

Etude thermique d'une boucle de réfrigération secondaire par coulis d'hydrates

Jérémy OIGNET¹, Hong Minh HOANG¹, Anthony DELAHAYE¹, Laurence FOURNAISON¹, Philippe HABERSCHILL²

¹Irstea GPAN, 1 rue pierre Gilles de Gennes 92761 Antony cedex France

²Université de Lyon, INSA-Lyon, CETHIL UMR 5008 CNRS, Villeurbanne, 69621, France

Résumé – Les hydrates sont de fines particules solides capables de transporter de grandes quantités d'énergie lorsqu'ils sont mis en circulation sous forme de coulis. L'objectif de ce papier est de présenter les premiers résultats de thermique issus d'un montage expérimental constitué d'une boucle pilote et d'un tube chauffant. La méthode de mesure utilisée a d'abord été validée pour de l'eau et a permis de montrer que ces coulis d'hydrates possèdent des coefficients d'échange thermique élevés de l'ordre de $3000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ pour des fractions solides proches de 20 % en volume. Ces résultats montrent que leur utilisation dans les installations frigorifiques serait un atout majeur pour l'amélioration des performances énergétiques dans le domaine du froid.

Nomenclature

a	diffusivité thermique, $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$	<i>Symboles grecs</i>
D	diamètre, m	ΔT écart de température, K
h	coefficient d'échange, $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$	λ conductivité thermique, $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$
I	intensité, A	<i>Indices et exposants</i>
L	longueur, m	$alim$ alimentation électrique
Q	puissance, W	loc local
S	section, m^2	f fluide
U_m	vitesse moyenne du fluide, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	p paroi extérieure
		r rayon

1 Introduction

De nos jours, le respect et la protection de l'environnement sont un des principaux enjeux de société, de même que la diminution de la consommation énergétique des procédés technologiques. Dans le domaine du froid, pour la climatisation domestique et le stockage alimentaire, cette consommation représente plus de 15 % de la dépense électrique, que ce soit en France ou à l'échelle mondiale. De plus, il est souvent difficile de concilier efficacité énergétique et respect de l'environnement. Depuis plusieurs années les fluides frigorigènes font débat pour leur impact sur l'atmosphère. Certains détruisent la couche d'ozone et d'autres sont considérés comme gaz à effet de serre participant au réchauffement climatique. Depuis quelques années, en réfrigération secondaire, un nouveau type de fluide est étudié pour limiter l'usage des fluides frigorigènes : les coulis d'hydrates de CO_2 . Ce sont des mélanges diphasiques composés d'une phase solide, des particules à changement de phase en suspension dans une phase liquide servant de fluide de transport. Les hydrates se présentent sous la forme de structures cristallines comparables à de la glace possédant la capacité de piéger des molécules de gaz comme le CO_2 sous des pressions élevées de l'ordre de 2 MPa et à des températures positives [1-2]. Ils possèdent une forte densité énergétique pouvant aller jusqu'à 500 kJ/kg d'eau. En comparaison, la chaleur latente de fusion de la glace est de 333 kJ/kg . Ils permettent ainsi de combiner à la fois respect de l'environnement et performances énergétiques importantes. Les études réalisées à Irstea [3-4] au cours de ces dernières années sur le coulis d'hydrates de CO_2 ont permis de montrer son intérêt majeur en tant que fluide

frigoporteur dans le domaine de la réfrigération secondaire [5]. L'objectif du présent article est de caractériser les propriétés thermiques du coulis d'hydrates de manière à pouvoir évaluer la capacité du coulis à restituer la chaleur qu'il absorbe en déterminant son coefficient d'échange thermique. Ces études ont été réalisées sur un dispositif dynamique constitué d'un réacteur agité et d'une boucle de circulation sur laquelle a été installé un tube chauffant. Ce dispositif expérimental permet de former des coulis d'hydrates concentrés jusqu'à 22 % de fraction solide volumique et d'étudier les coefficients d'échange locaux via un tube chauffé par effet joule.

2 Matériel et méthodes

Afin de caractériser le coulis d'hydrates de CO₂, une boucle pilote [6-7], est mise en place. Cette boucle se divise en deux parties. La première comprend le réacteur qui a pour but de générer le coulis d'hydrates par un refroidissement global de l'enceinte. La seconde se compose de la boucle de circulation ainsi que du tube chauffant dont le but est respectivement de mettre en écoulement le coulis et de déterminer les coefficients d'échange locaux grâce à un échauffement de la paroi du tube.

2.1 Réacteur de formation

Le réacteur est en acier inoxydable d'un diamètre de 273 mm sur une hauteur de 495 mm et possède des parois d'une épaisseur de 5 mm. Il possède un volume de 26,4 l et une pression de fonctionnement limitée à 3.5 MPa. Il possède un orifice d'entrée et deux de sorties pour permettre l'écoulement du coulis dans la boucle. Deux hublots de visualisation à 90° permettent d'observer la formation des hydrates de CO₂, au niveau de l'interface eau-gaz. Une double enveloppe lui est associée pour permettre la circulation du fluide réfrigérant venant du groupe froid, nécessaire à la réfrigération du réacteur permettant la formation des hydrates. Le tout est recouvert d'une couche d'isolant de type Armaflex afin d'isoler thermiquement le système de l'environnement. Un système d'agitation est également présent pour permettre l'homogénéisation du coulis au sein du réacteur. De plus le réacteur est équipé de PT100, de capteurs de pression et d'un manomètre afficheur (0-4 MPa).

2.2 Boucle pilote

La boucle expérimentale (Figure 1) est constituée d'éléments tubulaires en acier inoxydable de diamètre intérieur de 7.74 mm et de diamètre extérieur de 9.52 mm. La connexion avec le réacteur se fait par un système de vannes trois voies, ce qui permet l'utilisation indépendante de la boucle ou du réacteur mais aussi de faire fonctionner les deux ensemble. 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 de fréquence. Le débit maximum (pour l'eau) est de 203 l.h⁻¹ ce qui correspond à une vitesse d'écoulement de 1,2 m.s⁻¹, soit un $Re_{max} \sim 7383$ à 10°C. Ainsi une étude en régime laminaire et turbulent peut être réalisée au sein de cette boucle. De plus, différents équipements sont associés à la boucle dans le but de réaliser plusieurs expérimentations. Ainsi, les coefficients d'échange peuvent y être déterminés à l'aide d'un tube chauffant et la présence d'un échangeur à plaques permet de caractériser l'énergie restituée lors de la dissociation des hydrates de CO₂. Enfin, l'ensemble du dispositif expérimental (boucle plus réacteur) est isolé thermiquement par de la mousse isolante de type Armaflex. Afin d'avoir un contrôle sur la température ambiante, le montage complet est placé dans une pièce thermostatée à 10°C.

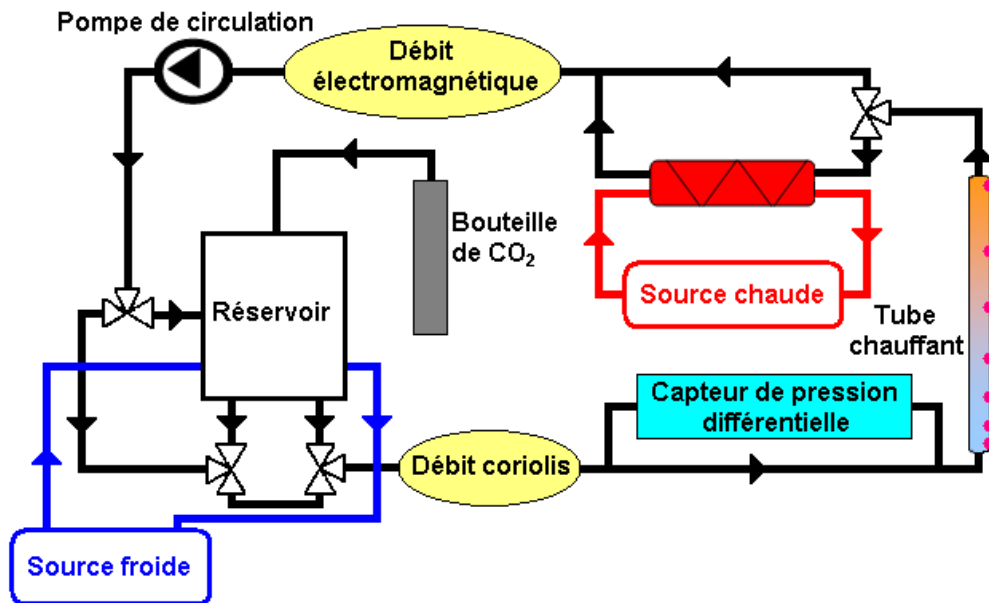


Figure 1 Schéma de la boucle

2.3 Tube chauffant

Il s'agit d'un dispositif inséré sur la boucle de circulation mesurant 620 mm de long et ayant pour but de mesurer les coefficients de transfert de chaleur locaux, ce qui permet d'avoir une approche plus fine des échanges thermiques. Ce dispositif (Figure 2) permet ainsi de caractériser les coefficients d'échange selon le type de régime d'écoulement (établi, en développement) afin de déterminer la zone d'établissement thermique. La méthodologie à mettre en œuvre pour déterminer les coefficients d'échange est celle décrite par Ionescu et al. [8] ou Wenji et al. [9]. Des travaux réalisés précédemment ont ainsi pu montrer qu'il est possible de déterminer les coefficients d'échange locaux et moyens sur un tube chauffé par effet Joule. Le principe consiste à faire passer un courant électrique sur la surface du tube de manière à chauffer les parois de ce dernier. Ce chauffage génère une différence de température entre le tube et le coulis d'hydrates qui est mesurée par sept thermocouples répartis sur toute la longueur du tube chauffant.

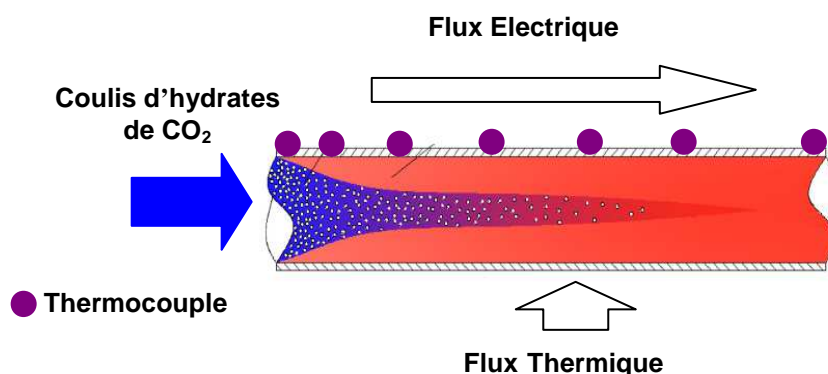


Figure 2 Schéma du tube chauffant

2.4 Détermination des coefficients d'échange

Les coefficients d'échange thermique locaux sont déterminés expérimentalement à partir du flux de chaleur imposé à la paroi $\dot{Q}_{a\lim}$, par l'alimentation électrique, de la différence entre la température de paroi T_p mesurée par chacun des sept thermocouples et la température du fluide T_f mesurée par le deux PT100 aux extrémités du tube.

$$h_{loc} = \frac{\dot{Q}_{a\lim}}{2\pi r L(T_p - T_f - \Delta T_p)} \quad (1)$$

$$\Delta T_p = \left[\frac{\dot{Q}_{a\lim}}{4\pi \lambda_{inox} L} \right] \left[\frac{\xi(1 - \ln \xi) - 1}{1 - \xi} \right] \quad (2)$$

$$\xi = (D_{ext}/D_{int})^2 \quad (3)$$

Dans les équations ci-dessus, r , représente le rayon du tube, L , sa longueur totale et ΔT_p , la différence de température au travers de la paroi. Elle est calculée en intégrant l'équation locale de la conduction de la chaleur en supposant une source volumique de chaleur uniformément répartie [10]. ξ représente le rapport au carré du diamètre extérieur sur le diamètre intérieur du tube. Ainsi, le coefficient d'échange global est calculé à partir de la moyenne des coefficients d'échange locaux qui ne sont plus dépendants de leur position sur le tube chauffant (une fois que l'équilibre thermique est atteint).

2.5 Méthode numérique

Afin de mettre en perspective les coefficients d'échange mesurés à partir des résultats expérimentaux (équations 1 à 3), les nombres de Nusselt correspondants ont été calculés (équation 4) puis comparés à ceux obtenus par le modèle de Degiovanni [11]. Cette méthode, à la base définie pour des fluides monophasiques permet, à l'aide d'une transformée de Laplace, de déterminer l'impédance globale du système et ainsi de transformer les coefficients d'échange thermique en une somme de produits de convolution où le Nusselt modélisé est calculé par une transformée de Laplace inverse (équation 5). L'un des objectifs est de vérifier si cette méthode pourrait être adéquate pour modéliser les fluides diphasiques.

$$Nu_{exp} = \frac{hL}{\lambda} \quad (4)$$

$$Nu_{mod}(x^*) = \frac{2}{\frac{11}{24} - \sum_{i=1}^{\infty} \frac{B_i}{\gamma_i} \exp(-\gamma_i x^*)} \quad (5)$$

$$x^* = \frac{x}{k^2} \quad (6)$$

$$k^2 = \frac{2U_m r^2}{a} \quad (7)$$

Ce modèle se base sur deux principales hypothèses. L'écoulement doit être établi dans la section du tube chauffé et un flux de chaleur uniforme doit être imposé à la paroi. Ces deux

hypothèses sont satisfaites dans notre étude. Les coefficients B et γ , sont des valeurs définies par le modèle permettant de représenter chacun de ses ordres. Lors de cette étude les calculs sont conduits jusqu'au troisième ordre.

3 Résultats et discussions

Dans cette partie, les premiers résultats de l'étude thermique concernant les coefficients d'échange des coulis d'hydrates sont présentés et interprétés. Dans un premier temps, la méthode du tube chauffant est détaillée en ce qui concerne les mesures locales des températures à la paroi. Dans un second temps, les mesures de coefficients d'échange sont présentées avec une validation de la méthode pour de l'eau puis pour des coulis d'hydrates. Enfin les résultats sont comparés avec les données du modèle numérique.

3.1 Mesures des températures sur les parois du tube chauffant

La mesure des températures sur les parois du tube chauffant s'effectue par sept thermocouples soudés sur sa surface comme décrit précédemment. L'évolution des températures de paroi entre l'entrée et la sortie du tube est représentée sur la Figure 3 ci-dessous pour un coulis à 3 % vol en fonction du temps pour différentes vitesses d'écoulement. Il est tout d'abord possible d'observer une augmentation de la température de paroi au cours du temps allant de 5°C à l'entrée du tube jusqu'à 15°C en sortie, ce qui signifie qu'un flux de chaleur est présent et qu'un échange thermique s'effectue entre le fluide et le tube. Une bonne stabilité des paliers de température est également observable pour des variations de puissance de la pompe de circulation par palier de 10 %. Le traitement de données issues des variations de températures et des débits permet d'évaluer les coefficients d'échange thermique des coulis d'hydrates de CO_2 .

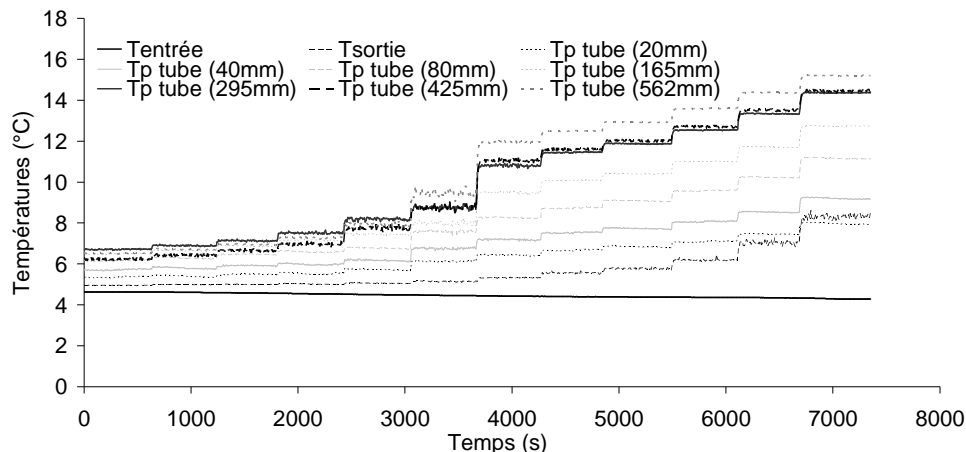


Figure 3 Evolution de la température de paroi au cours du temps pour différents débits

3.2 Validation du modèle pour de l'eau

Avant d'étudier les coulis d'hydrates, une validation du modèle sur la boucle expérimentale a d'abord été effectuée pour de l'eau afin de vérifier si les coefficients d'échange obtenus correspondent bien à ceux trouvés dans la littérature. La Figure 4 ci-dessous montre l'évolution des coefficients d'échange en fonction de la position des thermocouples pour différentes vitesses d'écoulement.

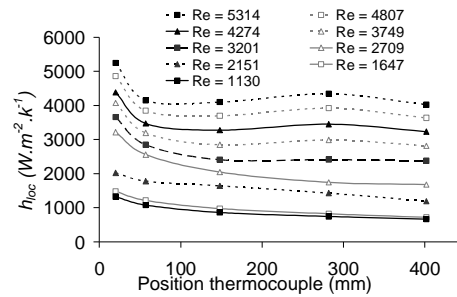


Figure 4 Coefficient d'échange pour l'eau en fonction de la position des thermocouples

La principale observation vient de la diminution du coefficient d'échange local à l'entrée du tube entre le premier et le second thermocouple et ce pour n'importe quelle vitesse et régime d'écoulement, turbulent ou laminaire. Puis, s'en suit une zone de valeurs quasi-constantes sur tout le reste du tube. Cette décroissance témoigne d'une zone d'établissement hydraulique relativement courte. De plus, en accord avec la littérature [8], les valeurs de coefficients d'échange obtenues expérimentalement sont comprises entre 1000 et 4500 $\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$. Ces résultats permettent ainsi de valider le modèle pour de l'eau.

3.3 Coefficients d'échange pour les coulis d'hydrates de CO_2

Afin de réaliser l'étude expérimentale sur les coulis d'hydrates, l'intensité électrique permettant de chauffer le tube est fixée à 120 A, de manière à ce que les coefficients d'échange ne dépendent pas du flux de chaleur imposé, ce qui est une condition généralement respectée pour ce genre de caractérisation thermique. La température du coulis est de l'ordre de 2°C et les paliers débits au nombre de dix sont maintenus pendant 2 minutes afin d'éviter un éventuel échauffement du coulis et induire une dissociation des hydrates. La température à l'entrée du tube varie alors de moins d'un degré sur la durée totale de l'expérimentation ce qui peut être considéré comme étant un régime établi. On considère donc que les hydrates ne se dissocient quasiment pas dans le tube. La Figure 5 ci-dessous montre l'évolution du coefficient d'échange en fonction de la position des thermocouples pour différents nombres de Reynolds pour un coulis d'hydrates à 12 %.

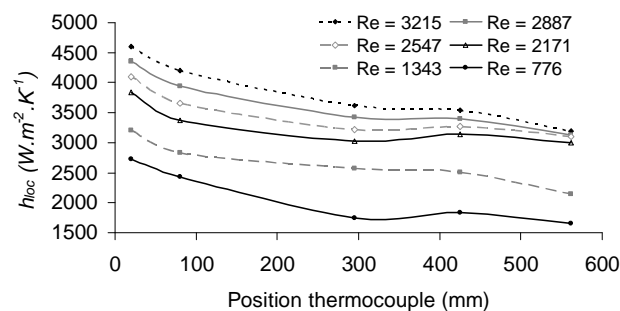


Figure 5 Coefficients pour un coulis à 12% en fonction de la position des thermocouples

De manière identique à l'étude réalisée pour le fluide monophasique, une décroissance est observée à l'entrée du tube chauffant entre le premier et le deuxième thermocouple. Elle est due à l'établissement hydraulique du coulis. Il est également observable que le coefficient d'échange local en sortie de tube augmente avec le nombre de Reynolds, ce qui est un résultat classique. Le coefficient d'échange varie de 1500 à 3200 $\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$.

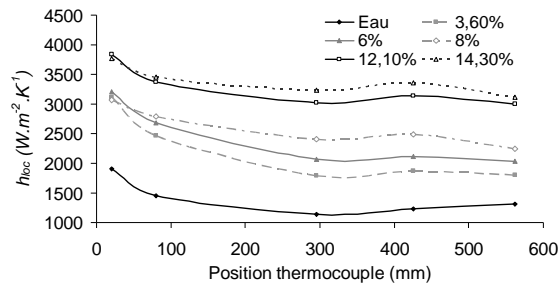


Figure 6 Coefficients d'échange pour différentes fractions solide de coulis d'hydrates

La Figure 6 montre l'évolution des coefficients d'échange locaux en fonction de la position des thermocouples pour différentes fractions solides d'hydrates et un nombre de Reynolds égal à 2000. Cette grandeur calculée de manière classique en prenant en compte la viscosité du coulis est maintenue constante par imposition du débit de l'écoulement grâce à la pompe. Le coefficient d'échange augmente avec la concentration en particules d'hydrates. Une nette amélioration du coefficient d'échange est constatable entre l'eau et un coulis à 3,6 %. En sortie de tube, le coefficient passe de $1313 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ pour l'eau à $1800 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ pour le coulis (à 3,6 %), soit un facteur 1,37. Avec un coulis à 14,3 %, l'augmentation du coefficient est encore plus importante et atteint une valeur supérieure à $3000 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$, soit un facteur 2,3 entre le fluide monophasique et le coulis. Ces résultats montrent l'intérêt des fluides diphasiques et en particulier des coulis d'hydrates de CO_2 en tant que fluide frigoporteur dans le domaine de la réfrigération. Cependant des études plus approfondies avec des coulis d'hydrates à fraction solide plus élevée restent encore à faire pour envisager des applications à base de coulis.

3.4 Comparaison avec le modèle numérique

Les données de coefficients d'échange pour de l'eau et un coulis à 18 % ont été comparées avec le modèle numérique décrit précédemment. Les résultats sont visibles sur la Figure 7.

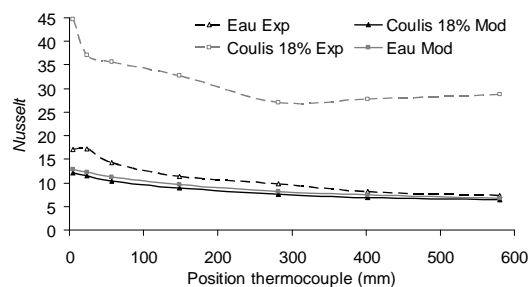


Figure 7 Comparaison entre les données expérimentales et le modèle numérique

La Figure 7 montre l'évolution du nombre de Nusselt en fonction de la température le long du tube chauffant (données issues du modèle numérique et résultats expérimentaux). Concernant le fluide monophasique, le modèle est en bon accord avec les résultats expérimentaux. En revanche, pour le fluide diphasique, une grande différence d'évolution des nombres de Nusselt est notée entre le modèle et les données expérimentales. Les coefficients d'échange obtenus expérimentalement sont en effet beaucoup plus sensibles aux variations de fraction solide que dans le cas du modèle de Degiovanni [11]. Ce modèle peut même être considéré comme indépendant de la fraction d'hydrates sur le domaine étudié. Ainsi, cette comparaison a permis de vérifier que le modèle de Degiovanni [11] tel que décrit précédemment n'était pas adapté pour des systèmes diphasiques. Ce travail ouvre néanmoins de nouvelles perspectives afin de prendre en compte la dépendance en fraction solide du système.

4 Conclusion

De par leur chaleur latente de fusion élevée, les coulis d'hydrates sont de bons candidats en tant que fluide frigoporteur. Ils sont facilement produits à températures positives au sein d'une phase aqueuse. Le dispositif expérimental étudié dans le cadre de cette étude, composé d'une boucle pilote et d'un réacteur de formation, permet de générer et de faire circuler des coulis jusqu'à 20 % en fraction solide. L'étude thermique réalisée par la méthode du tube chauffant, d'abord validée pour l'eau, a permis de caractériser les coefficients d'échange locaux des coulis d'hydrates de CO₂ en écoulement. Ces résultats permettent de représenter l'évolution du coefficient d'échange le long du tube avec une augmentation par rapport au cas de l'eau allant jusqu'à un facteur 2,3 pour un coulis à 14 % d'hydrates. Ces premiers résultats montrent que le coulis d'hydrates de CO₂ possède des propriétés intéressantes en tant que fluide frigoporteur. Des essais à plus haute fractions doivent encore être réalisés. De plus, les résultats expérimentaux ont été comparés avec ceux obtenus par le modèle de Degiovanni [11]. Un accord entre modèle et expérience a été obtenu avec l'eau seule, ce qui montre la pertinence du modèle vis-à-vis du système étudié. Néanmoins, il a été vérifié que le modèle n'était pas adapté pour prédire les résultats en présence d'hydrates. Une perspective de travail consisterait donc à élargir l'approche afin de pouvoir intégrer les fluides diphasiques. Il est également envisagé d'intégrer les données précédemment publiées sur les pertes de charges et la rhéologie [7] aux données de coefficients d'échange thermique des coulis.

Références

- [1] W. L. Mao, C. A. Koh et E. D. Sloan, Clathrate hydrates under pressure, *Physics Today*, 60 (2007), 42-47.
- [2] C. A. Koh, A. K. Sum et E. D. Sloan, State of the art: Natural gas hydrates as a natural resource, *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 8 (2012), 132-138.
- [3] L. Fournaison, A. Delahaye, S. Jerbi et M. C. Martínez, Coulis d'hydrates de gaz pour la climatisation, *Revue générale du froid et du conditionnement d'air*, 1092 (2009), 65-71.
- [4] A. Delahaye, L. Fournaison, S. Jerbi et N. Mayoufi, Rheological Properties of CO₂ Hydrate Slurry Flow in the Presence of Additives, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 50 (2011), 8344-8353.
- [5] A. Delahaye, L. Fournaison, S. Marinha et M. C. Martinez, Rheological study of CO₂ hydrate slurry in a dynamic loop applied to secondary refrigeration, *Chemical Engineering Science*, 63 (2008), 3551-3559.
- [6] S. Jerbi, A. Delahaye, L. Fournaison et 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, J. Oignet, L. Fournaison et P. Haberschill, Rheological properties of CO₂ hydrate slurry produced in a stirred tank reactor and a secondary refrigeration loop, *International Journal of Refrigeration*, 36 (2013), 1294-1301.
- [8] C. Ionescu, P. Haberschill, I. Kiss et 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 et 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. PhD, (2010), Insa Lyon, Ecole doctorale MEGA.
- [11] Degiovanni.A et Remy.B, Comment représenter globalement les transferts thermiques entre un fluide et un mur dans le cas non-isotherme, LEMTA - UMR 7563 Université de Lorraine.