

Etude de faisabilité de la liquéfaction du gaz naturel via la réfrigération magnétique

M. Belkadi ^{1*} et A. Smaili ^{2,†}

¹ UFR Gaz, Raffinage et Pétrochimie, IAP / Sonatrach
Boumerdes, Algeria

² Laboratoire de Génie Mécanique et Développement
Ecole Nationale Polytechnique, B.P. 182, El-Harrach, Algiers 16200, Algeria

(reçu le 20 Décembre 2014 – accepté le 29 Juin 2015)

Résumé - Le présent travail porte sur l'étude de faisabilité d'appliquer la technique de réfrigération magnétique (RM) à la liquéfaction du gaz naturel (c'est-à-dire, liquéfacteur magnétique). Il s'agit de modéliser le phénomène de la réfrigération magnétique, de proposer un prototype de liquéfacteur magnétique et d'évaluer les performances du système. Un tel dispositif consiste essentiellement en un régénérateur magnétique, un fluide caloporteur et une source de champ magnétique. La première partie du travail portait sur la modélisation du phénomène de RM à travers l'étude d'un cycle thermomagnétique en considérant les équations d'énergie gouvernant les échanges de chaleur entre le fluide et le solide dans le régénérateur magnétique. La deuxième partie a été consacrée à l'analyse de performance et au dimensionnement du liquéfacteur magnétique. A cet effet, à l'aide du logiciel de simulation Hysys, de nombreuses configurations du liquéfacteur magnétique ont été proposées et étudiées, et ce, afin de déterminer les configurations optimales susceptibles de produire d'appréciables quantités de gaz naturel liquéfié (GNL). Des configurations hautement efficaces ont été trouvées; des performances ayant des valeurs jusqu'à 81% de celle du cycle de Carnot correspondant. Toutefois, en comparaison avec des liquéfacteurs conventionnels à gaz, les débits de GNL trouvés sont limités; des valeurs inférieures à 4.85 kg/jour obtenues sous des hautes pressions d'opération du gaz naturel (de l'ordre 36 bars) et pour un champ magnétique appliqué de 5 T.

Abstract - The present work concerns the ability to apply the technique of magnetic refrigeration (MR) on natural gas liquefaction (i.e, magnetic liquefactor). It is about modeling the phenomenon of magnetic refrigeration, to propose a prototype of magnetic liquefactor and to evaluate the performances of the system. A such device is mainly a magnetic generator, a heat transfer fluid and a magnetic field source. The first part of this work concerns the modeling of the phenomenon of MR through studying the thermomagnetic cycle considering the equations of energy governing the heat fields.

Mots clés: Réfrigération magnétique - Effet magnéto-calorique - Régénérateur magnétique actif - Théorie du champ moléculaire.

1. INTRODUCTION

Le monde connaît depuis plus d'un siècle un important développement économique. La multiplication de la production de denrées alimentaires et de boissons, le développement de l'industrie chimique et pharmaceutique, la commercialisation des gaz liquéfiés et la climatisation des immeubles dans les régions méridionales ont provoqué une croissance importante de la fabrication du froid. Toute cette croissance des besoins en réfrigération et climatisation, environ 15 % de la demande énergétique globale [1], a

* mustapha.belkadi@iap.dz

† arezki.smaili@g.enp.edu.dz

été majoritairement couverte par des systèmes conventionnels, motivés par des considérations économiques, utilisant des réfrigérants avec changement de phase comme les chlorofluorocarbones (CFC), les hydrofluorocarbures (HFC) et les hydrochlorofluorocarbones (HCFC). Toutefois, les exigences environnementales et les normes écologiques actuelles limitent l'utilisation de ces systèmes classiques, notamment ceux qui sont basés sur des techniques mécaniques utilisant des cycles thermodynamiques à compression de vapeur. La recherche sur les futures technologies de réfrigération s'oriente vers d'autres principes: la réfrigération thermoélectrique, la réfrigération thermo-acoustique et la réfrigération magnétique. Toutes ces technologies sont basées sur des phénomènes physiques de certains matériaux pouvant être utilisés comme réfrigérants propres n'ayant aucun effet néfaste sur l'environnement [2].

La réfrigération magnétique, dans son principe, repose sur l'effet magnétocalorique (EMC), propriété intrinsèque de certains matériaux magnétiques, qui est définie comme étant le réchauffement ou le refroidissement du matériau respectivement sous l'application ou la suppression d'un champ magnétique extérieur. En effet, si un matériau magnétocalorique est placé dans un champ magnétique, on assiste généralement à une augmentation de sa température. Réciproquement, une désaimantation permet de le refroidir, et cela de façon réversible. Par la mise en contact thermique du matériau avec deux sources de chaleur (source chaude et source froide), nous pouvons réaliser magnétiquement l'équivalent d'un cycle thermodynamique classique avec une meilleure efficacité énergétique et sans fluide frigorigène. L'aimantation du matériau est alors équivalente à la compression d'un gaz et sa désaimantation à la détente [2].

La production du froid s'effectue durant la phase de démagnétisation en exploitant le refroidissement du matériau causé par l'EMC, et ce par la circulation d'un fluide à travers le matériau. Aujourd'hui, les meilleurs matériaux magnétiques existant ont un EMC variant d'environ 2 à 8 K par Tesla [3]. Toutefois, l'exploitation directe de l'EMC dans un cycle magnétothermique ne permet pas d'atteindre des écarts de température élevés. Ce problème a été contourné grâce à des cycles spécifiques appelés cycles à régénération magnétique active (AMR), où les écarts de températures induits par le processus d'aimantation et désaimantation peuvent être amplifiés par la circulation alternative, à travers un lit régénérateur (matériau magnétique), d'un fluide caloporteur entre les deux sources de chaleur.

Dans ce contexte, l'application de la technique de la réfrigération magnétique à la liquéfaction du gaz naturel nécessite la mise en place d'un cycle AMR travaillant entre la température ambiante et la température de liquéfaction du gaz considéré. Toutefois, le travail avec un seul matériau magnétique ne permet pas de descendre au-dessous de -40 à -50°C avec une efficacité acceptable. On peut néanmoins, comme pour le cas des systèmes conventionnels, poursuivre le refroidissement en disposant en cascade une série de cycles du même type. C'est ainsi que l'on pourra liquéfier du gaz naturel et le sous-refroidir jusqu'à -162 °C qui est sa normale température d'ébullition.

En effet, le présent travail vise à étudier un prototype de réfrigérateur magnétique destiné à la liquéfaction du gaz naturel. Il porte essentiellement sur l'analyse des performances, la conception et le dimensionnement thermique d'un liquéfacteur magnétique à plusieurs étages placés en cascade. Chaque étage fonctionne avec un lit régénérateur (cycle AMR) à géométrie fixe. Plus précisément, notre objectif ultime est de déterminer le nombre de cycles convenables, les matériaux magnétiques réfrigérants et les fluides caloporteurs appropriés ainsi que les paramètres de fonctionnement optimal du système.

2. PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT D'UN LIQUEFACTEUR MAGNETIQUE

Un liquéfacteur magnétique de gaz naturel peut avoir la mise en place de plusieurs étages (cycles) montés en cascade. Le nombre de cascade est lié aux matériaux à effet magnétocalorique choisis, à la géométrie des lits régénératoires, à la nature et le régime d'écoulement des fluides caloporteurs utilisés. La méthode de conception adoptée consiste à déterminer le nombre d'étages et le débit du gaz à liquéfier, sous les conditions de travail optimales, pour des lits régénératoires de géométrie fixe. La figure 1 illustre le schéma de principe d'un liquéfacteur magnétique à gaz à plusieurs étages [4].

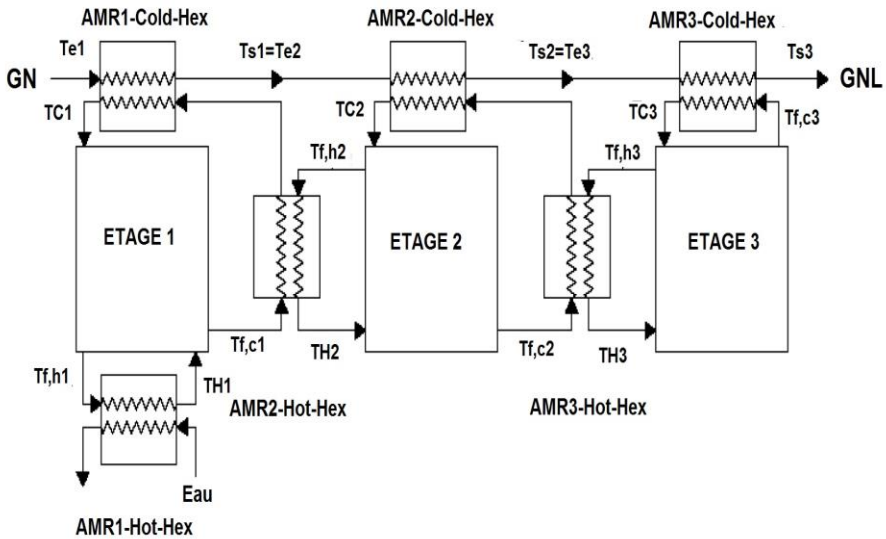


Fig. 1: Schéma de principe d'un liquéfacteur magnétique à gaz à plusieurs étages

D'une manière générale, la production du froid à partir d'un régénératoire magnétique actif s'effectue d'une manière interrompue due au fonctionnement intermittent de l'élément AMR qui se base sur un écoulement alternatif du fluide caloporteur entre la source chaude et la source froide.

Comme alternative à cette situation et pour assurer une continuité dans la production de la puissance frigorifique, on propose un système composé de deux AMR au niveau de chaque étage travaillant en alternance. A cet effet, on s'intéresse dans la suite de cette étude à un liquéfacteur dont l'étage est composé des éléments suivants (Fig. 2),

- Deux lits régénératoires d'un matériau ferromagnétique identique (1);
- Deux sources de champ magnétique menées d'un système de déplacement pour assurer la magnétisation et la démagnétisation (2);
- Un échangeur chaud qui sert à rejeter de la chaleur vers la source chaude(3). Cet échangeur utilise le fluide froid de l'étage précédent ($i-1$) pour refroidir le fluide chaud de l'étage i ;
- Un échangeur froid qui sert à refroidir le gaz naturel (4);
- Une pompe d'alimentation pour faire circuler le fluide à travers le lit régénératoire (5);

- Une vanne automatique placée sur la ligne de refoulement de la pompe qui sert à alterner le fluide entre le premier élément régénérateur et le deuxième (6);
- Un bac de stockage avec appoint pour chaque fluide caloporteur (7).

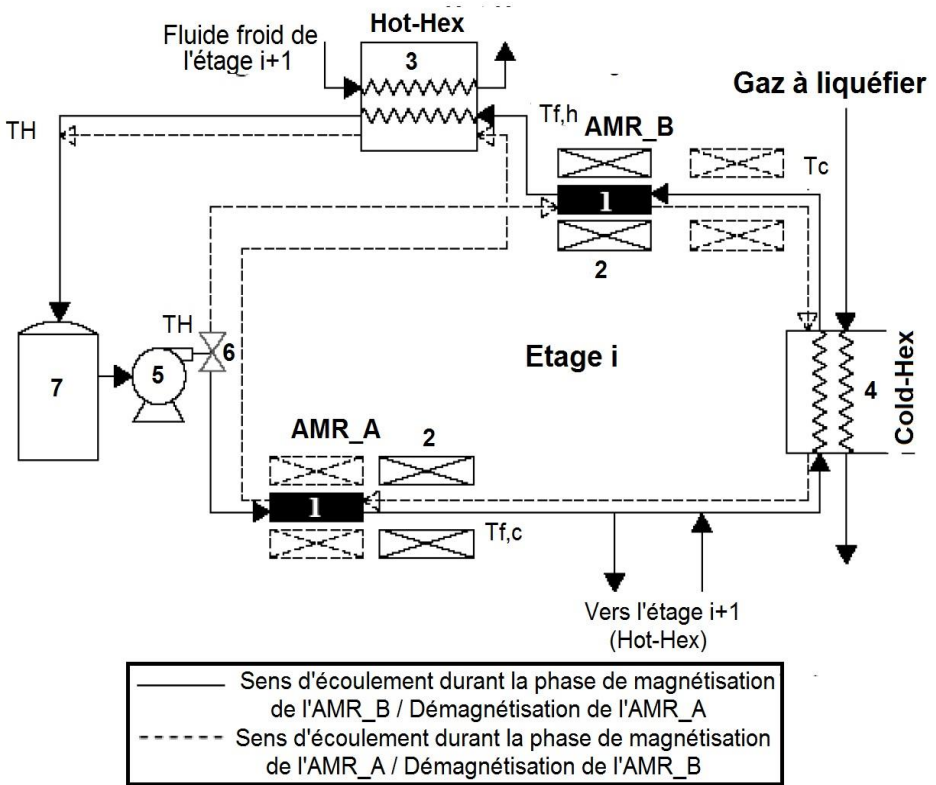


Fig. 2: Schéma de fonctionnement d'un étage (i) du liquéfacteur magnétique

3. MODELISATION DU CYCLE AMR

L'évaluation des performances d'un cycle AMR nécessite la mise au point d'un modèle mathématique caractérisant le fonctionnement du régénérateur magnétique actif. Ce dernier est un élément spécifique dans le système de réfrigération magnétique ; il joue le rôle d'un générateur de chaleur et en même temps, d'un absorbeur de chaleur selon l'état d'aimantation ou de désaimantation du matériau magnétique.

La théorie de base de la réfrigération magnétique active s'articule sur le même principe qu'un générateur passif sauf que les propriétés thermophysiques du matériau varient avec l'application et la suppression du champ magnétique. De plus, le fonctionnement d'un cycle AMR est un fonctionnement périodique, chaque période (2τ) représente un cycle de régénération.

A chaque cycle un gradient de température est observé dans le lit régénérateur. Ce gradient de température sera amplifié en alternant le fluide entre les deux sources de chaleur jusqu'à atteindre le régime établi. La figure 3 illustre le principe de fonctionnement et les profils de température associés à chaque cycle de régénération.

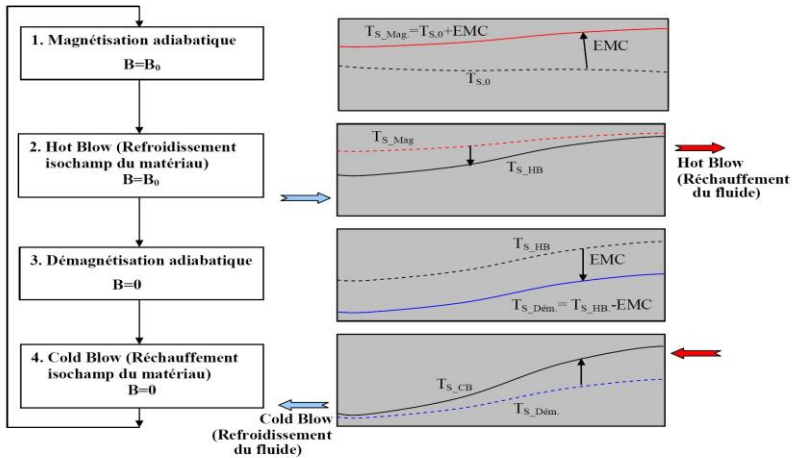


Fig. 3: Description du cycle AMR et profils de température associés le long du régénérateur

La modélisation du cycle AMR consiste à caractériser pour chaque cycle de régénération,

- L'effet magnétocalorique (EMC) du matériau magnétique pour pouvoir déterminer les profils de température générés dans le matériau durant les phases de magnétisation et démagnétisation.

- Les échanges thermiques entre le fluide caloporteur et le matériau magnétique durant les phases de réchauffement et de refroidissement du matériau (phases Cold Blow et Hot Blow). Plus précisément, il s'agit d'étudier l'écoulement du fluide caloporteur dans le lit régénérateur en se basant sur les équations fondamentales de transfert de chaleur et de conservation de l'énergie.

3.1 Caractérisation de l'EMC

L'Effet Magnétocalorique (EMC) est la conséquence directe du couplage magnétothermique entre les différentes contributions du matériau magnétocalorique à l'entropie totale S [5]: ces contributions sont d'ordre magnétique S_M , électronique S_E et de réseau S_R .

$$S(T, B) = S_M(T, B) + S_E(T) + S_R(T) \tag{1}$$

Si un matériau magnétocalorique est placé dans un champ magnétique, on assiste généralement à un processus rapide. Pratiquement, aucun échange de chaleur n'aura lieu avec l'environnement. Ainsi, pour ce procédé adiabatique, l'entropie totale S , qui est habituellement la somme de l'entropie magnétique, électronique et de réseau, demeure constante, $S(T, B) = \text{Constante}$, mais l'aimantation augmente. Ceci signifie que l'entropie magnétique S_M , diminue. Donc, les entropies électronique et de réseau S_E et S_R , doivent augmenter [6]. Dans ce cas, l'effet magnétocalorique généré s'exprime par le changement de température adiabatique:

$$EMC = \Delta T_{ad} = - \int_0^B \left(\frac{T}{C_p} \right) \times \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_B dB \tag{2}$$

Pour calculer l'EMC à l'aide de l'Eq. (2), il est nécessaire de connaître la magnétisation $M(B,T)$ en fonction de la température T et du champ B . Selon la mécanique statistique, la grandeur de la magnétisation peut s'exprimer par [6] :

$$M(B,T) = N g \mu_B J B_j(X) \quad (3)$$

Avec,

$$B_j(X) = \frac{2J+1}{2J} \coth\left(\frac{2J+1}{2J} X\right) - \frac{1}{2J} \coth\left(\frac{1}{2J} X\right) \quad (4)$$

est la fonction de Brillouin, et

$$X = \frac{g \mu_B J B}{k T} + \frac{3T_c J B_j(X)}{T(J+1)} \quad (5)$$

Ici, μ_B , est le magnéton de Bohr (J/T), g , est la facture de Landé, J , est le nombre quantique du moment angulaire total, k , est la constante de Boltzmann (J/K); et N , est le nombre de moments magnétiques par unité de masse.

La chaleur spécifique, elle-même, est exprimée en fonction de l'entropie magnétique S_M , l'entropie du réseau S_R et l'entropie électronique S_E par,

$$C_p(B,T) = T \left(\frac{\partial S}{\partial T} \right)_B = T \left(\frac{\partial S_M(B,T)}{\partial T} + \frac{\partial S_R(B,T)}{\partial T} + \frac{\partial S_E(B,T)}{\partial T} \right) \quad (6)$$

En effet, il est souvent commode d'évaluer, tout d'abord, chaque contribution de la substance à l'entropie totale (S_M, S_R et S_E). Selon la théorie du magnétisme, l'entropie magnétique S_M peut s'exprimer par la relation,

$$S_M(B,T) = R \left(\ln \sinh\left(\frac{2J+1}{2J} X\right) - \ln \sinh\left(\frac{1}{2J} X\right) - X B_j(X) \right) \quad (7)$$

En utilisant le modèle de Debye, l'entropie du réseau S_R peut s'écrire comme,

$$S_R(T) = R \left(-3 \ln(1 - e^{-T_D/T}) + 12 \left(\frac{T}{T_D} \right)^3 \int_0^{T_D/T} \frac{z^3}{e^z - 1} dz \right) \quad (8)$$

Où T_D , est la température de Debye.(9)

D'après la théorie statistique de Fermi-Dirac, l'entropie électronique S_E peut être formulée par,

$$S_E(T) = \gamma T \quad (9)$$

Où, γ , est le coefficient de la capacité calorifique électronique ($J/Kmol$).

3.2 Caractérisation des échanges thermiques entre le solide et le fluide

3.2.1 Equation gouvernant le problème physique

Le lit régénérateur considéré est cylindrique et contient des particules sphériques d'un matériau ferromagnétique. Il est constitué d'une phase solide (matériau à effet magnéto-calorifique) et d'une phase liquide (fluide caloporteur). Il s'agit donc d'un milieu poreux à travers lequel le liquide circule. Ce choix est justifié par l'examen des résultats obtenus, après avoir modelé plusieurs configurations géométriques, qui fait

apparaître clairement la supériorité en termes de performances de l'utilisation d'un milieu poreux comparé aux autres formes (plaques, tubes). Plusieurs hypothèses simplificatrices ont été adoptées afin de rendre le problème abordable et de déterminer le système d'équations caractérisant l'écoulement lors de la phase de refroidissement (Cold Blow) et la phase de réchauffement (Hot Blow),

- Le milieu poreux est considéré homogène et isotrope;
- La porosité du lit est uniforme et constante;
- Régime d'écoulement laminaire et monodimensionnel;
- Fluide Newtonien;
- Les propriétés physiques sont supposées constantes;
- Les pertes thermiques vers le milieu extérieur sont négligeables;
- La conduction axiale dans le fluide, ainsi que dans le solide est négligeable;
- La magnétisation /la démagnétisation du matériau s'effectue d'une manière instantanée sans échange de chaleur avec le milieu extérieur. La température du solide est ainsi calculée pour un cycle de régénération $k(T_s^k)$, en fonction de la température du solide (T_s^{k-1}) du cycle précédent et l'EMC généré, par,

$$T_s^k = T_s^{k-1} \pm EMC \tag{10}$$

En vertu de ces hypothèses simplificatrices, les équations régissant le transfert de chaleur durant les phases de refroidissement et de réchauffement sont données comme suit:

Equation de conservation de l'énergie du fluide

$$\frac{\partial T_f}{\partial t} + \frac{U}{\varepsilon} \frac{\partial T_f}{\partial x} = \frac{h_{cv} \cdot A_p}{\varepsilon \cdot \rho_f \cdot C_{pf}} (T_s - T_f) \tag{11}$$

Equation de conservation de l'énergie du solide

$$\frac{\partial T_s}{\partial t} = \frac{-h_{cv} \cdot A_p}{(1 - \varepsilon) \cdot \rho_s \cdot C_{ps}} (T_s - T_f) \tag{12}$$

où, h_{cv} , Coefficient de transfert de chaleur convectif, T_s , Température du solide, T_f , Température du fluide, ε , Porosité du lit, A_p , Surface d'échange par unité de volume, U , vitesse moyenne à l'entrée du lit. La grandeur U/ε représente la vitesse interstitielle du fluide.

3.2.2 Conditions initiales et conditions aux limites

La résolution du modèle mathématique caractérisant le cycle AMR ({Eq. (4)} et {Eq. (5)}) nécessite la mise en place de deux conditions initiales et une condition aux limites. Elles sont posées de la manière suivante,

Conditions initiales- Initialement, le solide et le fluide sont à la température de la source chaude T_H (température ambiante). En appliquant un champ magnétique B , le solide voit sa température augmenter sous l'effet de l'EMC. Exceptionnellement pour le cycle de régénération initial ($k=0$), le solide pourrait être refroidi durant un temps largement suffisant jusqu'à la température de la source chaude. Dans ce cas, on aura à la fin de la phase 'Hot Blow' du cycle initial, un profil de température constant pour le solide ($T_{s_HB}^{(k=0)}(x)$) et pour le fluide ($T_{f_HB}^{(k=0)}(x)$) égal à la température T_H .

$$\begin{cases} T_{f_HB}^{(k=0)} = T_H \\ T_{s_HB}^{(k=0)} = T_H \end{cases} \tag{13}$$

Cette configuration nous permet de déplacer l'origine de la variable temps ($T=0$) et commencer les cycles de régénération à partir de la phase de démagnétisation. En conséquence, les conditions initiales peuvent être posées pour chaque cycle de régénération k (tel que $k \geq 1$) de la manière suivante,

■ Cold Blow [0, τ]

$$T_{s_CB}^{(k)}(0, x) = T_{s_HB}^{(k-1)}(2\tau, x) - EMC \tag{14}$$

■ Hot Blow [τ , 2τ]

$$T_{s_HB}^{(k)}(\tau, x) = T_{s_CB}^{(k)}(\tau, x) + EMC \tag{15}$$

Où, $T_{s_CB}^{(k)}$, température du solide durant le cold blow; $T_{s_HB}^{(k)}$, température du solide durant le hot blow; k , numéro du cycle de régénération; τ , durée des phases cold blow et hot blow.

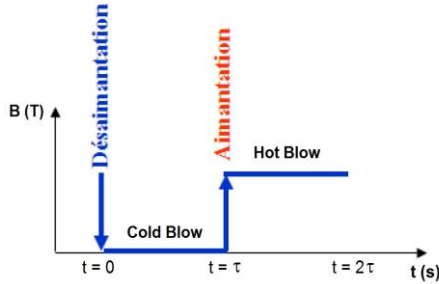
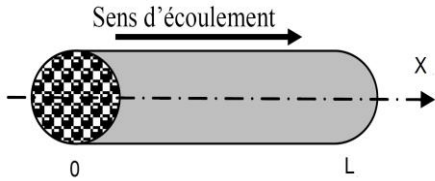


Fig. 4: Conditions initiales

Conditions aux limites- Pour la phase Cold Blow (refroidissement du fluide), l'entrée du fluide étant à $x=0$ et sa température égale à la température de la source chaude T_H . Tandis que, l'entrée du fluide pour la phase Hot Blow (réchauffement du fluide) est à $x=L$ et sa température égale à celle de la source froide T_C .

• Cold blow - $T_{f_CB}(t, 0) = T_H \quad 0 \leq t \leq \tau$



• Hot blow - $T_{f_HB}(t, L) = T_C \quad \tau \leq t \leq 2\tau$

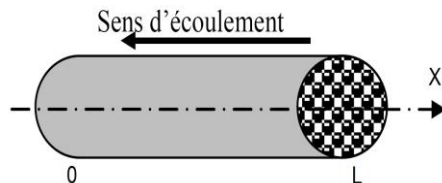


Fig. 5: Conditions aux limites

3.2.3 Coefficient de transfert de chaleur convectif

Dans le cas d'un milieu poreux, le coefficient de transfert de chaleur convectif h_{cv} et la surface d'échange par unité de volume A_p sont donnés par les corrélations suivantes [7, 8],

$$Nu = \frac{h_{cv} \cdot D_p}{\lambda_f} = 2 + 1.8Re^{0.5} Pr^{0.33} \tag{16}$$

$$A_p = \frac{6(1 - \varepsilon)}{D_p} \tag{17}$$

Où, D_p , diamètre des particules, ε , porosité du lit, Nu , est le nombre de Nusselt, Re , est le nombre de Reynold et Pr , est le nombre de Prandth.

3.4 Résolution numérique

La résolution numérique du système d'équations régissant le transfert de chaleur durant les phases de refroidissement (Cold Blow) et de réchauffement (Warm Blow) est effectuée à l'aide de la méthode des différences finies.

Cette méthode consiste à définir sur le domaine de calcul considéré un réseau de points sur lesquels les équations différentielles seront discrétisées. Le maillage utilisé est uniforme et les pas de calcul Δt et Δx sont constants.

4. CARACTERISTIQUES TECHNIQUES DU LIQUEFACTEUR AMR CONSIDERE

4.1 Nombre d'étages

Le gaz naturel devient un liquide à la température d'environ $-162^\circ C$ sous pression atmosphérique. Le fluide réfrigérant doit descendre au-deçà de cette température. Le travail avec un seul étage dans une plage de température qui varie de $25^\circ C$, température initiale du gaz naturel, à $-162^\circ C$ ne permet pas de produire une puissance frigorifique satisfaisante.

A cet effet, il importe de considérer, en premier lieu, un liquéfacteur magnétique composé de 3 étages. Chaque étage est basé sur un matériau à EMC différent selon la configuration présentée par la figure 6.

Les différentes plages de température d'opération des étages, ainsi que les fluides caloporteurs correspondants sont présentés dans le **Tableau 1**. L'effet du nombre d'étages sur les performances du liquéfacteur sera considéré ultérieurement.

Le choix du fluide caloporteur est basé principalement sur ses propriétés physiques (densité, capacité calorifique, viscosité, point d'ébullition, température de solidification, etc.).

Tableau 1: Plages de températures d'opération et les fluides caloporteurs utilisés pour chaque étage

Etage	T_H ($^\circ C$)	T_C ($^\circ C$)	Matériau à EMC	Fluide caloporteur
1	25	-40	Gadolinium	Eau + antigel
2	-35	-140	Terbium	C4 liquide
3	-135	-167	Dysprosium	C3 liquide

4.2 Matériaux magnétocaloriques utilisés

Trois matériaux purs (Gadolinium, Terbium et Dysprosium) ont été sélectionnés pour pouvoir exploiter un EMC important sur une large plage de température. Ce choix est basé sur la température de curie du matériau qui doit être proche de celle de la source froide de l'étage. La figure 6 montre l'évolution de l'EMC en fonction de la température, obtenue à l'aide de la théorie du champ moléculaire, sous l'application d'un champ magnétique de 5 Tesla.

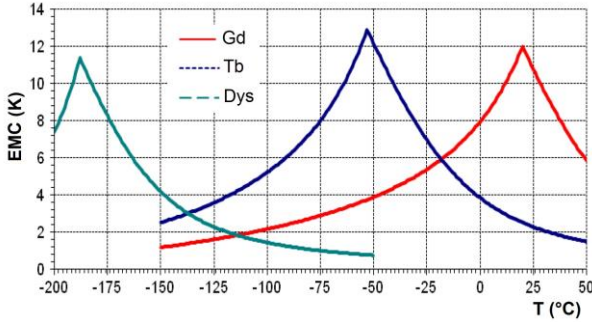


Fig. 6: Evolution de l'effet magnétocalorique des matériaux adoptés, obtenu à un champ $B = 5$ Tesla

4.3 Dimensions et choix du lit régénérateur

Les dimensions de l'élément AMR utilisé pour la conception du liquéfacteur magnétique sont présentées dans le **Tableau 2**. Ce choix est basé sur des considérations pratiques liées à la source du champ magnétique.

Tableau 2: Caractéristiques géométriques du lit régénérateur utilisé

L (mm)	100
D (mm)	45
Dp (mm)	600
ε (%)	0.48

4.4 Evaluation des performances des étages

Le fonctionnement d'un cycle AMR est caractérisé par la puissance frigorifique absorbée de la source froide Q_c et le coefficient de performance COP. Les courbes illustrant la variation de ces performances en fonction du débit du fluide caloporteur m_f sont appelées respectivement courbes caractéristiques de puissance frigorifique et de coefficient d'efficacité thermique (courbes de performances). Ces courbes peuvent être tracées en exploitant le modèle numérique développé précédemment pour des conditions d'opérations données, à savoir: le champ magnétique, les températures des sources chaude et froide, la fréquence du cycle.

Comme étude préliminaire, les courbes de performances des trois étages considérés pour le liquéfacteur magnétique proposé ont été évaluées sur la base d'un champ magnétique de 5 T et un cycle magnétothermique d'une période de 10 s (0.1 Hz).

4.4.1 Performances de l'étage 1 (entrée GN)

Le fonctionnement de l'élément AMR de l'étage 1 a été fixé entre 25 °C et -40 °C (**Tableau 1**). Le rejet de la chaleur à la source chaude Q_H est assuré par l'eau ou l'air ambiant disponible à une température supposée de 20 °C. La puissance frigorifique

produite Q_L est utilisée pour refroidir simultanément le gaz à liquéfier et le fluide caloporteur chaud de l'étage 2. Les résultats obtenus par modélisation numérique (paragraphe 3) de cet étage sont donnés par la figure 7.

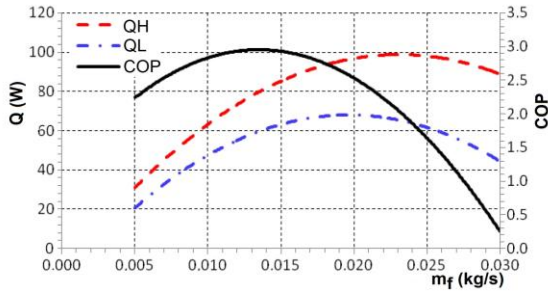


Fig. 7: Evolution des paramètres de performance de l'étage 1 en fonction du débit du fluide caloporteur

4.4.2 Performances de l'étage 2 (étage intermédiaire)

La figure 8 illustre l'évolution de la puissance frigorifique Q_C produite par le régénérateur magnétique, la puissance calorifique rejetée vers la source chaude Q_H , ainsi que le COP de l'étage 2 selon les conditions d'opération données dans le **Tableau 1**.

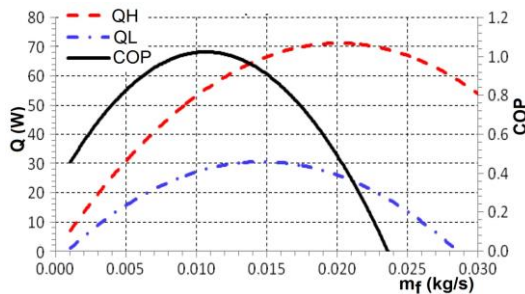


Fig. 8: Evolution des paramètres de performance de l'étage 2 en fonction du débit du fluide caloporteur

4.3.3 Performances de l'étage 3 (sortie GNL)

Pour une température de la source froide T_{C3} fixée à -167°C , pour pouvoir atteindre une température de -162°C coté GNL, et une température de la source chaude $T_{H3} = -135^\circ\text{C}$ (**Tableau 1**), on obtient les performances représentées par les figures 9.

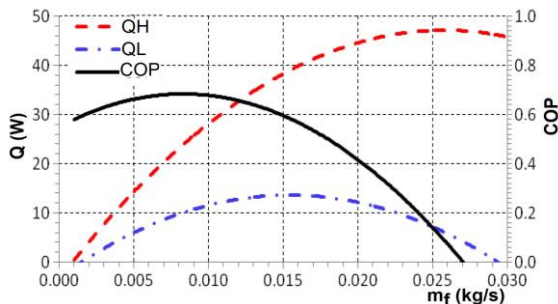


Fig. 9: Evolution des paramètres de performances de l'étage 3 en fonction du débit du fluide caloporteur

5. APPLICATION A LA LIQUEFACTION DU GAZ NATUREL

Nous nous intéressons dans cette partie à déterminer les performances du liquéfacteur magnétique à travers ses trois étages assemblés, ainsi que la quantité de GNL qui pourrait être produite dans les conditions de fonctionnement optimal.

La démarche à suivre consiste à choisir, en premier lieu, un point de fonctionnement qui correspond à un COP maximum sur les courbes de performances de l'étage 3 (Figure 9), et déterminer, par la suite, les paramètres de fonctionnement des étages 1 et 2 qui réalisent la cohérence du bilan thermique global du liquéfacteur.

5.1 Liquéfaction atmosphérique

Pour commencer, on procède à liquéfier le gaz naturel à une pression proche de la pression atmosphérique. L'application conjointe du code numérique mis au point et le simulateur Hysys, selon la procédure décrite ci-dessus, estime la production d'un débit de GNL de 0.06 kg/h, soit 1.44 kg/jour, avec une efficacité de 0.15, soit 25 % de celle du cycle de Carnot correspondant. Le **Tableau 3** résume les paramètres de fonctionnement des trois étages du liquéfacteur magnétique considéré.

Tableau 3: Résultats de simulation obtenus par Hysys pour un liquéfacteur à pression atmosphérique

Etage	Q_H (W)	Q_C (W)	m_{GNL} (kg/h)	COP	m_f/m_{GNL} (molaire)
1	100.7	69.21			
2	67.21	23.63	0.06	0.15	655
3	18.83	6.419			

Il est à constater que le fonctionnement du liquéfacteur magnétique à la pression atmosphérique est caractérisé par une faible efficacité thermique, 25% de celle de Carnot, et nécessite l'utilisation des débits importants des fluides caloporteurs. Un rapport des débits molaires (m_f)_{total} / m_{GNL} de 655 a été obtenu. Ce rapport élevé est dû à l'écart faible entre la température de la source froide T_C et la température de sortie du fluide froid $T_{f,c}$.

Ceci peut être imputé au fait qu'on a négligé les pertes de chaleur dans le régénérateur résultant de la conduction thermique et l'échange par convection avec l'entourage.

5.2 Effet de la pression du gaz naturel

Pour améliorer les performances du liquéfacteur, la liquéfaction du gaz a été effectuée à pression plus élevée (36 bars par exemple, qui avoisine la pression de sortie des boîtes froides dans les unités conventionnelles de liquéfaction du gaz naturel). Dans ce cas, le gaz naturel liquéfié sortant du dernier étage est détendu à travers une vanne Joule-Thomson, comme pour les systèmes conventionnels, jusqu'à la pression atmosphérique. Les résultats de simulation sont donnés dans le **Tableau 4**.

Tableau 4: Résultats de simulation obtenus pour un liquéfacteur magnétique fonctionnant à 36 bars

Etage	Q_H (W)	Q_C (W)	m_{GNL} (kg/h)	COP	m_f/m_{GNL} (molaire)
1	92.4	64.31			
2	59.65	32.31	0.123	0.39	247
3	21.99	10.85			

La liquéfaction à pression élevée nous a permis d'augmenter le débit de GNL produit à 0.123 kg/h, d'améliorer le COP à 0.39, soit 66 % de celui du cycle de Carnot correspondant et de réduire le rapport des débits molaires $(m_f)_{total} / m_{GNL}$ jusqu'à 249.

5.3 Effet du nombre d'étages

Pour illustrer l'effet du nombre d'étages sur les performances du liquéfacteur, plusieurs configurations ont été simulées (**Tableau 5**). Evidemment, l'augmentation du nombre d'étages permet d'améliorer davantage les performances du liquéfacteur. L'utilisation d'un liquéfacteur à 4 étages opérant sous les mêmes conditions a permis d'améliorer le débit de GNL pour atteindre 0.202 kg/h avec une efficacité de 0.48, soit 81 % de celui de Carnot.

Tableau 5: Résultats de simulation d'un liquéfacteur à 36 bars obtenus pour un liquéfacteur magnétique fonctionnant à 36 bars

Etage	m_{GNL} (kg/h)	m_f (kg/h)	COP	m_f / m_{GNL} (molaire)
2	0.0784	70.2	0.29	256
3	0.123	100.08	0.39	249
4	0.202	154.08	0.48	243

Il est à remarquer que le rapport entre le débit total des fluides caloporteurs et le débit GNL n'a pas changé considérablement.

6. CONCLUSION

Dans le cadre de cette étude, plusieurs configurations du liquéfacteur magnétique ont été simulées et étudiées, et ce, afin de déterminer les configurations optimales susceptibles de produire d'appréciables quantités de GNL avec une meilleure efficacité énergétique. Des configurations efficaces ont été trouvées; des performances ayant des valeurs jusqu'à 81 % de celle du cycle de Carnot correspondant ont été obtenues sous l'effet d'un champ magnétique de 5 Tesla et une pression élevée du gaz naturel de 36 bars.

En termes de quantité de GNL produite, un liquéfacteur magnétique à 3 étages, dont l'étage est composé de deux lits régénérateurs de dimensions : 4.5 cm de diamètre et 10 cm de longueur, a permis de produire un débit de 1.44 kg/ jour sous les conditions d'opération atmosphériques et un champ magnétique de 5 Tesla. Le débit de GNL a été augmenté à 2.95 kg/ jour en considérant le gaz naturel à une pression de 36 bars. Egalement, le fait d'accroître le nombre d'étages à 4 (opérant sous la même pression: 36 bars) le débit de GNL a été augmenté d'une façon considérable, atteignant la valeur de 4.85 kg/jour. Ces résultats pourraient être améliorés davantage par,

- L'utilisation d'un matériau à EMC de meilleures performances,
- L'optimisation de la forme et du volume actif du lit régénérateur en vue de favoriser les échanges thermiques,
- L'optimisation des paramètres du cycle : fluide, débit, fréquence, etc.
- L'amélioration du contact thermique entre le fluide caloporteur et les sources chaude et froide,

Cette amélioration pourrait conduire vers la réalisation d'un nouveau procédé de liquéfaction de gaz naturel, socialement souhaitable, économiquement rentable et écologiquement durable, basé sur la technique de la réfrigération magnétique.

REFERENCES

- [1] K.A. Gschneidner Jr. and V.K. Pecharsky, 'Thirty Years of Near Room Temperature Magnetic Cooling: Where We Are Today and Future Prospects', International Journal of Refrigeration, Vol. 31, N°6, pp. 945 – 961, 2008.
- [2] A. Lebouc, F. Allab, J.M. Fournier et J.P. Yonnet, 'Réfrigération magnétique', Techniques de l'Ingénieur, RE 28, 2005.
- [3] A. Smaili, S. Ait-Ali and R. Chahine, 'Performance Predictions of First Stage Magnetic Hydrogen Liquefier', International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 36, N°6, pp. 4169 – 4177, 2011.
- [4] R. Rowan and J. Barkley, 'New Concepts Research Corporation Prometheus Energy Company', DOE Hydrogen Program Active Magnetic Regenerative Liquefier (AMRL) Development, May 2005.
- [5] A. Smaili and R. Chahine, 'Thermodynamic Investigations of Optimum Active Magnetic Regenerators', Cryogenics, Vol. 38, pp. 247 -252, 1998.
- [6] A. Smaili, 'Développement de Matériaux Composites pour la Réfrigération Magnétique', Thèse de PhD, INRS, Université du Québec, 1998.
- [7] C. Aprea and A. Maiorino, 'A Flexible Numerical Model to Study an Active Magnetic Refrigerator for Near Room Temperature Applications', Applied Energy, Vol. 87, N°8, pp. 2690 – 2698, 2010.
- [8] A. Mhimid, A. Jemni et S. Ben Nasrallah, 'Etude Théorique des Transferts Couplés de Chaleur et de Masse lors de la Désorption du Couple Zéolite 13X-Eau', Revue Générale de Thermique, Vol. 36, N°9, pp. 697 – 706, 1997.
- [9] P. Li, M. Gong, G. Yao and J. Wu, 'A Practical Model for Analysis of Active Magnetic Regenerative Refrigerators for Room Temperature Applications', International Journal of Refrigeration, Vol. 29, N°8, pp. 1259 – 1266, 2006.
- [10] V.K. Pecharsky and K.A. Gschneidner Jr., 'Magnetocaloric Effect and Magnetic Refrigeration', Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 200, N°1, pp. 44 – 56, 1999.
- [11] R. Boucekara, 'Recherche sur les Systèmes de Réfrigération Magnétique: Modélisation Numériques, Conception et Optimisation', Thèse de Doctorat, Grenoble, 2008.
- [12] T. Utaki, K. Kamiya, T. Nakagawa, T.A. Yamamoto and T. Numazawa, 'Research on a Magnetic Refrigeration Cycle for Hydrogen Liquefaction', International Cryocooler Conference, Inc, Boulder. CO. 2007.
- [13] V.K. Pecharsky and K.A. Gschneidner Jr., 'Advanced Magnetocaloric Materials: What does the future hold', International Journal of Refrigeration, Vol. 29, N°8, pp. 1239 – 1249, 2006.
- [14] G.V. Brown, 'Magnetic Heat Pumping Near Room Temperature', Journal of Applied Physics, Vol. 47, N°8, pp. 3673 - 3680, 1976.
- [15] J.A. Barclay and W.A. Steyert, 'Materials for Magnetic Refrigeration between 2 K and 20 K', Cryogenics, Vol. 22, N°2, pp. 73 - 80, 1982.
- [16] X. Bohigas, E. Molins, A. Roing, J. Tejada and X.X. Zhang, 'Room Temperature Magnetic Refrigerator Using Permanent Magnets', IEEE Transactions on Magnetics, Vol. 36, N°3, pp. 538 - 544, 2000.
- [17] T. Okamura, K. Yamada, N. Hirano and S. Nagaya, 'Performance of a Room-Temperature Rotary Magnetic Refrigerator', International Journal of Refrigeration, Vol. 29, N°8, pp. 1327-1331, 2006.

- [18] K. Zimm, A. Boeder, J. Chell, A. Sternberg, A. Fujita, S. Fujeida and K. Fukamichi, '*Design and Performance of a Permanent-Magnet Rotary Refrigerator*', International Journal of Refrigeration, Vol. 29, N°8, pp. 1302 – 1306, 2006.
- [19] J.A. Barclay and S. Sarangi, Cryogenic Processes and Equipments, 1984.