

OPTIMISATION DU TEMPS DE CHARGEMENT DE L'HYDROGENE DANS UN RESERVOIR A HYDRURE METALLIQUE

F. Askri*, M. Ben Salah, A. Jemni, S. Ben Nasrallah

Laboratoire d'Etudes des Systèmes Thermiques et Energétiques, Ecole Nationale
d'Ingénieurs de Monastir, Avenue Ibn Eljazzar 5019 Monastir, Tunisie

faouzi.askri@enim.rnu.tn

RESUME

Le temps de stockage de l'hydrogène dans un réservoir à hydrure métallique dépend fortement du transfert de chaleur au sein du milieu réactionnel. Dans le présent travail un modèle mathématique et un code de simulation numérique ont été développés et validés avec succès par comparaison avec des résultats expérimentaux. L'outil numérique est utilisé, ensuite, pour évaluer l'impact de l'inertie thermique des parois du réservoir sur le processus de stockage. Des parois en acier et en cuivre sont testées et les résultats obtenus montrent qu'il n'y a aucun effet important sur le temps de chargement du réservoir. De plus, l'étude des transferts thermiques dans plusieurs configurations de réservoirs métal-hydrogène a été effectuée i) un réservoir cylindrique (configuration de base), ii) un réservoir cylindrique avec des ailettes externes, iii) un réservoir cylindrique avec un tube concentrique rempli de fluide de refroidissement et iv) un réservoir cylindrique avec un tube concentrique équipé avec des ailettes. Les résultats des simulations ont montré qu'une réduction de 80% du temps de chargement peut être obtenu avec le quatrième réservoir comparé à la configuration de base.

NOMENCLATURE

Cp	Chaleur spécifique	(J kg ⁻¹ K ⁻¹)	λ	Conductivité thermique	(W m ⁻¹ k ⁻¹)
E	Energie d'activation	(J mole ⁻¹)	ε	Porosité	
R	Rayon du réservoir	(m)	Indices		
T	Température	(K)	e	effective	
t	Temps	(s)	e _q	Equilibre	
P	Pression	(Pa)	g	Gaz	
Symboles			h	hydrure	
ΔH	Enthalpie de formation	(J kg ⁻¹)	hs	Saturation	

1. INTRODUCTION

Pour faire face d'une part au double défi de réduire les rejets en polluants et leurs émissions de gaz à effet de serre, et d'autre part à la forte croissance de la demande en énergie, de vastes programmes de recherche ont été lancés afin d'utiliser l'hydrogène comme un vecteur énergétique permettant de bien exploiter les sources d'énergies renouvelables. Si l'hydrogène devait s'imposer à terme, comme vecteur énergétique, quatre défis restent à relever pour les chercheurs et les ingénieurs : comment le produire, le distribuer, le stocker et l'utiliser.

Durant les dernières années il y a eu un intérêt croissant dans l'utilisation des hydrures métalliques pour le stockage de l'hydrogène. Cette technique permet d'avoir une densité volumétrique élevée et une meilleure sécurité comparée aux méthodes conventionnelles. Plusieurs études numériques et expérimentales [1-10] des transferts de chaleur et de masse ont été effectuées afin de maîtriser les processus de chargement et de déchargement des réservoirs d'hydrogène à hydrures métalliques (RHHM_s) et d'avoir des systèmes bien optimisés.

Tous ces travaux ont confirmé l'importance des transferts de chaleur comme un paramètre qui contrôle le temps de chargement et de déchargement de ces RHHM_s. Ce résultat a poussé plusieurs chercheurs pour développer des méthodes permettant d'améliorer le taux de transfert de chaleur dans le lit d'hydrure. Parmi les méthodes proposées on peut citer, l'intégration des fils de cuivre [12], l'insertion de mousse de nickel ou d'aluminium [11], l'utilisation des poudres compactées d'hydrure avec du graphite [13], l'intégration de différents échangeurs de chaleur [14-16].

Dans la présente étude un modèle mathématique et un code de simulation numérique du processus de chargement d'un RHHM ont été développés et validés avec succès par comparaison avec des résultats expérimentaux. L'outil numérique est utilisé, ensuite, pour évaluer l'impact de l'inertie thermique des parois du réservoir sur le processus de chargement. Des parois en acier et en cuivre sont testées. De plus, l'étude des transferts thermiques dans plusieurs configurations de RHHMs a été effectuée.

2. MODELE MATHEMATIQUE

Les différents RHHMs examinés dans le présent travail sont présentés dans la figure 1. L'hydrure utilisée a les propriétés du LaNi5-H2. Pour la poudre d'hydrure, Les équations macroscopiques régissant les transferts de chaleur et de masse sont obtenues en faisant la moyenne sur un volume élémentaire représentatif des équations microscopiques. En tenant compte de la symétrie de révolution des quatre configurations (Fig. 1) et en considérant les hypothèses suivantes :

- Les deux phases, fluide et solide, sont en équilibre thermique local,
- Le gaz est supposé parfait de point vue thermodynamique,
- Les paramètres thermo - physiques sont constants,
- Le transfert radiatif est négligeable,

les équations décrivant les transferts de chaleur et de masse peuvent s'écrire sous la forme suivante:

$$\frac{\partial}{\partial t} (f_{\Phi} \Phi) = \Gamma_{\Phi} \left[\frac{\partial^2 \Phi}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \Phi}{\partial r} \right) \right] + S_{\Phi} \quad (1)$$

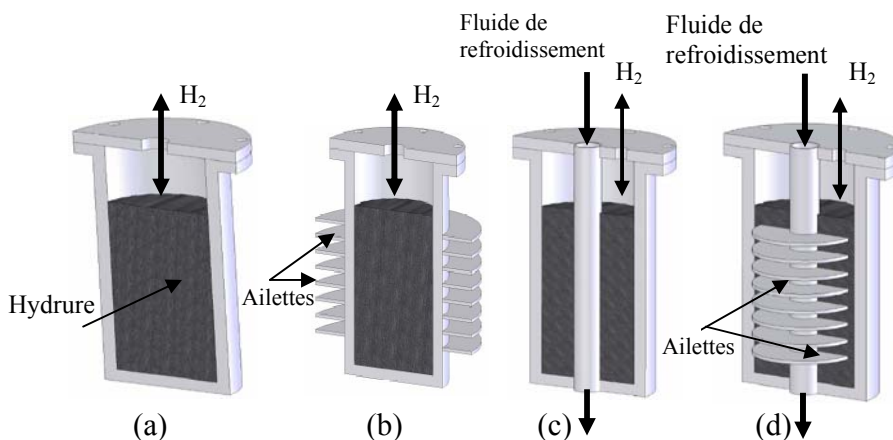


Figure1. Les différentes configurations considérées dans les

Les expressions des différents termes utilisés dans l'Eq.1 sont données dans le tableau 1.

Tableau 1. Expressions des différents termes de l'Eq.1.

Equations	Φ	f_Φ	Γ_Φ	S_Φ
Continuité pour le gaz	1	$\varepsilon \rho_g$	0	$-m$
Continuité pour l'hydrure	1	$(1-\varepsilon)\rho_h$	0	m
Energie Pour l'hydrure	T	$\varepsilon \rho_g c_{pg} + (1-\varepsilon)\rho_h c_{ph}$	$\varepsilon \lambda_g + (1-\varepsilon)\lambda_h$	$mT(c_{pg} - c_{ph}) + m\Delta H$
Energie Pour les parois et les ailettes	T	$\rho_f c_{pf}$	λ_f	0

La masse d'hydrogène absorbée par unité de temps et par unité de volume est donnée par [5]:

$$m = C_a \exp\left(-\frac{E_a}{R_g T}\right) \text{Ln}\left(\frac{P}{P_{eq}}\right) (\rho_{hs} - \rho_h) \quad (2)$$

où ρ_{hs} est la masse volumique de l'hydrure à la saturation, E_a est l'énergie d'activation d'absorption, C_a est une constante et P_{eq} est la pression d'équilibre.

La pression d'équilibre P_{eq} est donnée par:

$$P_{eq} = f\left(\frac{H}{M}\right) \exp\left(\frac{\Delta H}{R_g} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}}\right)\right) \quad (3)$$

Où la fonction $f\left(\frac{H}{M}\right)$ représente la pression d'équilibre à la température de référence T_{ref} .

Conditions initiales et aux limites

Initialement, la température et la masse volumique de l'hydrure sont supposées uniformes :

$$T = T_0, \rho_h = \rho_0 \quad (4)$$

- Pour les configurations 1 et 2 (Fig.1a et Fig. 1b), la symétrie de révolution permet d'écrire :

$$\frac{\partial T}{\partial r}(z,0,t) = 0 \quad (5)$$

- Pour la surface latérale du réservoir, la surface latérale du tube axial et la surface des ailettes, la condition d'échange convectif peut s'écrire sous la forme:

$$-\lambda \overrightarrow{\text{grad}}(T) \cdot \vec{n} = h(T - T_f) \quad (6)$$

Dans le cas où l'inertie thermique des parois du réservoir est pris en considération, h représente le coefficient d'échange convectif entre l'extérieur du réservoir et le fluide de refroidissement. Dans le cas contraire, h représente un coefficient d'échange global entre la poudre d'hydrure et le milieu environnant.

Pour simuler numériquement les différentes configurations, la méthode de volumes de contrôle à base d'éléments finis (MVCEF) non structurée est utilisée [9].

3. RESULTATS

Afin de valider le modèle établi, les résultats numériques sont comparés avec ceux expérimentaux [4] et un accord satisfaisant est obtenu (Fig.2).

Pour étudier l'effet de l'inertie thermique des parois, la configuration 1 (Fig.1a) est considérée. Des parois en acier et en cuivre sont testées et les résultats trouvés par les deux modèles (avec et sans inertie thermique des parois) sont montrés dans les figures 3 et 4. Une faible différence entre les profils des températures donnés par les deux modèles est observée, et essentiellement près des parois (Fig.3) mais il n'y a aucun écart notable pour le temps de chargement du réservoir (Fig.4).

Malgré la grande conductivité du cuivre comparé à celle de l'acier, le temps de chargement du réservoir est presque le même pour les deux métaux. Ce résultat peut être expliqué par le fait que les transferts thermiques sont contrôlés par la faible conductivité de la poudre d'hydrure.

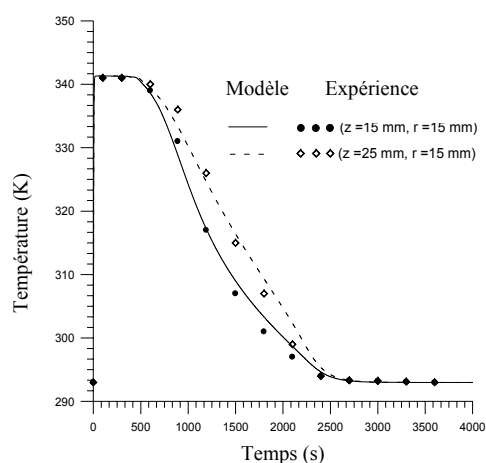


Figure 2. Comparaison entre la température calculée et mesurée.

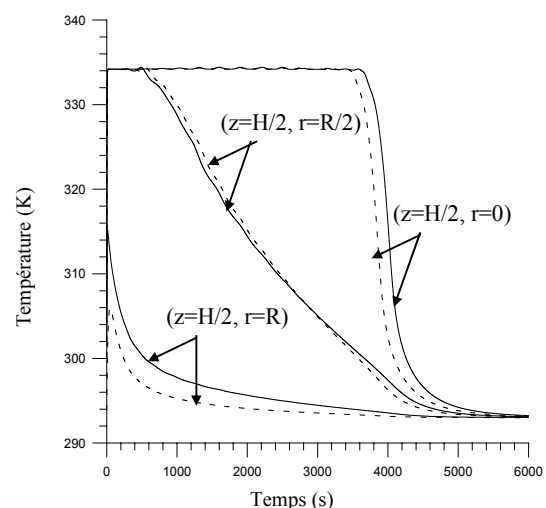


Figure 3. Effet de l'inertie thermique des parois sur la température- - - - modèle avec inertie thermique, ——— modèle sans inertie thermique.

Pour comparer les quatre RHHMs (Fig.1), la masse d'hydrure est maintenue constant. Les résultats représentés sur la figure 5 montrent que le temps nécessaire pour charger 90% de la capacité totale est

de 2050s, 980s et 460s pour les configurations 2, 3 et 4, respectivement, représentant une réduction de 10%, 56% et 80% comparé à la configuration de base (Fig. 1a). Cette réduction montre que l'intégration des ailettes à l'intérieur de la poudre d'hydru de accélère considérablement le processus de chargement du réservoir.

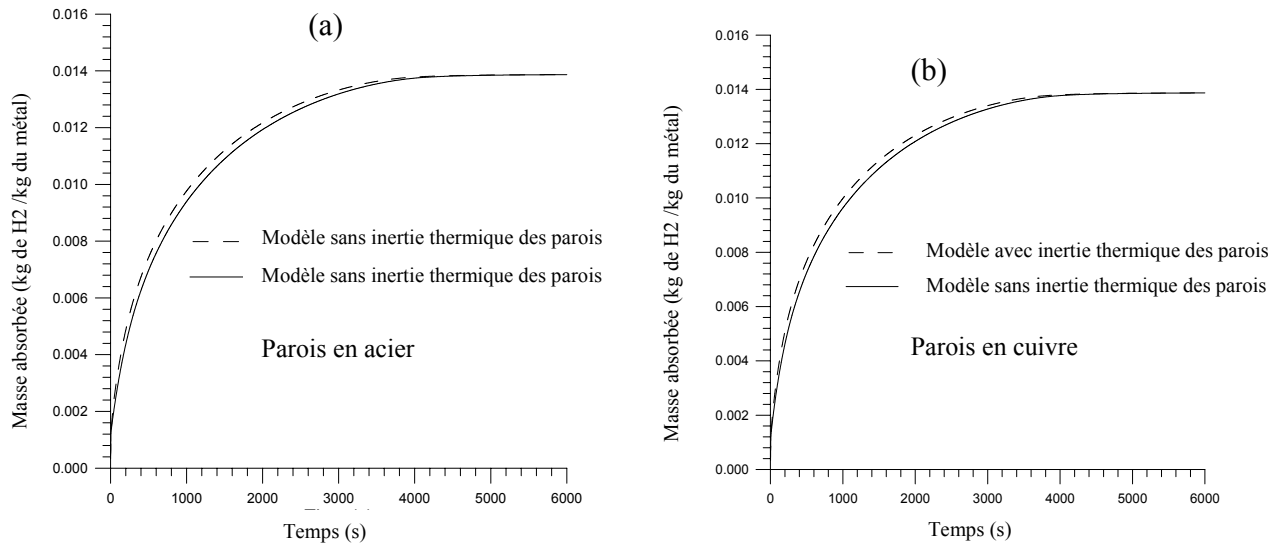


Figure 4. Effet de l'inertie thermique des parois sur la masse absorbée.

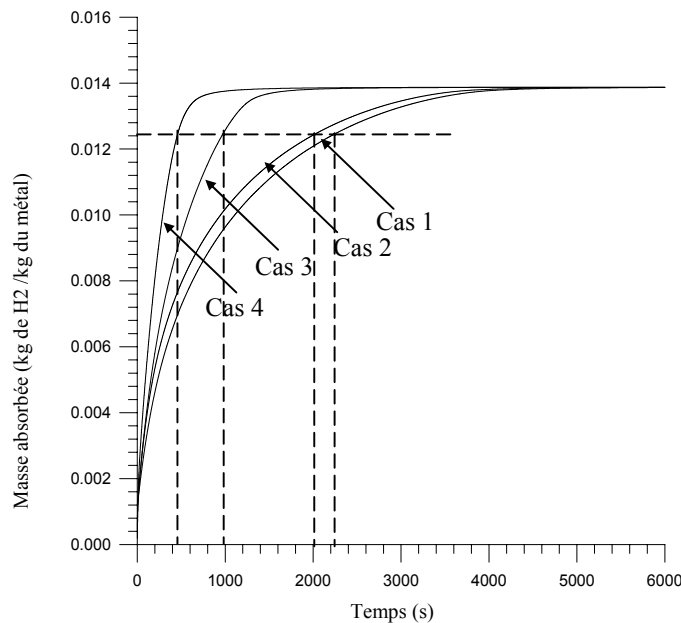


Figure 5. Comparaison entre les quatre configurations.

4. CONCLUSION

Dans le présent travail, un modèle bidimensionnel décrivant le processus de chargement d'un réservoir d'hydrogène à hydru de métallique est présenté. Basé sur ce modèle et un maillage non structuré, un code de simulation numérique du comportement dynamique du réservoir a été développé. La validité

du modèle numérique a été testée par comparaison avec des résultats expérimentaux et un bon accord est obtenu. Dans une seconde étape, le modèle est utilisé pour évaluer l'effet de l'inertie thermique des parois du réservoir sur le temps de chargement. Des parois en cuivre en cuire et en acier sont considérées et les résultats obtenus ont montré que l'inertie thermique des parois peut être négligée et les transferts de chaleur entre la poudre d'hydrure et le fluide de refroidissement peut être modélisés par un coefficient d'échange global. De plus, une étude numérique de plusieurs configurations de réservoirs métal- hydrogène est effectuée et les résultats des simulations ont montré qu'une réduction de 80% du temps de chargement peut être obtenu en intégrant des ailettes dans la poudre d'hydrure.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

1. A. Jemni, S. Ben Nasrallah, 1995, Study of two dimensional heat and mass transfer during absorption in a metal hydrogen reactor, *Int. J. hydrogen Energy*, vol. 20, n°1, pp. 43-52.
2. A. Jemni, S. Ben Nasrallah, 1995, Study of two dimensional heat and mass transfer during desorption in a metal hydrogen reactor, *Int. J. hydrogen Energy*, vol. 20, n°11, pp. 43-52.
3. S. Ben Nasrallah, A. Jemni, 1997, Heat and mass transfer models in a metal-hydrogen reactor, *Int. J. hydrogen Energy*, vol. 22, n°1, pp. 67-76.
4. A. Jemni, S. Ben Nasrallah, 1999, Lamloumi J. Experimental and theoretical study of metal-hydrogen reactor, *Int. J. hydrogen Energy*, vol. 24, pp. 631-644.
5. MD. Mat, Y. Kaplan, 2001, Numerical study of hydrogen absorption in an Lm - Ni₅ hydride reactor, *Int. J. hydrogen Energy*, vol. 26, pp. 957-963.
6. K. Aldas, MD. Mat, Y. Kaplan, 2002, A three-dimensional mathematical model for absorption in a metal hydride bed, *Int. J. hydrogen Energy*, vol. 27, n° 10, pp. 1063-1069.
7. Y. Kaplan, TN. Veziroglu, 2003, Mathematical modeling of hydrogen storage in LaNi₅ hydride bed, *Int. Journal of Hydrogen Energy*, vol. 27, pp. 1027-1038.
8. F. Askri, A. Jemni, S. Ben Nasrallah, 2004, Prediction of transient heat and mass transfer in a closed metal-hydrogen reactor, *Int. Journal of Hydrogen Energy*, vol. 29, n° 2, pp. 195-208.
9. F. Askri, A. Jemni, S. Ben Nasrallah, 2004, Dynamic behavior of metal-hydrogen reactor during hydriding process, *Int. Journal of Hydrogen Energy*, vol. 29, n° 6, pp. 635-647.
10. GM. Lloyd, A. Razani, KJ. Kim, 2003, Formulation and numerical solution of non-local thermal equilibrium equations for multiple gas/solid porous metal hydride reactors, *Journal of Heat Transfer*, vol. 123, pp. 520-526.
11. Nagel M, Komazaki Y, Suda S. Effective thermal conductivity of a metal hydride bed augmented with a copper wire matrix. *Journal Less-Common Metals*. 1986. vol. 120, pp. 35-43.
12. S. Lévesque, M. Ciureanu, R. Roberge, T. Motyka, 2000, Hydrogen storage for fuel cell systems with stationary applications—I. Transient measurement technique for packed bed evaluation, *Int. Journal of Hydrogen Energy*, vol 25, pp. 1095-1105.
13. HP. Klein, M. Groll, 2004, Heat transfer characteristics of expanded graphite matrices in metal hydride beds, *Int. Journal of Hydrogen*, vol. 29, pp. 1503-1511.
14. A. Demircan, M. Demiralp, Y. Kaplan, MD. Mat, TN. Veziroglu, 2005, Experimental and theoretical analysis of hydrogen absorption in LaNi₅-H₂ reactors, *Int. Journal of Hydrogen Energy*, vol. 30, pp. 1437 - 1446.
15. BD. MacDonald, AM. Rowe, 2006, Impacts of external heat transfer enhancements on metal hydride storage tanks, *Int. Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 31, pp. 1721 - 1731
16. S. Mellouli, F. Askri, H. Dhaou, A. Jemni, S. Ben Nasrallah, 2007, A novel design of a heat exchanger for a metal-hydrogen-reactor, *Int. Journal of Hydrogen Energy*, vol. 32, pp. 3501-3507.