour ce type de caractérisation thermique. On peut donc en conclure que le dispositif est validé pour des mesures à l'eau à partir d'une intensité de 90 A.

3.3. Coefficient d'échange thermique pour un coulis d'hydrate de CO₂

Des essais préliminaires ont été menés afin de déterminer la limite de fonctionnement en continu du système. En effet, le réacteur agité présente un coefficient d'échange thermique global inférieur à celui d'un simple tube chauffant. Ainsi, un compromis a dû être trouvé entre les différents paramètres opératoires afin d'éviter un échauffement excessif du coulis lors des essais. Afin de pouvoir réaliser des mesures en régime permanent, les premiers essais ont été réalisés à faibles flux de chaleur dans le tube chauffant avec des intensités de 40 A et 60 A. La température de la chambre froide a été abaissée à 2°C et la température de consigne du groupe froid à -4°C. Ainsi, le coulis d'hydrates n'a subi qu'un échauffement limité sur des temps d'essai de l'ordre de 50 min, soit 10 plateaux de débits de 5 mn chacun. Par la suite, des essais ont été réalisés avec des intensités plus importantes de 90 A et 120 A pour les mêmes conditions opératoires mais avec des plateaux de débits réduits à 2 mn, soit des temps d'essai globaux de 20 mn. Ainsi, la température du coulis d'hydrates à l'entrée du tube chauffant varie de moins de 1 °C, ce qui peut être considéré comme un régime quasi-établi. La Figure 8 présente l'évolution des coefficients d'échange locaux pour différents Reynolds pour un coulis contenant 13 % d'hydrates à l'entrée du tube chauffant et pour une intensité de 90 A. Comme pour le fluide monophasique, une diminution du coefficient d'échange local à l'entrée du tube suivie d'une évolution quasi-constante est observée. Le coefficient d'échange thermique local à la sortie du tube est d'autant plus important que le nombre de Reynolds est élevé (résultat classique). Le coefficient d'échange local varie de 1300 à 2700 W.m⁻².K⁻¹.

La Figure 9 montre la variation du coefficient d'échange thermique local pour différentes fractions solides et intensités pour un nombre de Reynolds de 2400. On observe que le coefficient d'échange augmente avec la concentration en particule d'hydrates de CO₂ et le flux de chaleur imposé. Pour une même intensité de 90A, une nette amélioration du coefficient d'échange par rapport à l'eau est observée avec un coulis de 13 %. Dans la zone établie, le coefficient d'échange est de 1778 W.m⁻².K⁻¹ pour l'eau contre 2148 W.m⁻².K⁻¹ pour le coulis, soit un facteur 1,20. Entre la fraction solide de 13 % et 18,81 %, le coefficient d'échange augmente d'un facteur de 1,35. Ces premiers résultats sur les coefficients d'échange thermique des coulis d'hydrates de CO₂ sont encourageants. La Figure 10 présente le nombre de Nusselt en fonction du nombre de Reynolds pour le coulis d'hydrates de CO₂. Les résultats expérimentaux sont supérieurs aux corrélations obtenues pour de l'eau aussi bien en régime laminaire qu'en turbulent. Ces résultats confirment l'intérêt d'utiliser les coulis d'hydrates de CO₂ comme fluide frigoporteur. Une étude approfondie au-delà de 18 % d'hydrates reste cependant nécessaire dans le cadre d'une application à base de coulis d'hydrate. On constate également sur la Figure 11 un changement de pente des courbes expérimentales qui peut traduire la transition du régime laminaire au régime turbulent.

4. Conclusion

Les hydrates de CO₂ présentent une chaleur latente de fusion élevée et peuvent être formés sous des conditions de températures positives adaptées aux applications de climatisation. Ils peuvent être générés par injection de CO₂ dans une solution aqueuse refroidie ce qui évite l'usage de procédés mécaniques souvent limités en puissance. La boucle de réfrigération développée est capable de générer et de faire circuler un coulis d'hydrates. L'étude thermique par la méthode du tube chauffant a permis d'étudier les coefficients d'échange locaux d'un coulis d'hydrates de CO₂ en écoulement. Ces résultats nouveaux, tout d'abord validés sur le système avec de l'eau, permettent de représenter l'évolution du coefficient d'échange le long du tube. On constate également une augmentation du coefficient d'échange par rapport à l'eau d'un facteur 1,2 avec un coulis à environ 13 % d'hydrates, et 1.6 pour un coulis à environ 19 % d'hydrates. Par ailleurs, une analyse de l'évolution du nombre de Nusselt en fonction du nombre de Reynolds a permis d'apporter des éléments nouveaux concernant les transitions de régime laminaire-turbulent pour les coulis d'hydrate de CO₂. Une future étude sur la restitution de chaleur du coulis d'hydrate CO₂ mettant en œuvre un échangeur à plaque et un récupérateur de gaz permettra de mettre en évidence le fonctionnement du système en continu.

Références

- [1] L. Fournaison, A. Delahaye, S. Jerbi and M. C. Martínez, Coulis d'hydrates de gaz pour la climatisation, *Revue générale du froid et du conditionnement d'air*, 1092(2009) 65-71.
- [2] A. Delahaye, L. Fournaison, S. Marinhas and M. C. Martínez, Rheological study of CO₂ hydrate slurry in a dynamic loop applied to secondary refrigeration, *Chemical Engineering Science*, 63(2008) 3551-3559.
- [3] M. C. Martínez, D. Dalmazzone, W. Furst, A. Delahaye and L. Fournaison, Thermodynamic properties of THF + CO₂ hydrates in relation with refrigeration applications, *AIChE Journal*, 54(2008) 1088-1095.
- [4] M. C. Martínez, S. Jerbi, A. Delahaye and L. Fournaison, Influence de surfactants dispersifs sur les coulis d'hydrates de CO₂, SFT, Vannes, 2009, 6 p.
- [5] S. Jerbi, A. Delahaye, L. Fournaison and P. Haberschill, Characterization of CO₂ Hydrate formation, IIR Phase Change Materials Conference, Karlsruhe, 2009, 200-209.
- [6] S. Jerbi, A. Delahaye, L. Fournaison and P. Haberschill, Characterization of CO₂ hydrate formation and dissociation kinetics in a flow loop, *International Journal of Refrigeration*, 33(2010) 1625-1631.
- [7] S. Jerbi, A. Delahaye, L. Fournaison and P. Haberschill, Design of a new circulation loop based on CO₂ hydrate kinetics, Sustainable Refrigeration and Heat Pump Technology, KTH, Stockholm, 2010.
- [8] C. Ionescu, P. Haberschill, I. Kiss and A. Lallemand, Local and global heat transfer coefficients of a stabilised ice slurry in laminar and transitional flows, *International Journal of Refrigeration*, 30(2007) 970-977.
- [9] S. Wenji, X. Rui, H. Chong, H. Shihui, D. Kaijun and F. Ziping, Experimental investigation on TBAB clathrate hydrate slurry flows in a horizontal tube: Forced convective heat transfer behaviors, *International Journal of Refrigeration*, 32(2009) 1801-1807.
- [10] M. Ducoulombier, Ebullition convective du dioxyde de carbone - étude expérimentale en micro-canal, Univ. of Insa Lyon, Ecole doctorale MEGA, 2010.

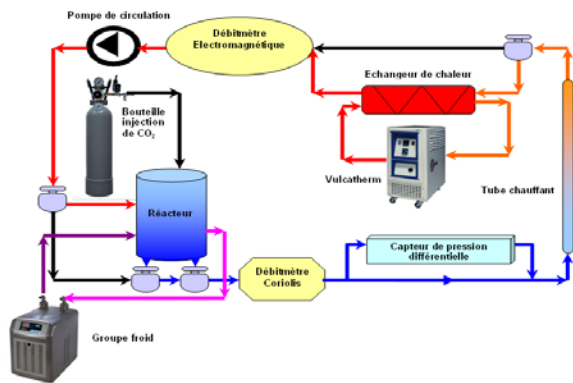


Figure 1 : Schéma simplifié de la nouvelle boucle pilote

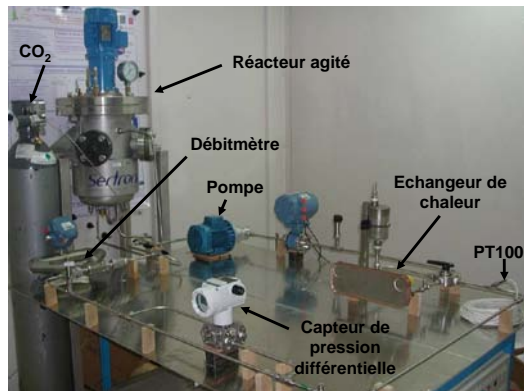


Figure 2 : Photographie de la nouvelle boucle pilote

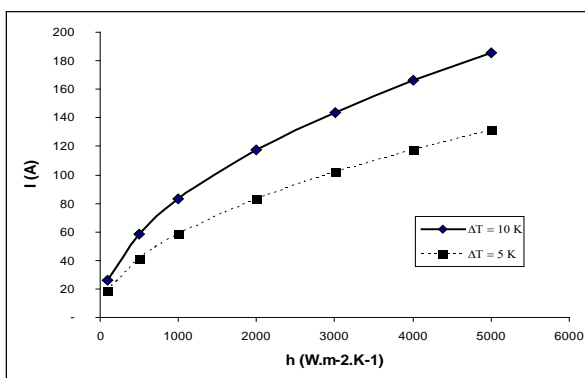


Figure 3: Intensité en fonction du coefficient d'échange thermique

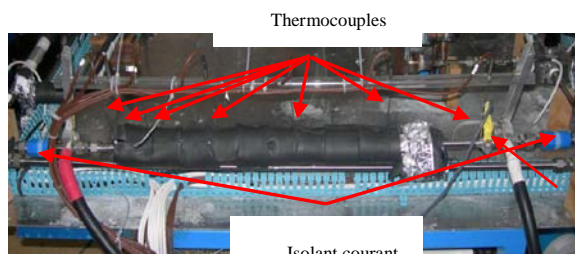


Figure 4 : Photographie Tube chauffant

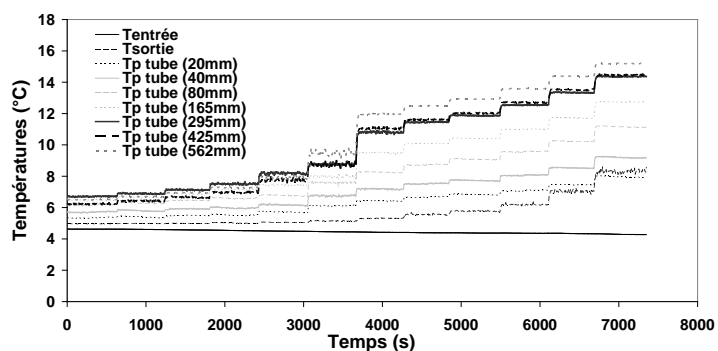


Figure 5 : Evolution de la température de la paroi au cours du temps pour différentes vitesses de circulation (de 20 à 160 l.h-1).

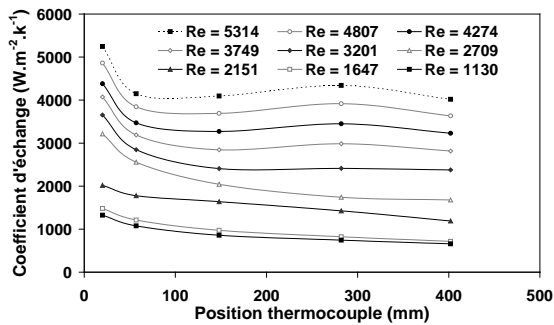


Figure 6: Coefficient d'échange local pour l'eau en fonction de la position des thermocouples le long du tube chauffant

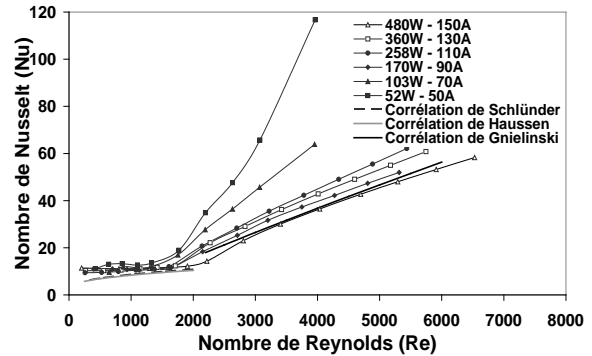


Figure 7: Nombre de Nusselt en fonction du Nombre de Reynolds pour différentes intensités pour l'eau et comparaison avec les corrélations de la littérature

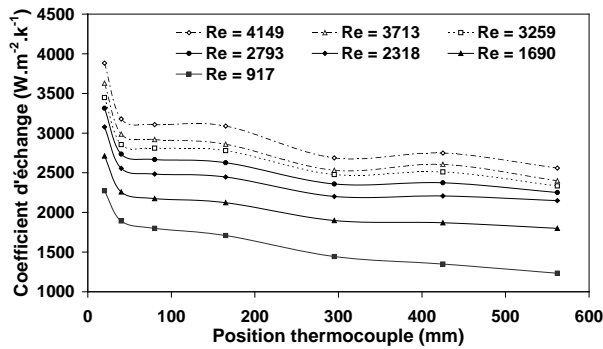


Figure 8 : Coefficient d'échange local pour un coulis d'hydrates de CO_2 de 12 %

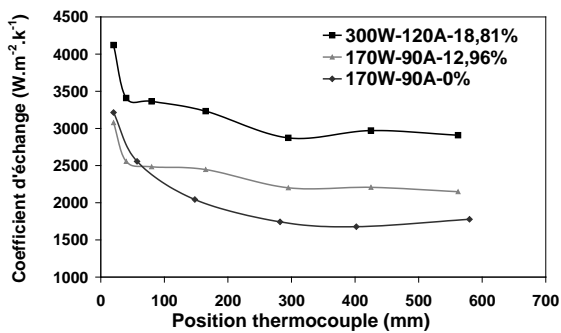


Figure 9 : Coefficient d'échange local pour différentes intensités et fractions solide d'un coulis d'hydrates de CO_2 pour un Reynolds moyen de 2400

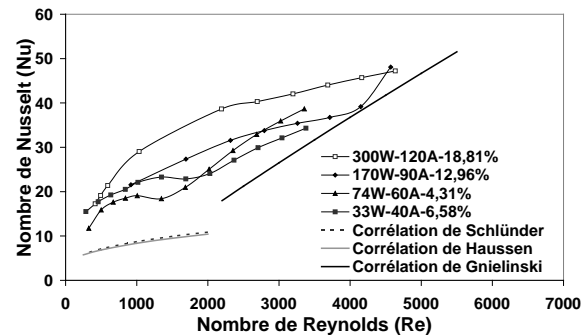


Figure 10 : Données expérimentales du nombre de Nusselt en fonction du Nombre de Reynolds pour différentes intensités et fractions d'hydrates et comparaison avec les modèles d'échange thermique

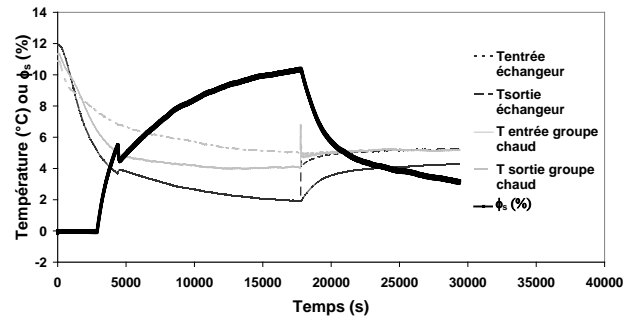


Figure 11 : Evolution des températures et pressions dans le système avec une température de consigne de la source chaude de l'échangeur de 5 °C