

# Etude Numérique du Stockage Solide et Réversible de l'Hydrogène dans un Réservoir d'Hydruure Métallique

Karim Lahmer<sup>#1\*</sup>, Rachid Bessaih<sup>#2</sup>

<sup>#</sup>Département de Génie Mécanique, Université Constantine 1, Route d'Ain El Bey, Constantine, 25000, Algérie.

<sup>1\*</sup> lahmer.karim@sde.dz

<sup>2</sup> bessaih.rachid@gmail.com

**Résumé** -L'hydruure de magnésium constitue un remarquable candidat pour le stockage réversible de l'hydrogène sous forme atomique. En effet, grâce à son importante capacité massique de stockage, son abondance et son prix de revient moins élevé comparativement aux autres hydruures métalliques, il pourrait bien être utilisé à grande échelle dans un avenir proche pour permettre le développement rapide des piles à combustibles. Les lois qui régissent le comportement chimique et thermique de ce matériau de stockage ont été déterminées expérimentalement. La simulation numérique permet de prévoir et de comprendre l'évolution spatiale et temporelle des réactions d'absorption et de désorption de l'hydrogène. De plus, l'outil numérique permet un gain de temps considérable dans la conception et l'optimisation des réservoirs d'hydrogène. Dans ce qui suit, nous allons décrire la mise en place d'une modélisation du chargement/déchargement d'un réservoir d'hydruure de magnésium afin d'envisager une meilleure maîtrise des phénomènes engendrés par ce processus.

*Mots clefs* —

## I. INTRODUCTION

Face à la raréfaction des ressources fossiles et l'augmentation de l'impact des gaz à effet de serre sur le changement climatique, l'hydrogène s'avère un important vecteur énergétique pour le futur. En effet, grâce à ses innombrables vertus, telles que : sa légèreté, stabilité, facilité de transport et de production ainsi que son important pouvoir calorifique, il surpasse de rendement des meilleurs accumulateurs d'énergie à travers son utilisation dans les piles à combustible en prolongeant l'autonomie des appareils essentiellement nomades. Par rapport à la cryogénie et l'hyperbare, la méthode de stockage de l'hydrogène la plus prometteuse est celle par absorption atomique dans des hydruures métalliques et notamment les hydruures de magnésium. En effet, l'hydruure de magnésium, sous forme de poudre très fine est un très bon prétendant au stockage réversible de l'hydrogène car sa capacité massique de stockage est supérieure à 7.5%. Elle est l'une des plus élevées des hydruures métalliques connus. De

plus, le magnésium est le septième élément le plus abondant sur terre et reste relativement bon marché par rapport aux autres métaux tels que l'aluminium, ce qui motive son utilisation à grande échelle dans un proche avenir. Le stockage de l'hydrogène sous forme solide offre d'importants avantages tels que la réduction de l'encombrement du réservoir, l'évolution des réactions chimiques qui en découlent à des températures de moyenne amplitude et à des pressions modérées variant de 1 à 10 bar. De plus, la densité d'hydrogène sous forme solide lorsqu'il est stocké dans de tels composés est plus importante que celle obtenue sous forme moléculaire. Cette étude paramétrique a pour intention de contribuer au développement de la conception des réservoirs d'hydrogène. Dans ce qui suit, nous étudierons numériquement le phénomène de stockage réversible d'hydrogène dans un réservoir contenant un matériau susceptible d'adsorber l'hydrogène (Hydruure de Magnésium) afin d'alimenter une pile à combustible. Nous nous intéresserons particulièrement à la description des phénomènes thermiques associés au processus d'adsorption. Le logiciel FLUENT d'ANSYS 13.0 a été utilisé pour réaliser les simulations numériques. Un des avantages propres à cet outil est constitué par la part importante qu'il accorde à la modélisation de la thermodynamique et la cinétique de réaction entre un gaz et un milieu poreux. Un fichier de calcul appelé (UDF : User Defined Function) en langage C regroupant les modèles constitués a été réalisé et intégré aux calculs.

## II. ETAT DE L'ART

De nombreuses études expérimentales et numériques ont été réalisées afin d'améliorer les performances des réservoirs d'hydrogène. P. Muthukumar et al. [1] ont réalisé une étude paramétrique d'un dispositif de stockage d'hydrogène dans du  $MmNi_{4,6}Al_{0,4}$ , ils ont montré que l'augmentation de coefficient global de transfert de chaleur n'est pas bénéfique. A. Jemni et S. Ben Nasrallah [2] ont réalisé l'une des premières études numériques bidimensionnelle d'un réacteur à hydrogène.

Leurs résultats ont montré l'importance de la géométrie, de la pression à l'entrée et le choix de la température d'entrée. Y. Kaplan et al. [3] ont présenté un modèle mathématique pour le stockage de l'hydrogène dans un lit d'hydruure métallique; l'équipe a conclu qu'une charge rapide nécessite un refroidissement efficace. A. Phate et al. [4] ont effectué l'analyse d'une modélisation cylindrique d'un lit d'hydruure métallique; leur conclusion est que le gradient de concentration dans le lit est la principale force motrice de l'écoulement d'hydrogène. P. Marty et al. [5] ont ajouté une validation expérimentale des simulations numériques du réservoir de stockage d'hydrogène avec des hydruures métalliques; leur objectif était d'obtenir des performances en fonction des objectifs imposés par un système de cogénération stationnaire. Askri et al. [6] ont effectué une étude numérique de transfert de chaleur et de masse dans un réservoir annulaire tridimensionnel. Les résultats ont montré que l'utilisation d'ailettes améliore le transfert de chaleur et par conséquent une amélioration de 40% du temps nécessaire pour le stockage par rapport au cas sans ailettes. Un modèle CFD pour simuler le stockage d'hydrogène dans un réservoir de charbon actif a été décrit par R. Chahine et al. [7]; ce modèle a montré que la quantité d'hydrogène adsorbé est supérieure à celle de l'hydrogène gazeux comprimé.

### III. GEOMETRIE ET MODELE MATHEMATIQUE

#### A. Géométrie modélisée

Le réservoir 3D utilisé dans les simulations est constitué de deux cylindres concentriques en acier, celui du centre contient la poudre d'hydruure, quant à celui de l'extérieur, c'est un caloduc qui assure le refroidissement (ou réchauffement) du réservoir pour permettre l'évolution successive des phases d'hydruration et de déchargement. Pour notre modélisation, nous avons pris en considération un demi-cylindre de dimensions ( $x = 20$  mm,  $y = 20$  mm,  $z = 400$  mm). Ce modèle est inspiré directement des prototypes expérimentaux disponibles dans la littérature (fig. 1).

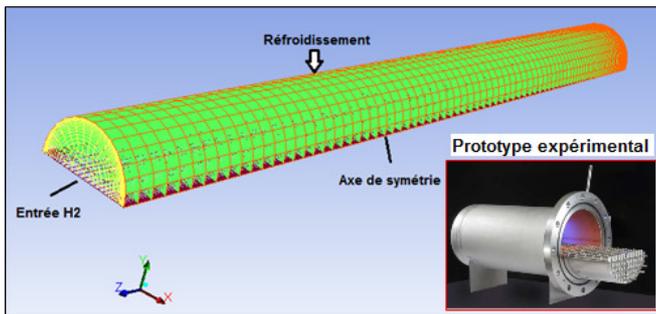


Fig. 1 Géométrie tridimensionnelle de base d'un réservoir d'hydrogène

#### B. Formulation du problème

La phase de charge (hydruration) consiste à préchauffer le réservoir initialement déchargé à une température avoisinant les 573K avec une pression inférieure à la pression d'équilibre. Lorsque la température est homogène, une pression d'alimentation de l'ordre de 1 MPa est appliquée à  $t = 0$ . Comme la réaction d'hydruration est très exothermique ( $\Delta H = -76700$  J/molH<sub>2</sub>), la température s'élève rapidement et atteint la température d'équilibre engendrant ainsi le blocage de la réaction.

Lors de la phase de décharge (désorption), le réservoir est chauffé jusqu'à une température initiale de 350 °C. On impose ensuite une pression d'hydrogène de 0,1 MPa en ouvrant le réservoir vers l'atmosphère. A  $t = 0$  s les vannes sont ouvertes et l'hydrogène s'échappe à la pression ambiante (atmosphérique). La réaction de désorption étant endothermique, la température s'abaisse et atteint l'équilibre. Il faut alors fournir de la chaleur au réservoir pour permettre à la réaction de se poursuivre. Par ailleurs, les hypothèses définissant le cadre de la modélisation sont les suivantes :

- L'hydrogène se comporte comme un gaz parfait entre les pores de l'hydruure,
- La température du gaz est localement la même que celle de la poudre,
- L'écoulement est laminaire entre les grains de poudre,
- Les transferts radiatifs dans le milieu poreux sont négligés,
- Les énergies de pression et de friction sont considérées négligeables,
- La température à l'entrée est constante,
- L'écoulement de l'hydrogène avant l'adsorption est négligeable,
- La méthode de résolution utilisée est celle des volumes finis dans un domaine tridimensionnel, axisymétrique avec un régime laminaire en écoulement instationnaire.

Par conséquent, les équations qui gouvernent le phénomène sont :

1) L'équation de conservation de la masse et équation de Darcy :

- Équation de continuité en phase gazeuse

$$\varepsilon_M \cdot \frac{\partial \rho_g}{\partial t} + \text{div}(\rho_g \cdot \vec{U}) = -S_m \cdot M_{H_2} \quad (1)$$

- Équation de continuité en phase solide

Les transferts de masse sont pris en compte par Fluent grâce à l'équation de continuité et celle de Darcy :

$$\varepsilon_{MH} \cdot \frac{\partial \rho_{MH}}{\partial t} = S_m \cdot M_{H_2} \quad (2)$$

Le terme source de masse d'hydrogène dépend de la vitesse de réaction et peut être exprimé :

$$S_m = \rho_m \cdot wt \cdot (1-\varepsilon) \cdot \frac{d\alpha}{dt} = \frac{\varepsilon_{MH} \cdot \rho_{MH}}{M_{MH}} \left[ \frac{H}{M} \right]_{sat} \cdot \frac{d\alpha}{dt} \quad (3)$$

Avec :  $\rho_m \cdot wt = \Delta\rho = \rho_{ss} - \rho_s$  et  $\rho_g = \frac{P \cdot M_{H_2}}{R \cdot T}$

L'équation de Darcy est donnée par l'expression :

$\vec{\nabla} P_{H_2} = - \frac{\mu}{K} \cdot \vec{U}$  soit, l'équilibre entre frottement visqueux et gradient de pression et où  $K$  : La perméabilité du matériau poreux. En considérant une grande porosité du matériau et une vitesse d'écoulement faible on peut supposer que :  $\vec{\nabla} P_{H_2} = 0$ .

## 2) L'équation de l'énergie :

L'équation simplifiée de conservation de l'énergie :

$$\varepsilon \cdot \rho_g \cdot C_{pg} \cdot \frac{\partial T}{\partial t} + (1-\varepsilon) \cdot \rho_s \cdot C_{ps} \cdot \frac{\partial T}{\partial t} + \varepsilon \cdot \rho_g \cdot C_{pg} \cdot \nabla(T \cdot \vec{U}_r) = \nabla(\lambda_{eff} \nabla T_{MH}) + S_e \quad (4)$$

- Puisque le milieu solide (s) + gaz (g) est assimilé à un milieu continu avec :

$$\rho_{MH} \cdot C_{p_{MH}} = \varepsilon \cdot \rho_g \cdot C_{pg} + (1-\varepsilon) \cdot \rho_m \cdot C_{pm} = \sum_i \varepsilon_i \cdot \rho_i \cdot C_{pi}$$

et  $\lambda_{eff} = \varepsilon \cdot \lambda_g + (1-\varepsilon) \cdot \lambda_m$

Donc, pour l'adsorption le terme source de l'équation de l'énergie est :

$$S_e = \frac{\Delta H}{M_{H_2}} \cdot S_m \quad (5)$$

Les paramètres thermiques du matériau sont donc fonction de la compacité, de la température, de la pression d'hydrogène et du degré d'hydruration de la poudre. Une bonne connaissance de la conductivité thermique est particulièrement nécessaire à la pertinence d'une simulation. Cette valeur a été antérieurement obtenue de manière expérimentale. La valeur ainsi obtenue et prise en compte pour la modélisation est :  $\lambda_{eff} = 0,48 \pm 0,1$  W/m/K.

## C. Conditions initiales et aux limites lors de l'absorption

### 1) Conditions initiales lors de l'absorption :

Au départ de l'absorption de l'hydrogène, la température de la poudre, la pression de l'hydrogène et la densité du matériau poreux sont considérées comme constantes le long du réservoir. De plus, le système est considéré sous l'effet de l'équilibre P-C-T.

$$T_s = T_{H_2} = T_i ; P_{H_2} = P_i ; \rho_{H_2} = \rho_i$$

### 2) Les conditions aux limites lors de l'absorption :

Les conditions aux limites prises en compte sont :

- L'hydrogène est introduit axialement à l'intérieur du lit d'hydrure à travers un filtre poreux qui maintient la poudre en forme.

$$\left. \frac{\partial T_{H_2}}{\partial X} \right|_{x=0} = 0 ; \left. \frac{\partial P_g}{\partial X} \right|_{x=0} = 0$$

- Paroi transversale supérieure avec un transfert de chaleur (circulation de fluide caloporteur)

$$-\lambda_{eff} \left. \frac{\partial T_{MH}}{\partial Y} \right|_{y=H} = h \cdot (T_{MH} - T_\infty) ; \left. \frac{\partial P_g}{\partial Y} \right|_{y=H} = 0$$

- Paroi droite adiabatique:

$$\left. \frac{\partial T_{MH}}{\partial X} \right|_{x=L} = 0 , \left. \frac{\partial P_{H_2}}{\partial X} \right|_{x=L} = 0$$

## D. Conditions initiales et aux limites lors de désorption

### 1) Conditions initiales lors de la désorption :

Au début de la désorption de l'hydrogène, la pression à l'intérieur du réservoir, la densité du matériau poreux et sa température sont considérées comme constantes le long du réservoir. De plus, les paramètres initiaux du système sont ceux enregistrés au terme de la phase de d'absorption.

$$T_s = T_{f_{abs}} = T_i ; P_s = P_{f_{abs}} = P_i ; \rho_s = \rho_i = \rho_{f_{abs}}$$

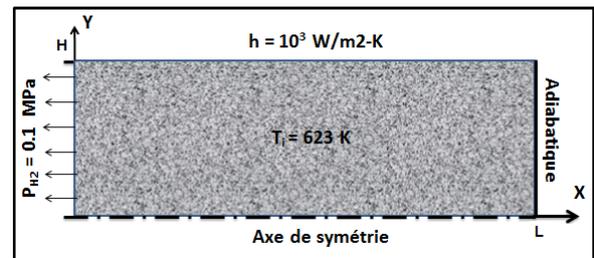


Fig. 2 Conditions aux limites considérées lors de la désorption

### 2) Les conditions aux limites lors de la désorption :

Les conditions aux limites considérées sont :

- L'hydrogène est déchargé du lit d'hydrure à travers un filtre poreux qui maintient la poudre en forme de façon axiale.

$$\left. \frac{\partial T_{MH}}{\partial X} \right|_{x=0} = 0 , \left. \frac{\partial P_{H_2}}{\partial X} \right|_{x=0} = 0$$

- Paroi transversale supérieure avec un transfert de chaleur

$$-\lambda_{eff} \left. \frac{\partial T_{MH}}{\partial Y} \right|_{y=H} = h \cdot (T_{MH} - T_\infty) ; \left. \frac{\partial P_g}{\partial Y} \right|_{y=H} = 0$$

- Paroi droite adiabatique:

$$\left. \frac{\partial T_{MH}}{\partial X} \right|_{x=L} = 0 , \left. \frac{\partial P_{H_2}}{\partial X} \right|_{x=L} = 0$$

## IV. VALIDATION

### A. Validation de la phase d'absorption

Nos résultats ont été comparés avec les données expérimentales publiées. En fait, nous avons effectué des simulations sous FLUENT et les avons confrontés à ceux

disponibles dans les études similaires. La figure 3 montre la comparaison du profil de la température moyenne du lit d'hydruure métallique en fonction du temps écoulé de l'absorption d'hydrogène [22]. La figure 4 présente la confrontation avec les profils de température moyenne [36]. Nos résultats de calcul ont montré un bon accord avec ceux disponibles dans la littérature.

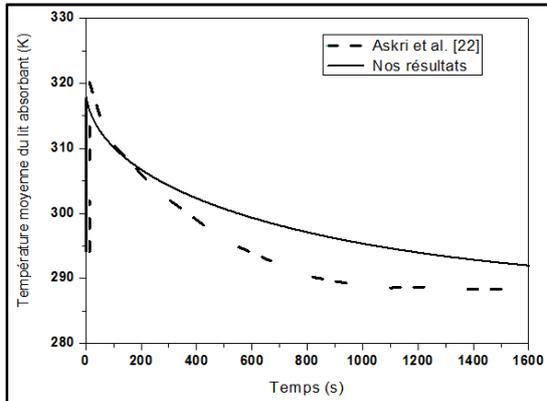


Fig. 3 Comparaison des profils de température moyenne d'absorption avec  $P_{H_2} = 3 \text{ MPa}$  et  $\Delta t = 0,1 \text{ s}$

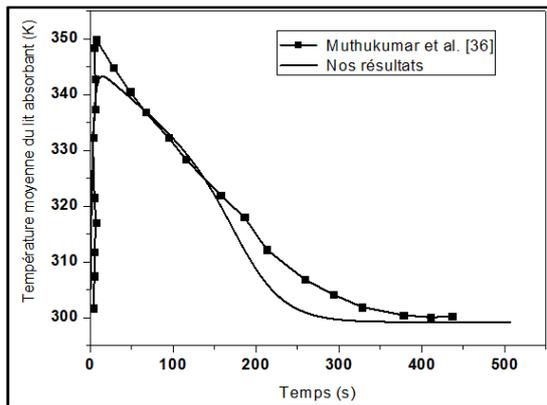


Fig. 4 Comparaison des profils de température moyenne d'absorption avec  $P_{H_2} = 2 \text{ MPa}$  et  $\Delta t = 0,1 \text{ s}$

### B. Validation lors de phase de désorption

Lors de la phase de désorption, nos résultats ont été comparés avec les données disponibles sur la littérature et notamment ceux de la référence [30]. La figure 5 montre le profil de la température moyenne du lit d'hydruure métallique en fonction du temps de désorption de l'hydrogène. Le matériau sur lequel nous avons confronté nos résultats est le  $MmNi_{4,6}Al_{0,4}$  avec comme hypothèses :  $P_s = 35 \text{ bar}$ ,  $P_d = 1 \text{ bar}$ ,  $T_f = 25^\circ\text{C}$ ,  $h = 1000 \text{ W/m}^2\text{K}$ . Nos résultats de calcul ont montré un bon accord avec ceux disponibles dans la littérature.

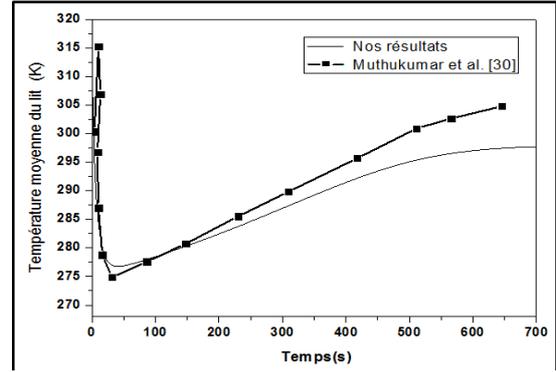


Fig. 5 Comparaison de l'évolution de la température moyenne du liten fonction du temps lors de la désorption

## V. RESULTATS ET DISCUSSION

Puisque la conception d'un réservoir industriel débute par l'optimisation de sa géométrie au moyen d'une simulation numérique, ce travail a pour but de modéliser les échanges de chaleur et les cinétiques de réaction au cours du chargement en hydrogène d'un réservoir d'hydruure de magnésium (poudre métallique activée). Dans le but de vérifier les bilans énergétiques, le logiciel Fluent a été retenu pour modéliser ce problème. Le code de calcul utilise la technique des volumes finis. Il résout, en instationnaire, les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie en incluant dans notre modèle la cinétique de réaction en fonction de différents paramètres physiques. Les paramètres physiques utilisés dans la modélisation numérique sont présentes sur le tableau (1) :

Tableau 1

Principaux paramètres physiques utilisés dans les simulations [20]

Phase	$P_0$	$C_p$ MH	$\rho$	$\lambda_{\text{eff}}$	$\epsilon$	$\alpha_{\text{ef}}$ r	$\Delta H$	$\Delta S$	$E_a$	$T_0$
Absorp.	1MPa	1545J /kg-K	1945 kg/m <sup>3</sup>	0.48 W/m. K	0.77	0.06	-75 kJ/ mol H <sub>2</sub>	-135 J/mo l H <sub>2</sub> - K	120 kJ/mo l H <sub>2</sub>	573 K
Désorp.	0.1 MPa								41 kJ/mo l H <sub>2</sub>	623 K

### A. Effet du maillage

Aussi, pour vérifier l'incidence du maillage de la géométrie tridimensionnelle sur la solution, nous avons comparé les courbes de la température moyenne du lit d'hydruure lors de la phase d'absorption en faisant varier les maillages, soit :  $G1 = 19\ 890$  mailles ;  $G2 = 159\ 120$  mailles. Les résultats obtenus ont montré des courbes identiques (fig.6) et qu'aucune différence particulière n'a été enregistrée, nous avons opté pour le maillage G1 parce qu'il représente le meilleur rapport précision / durée de calcul.

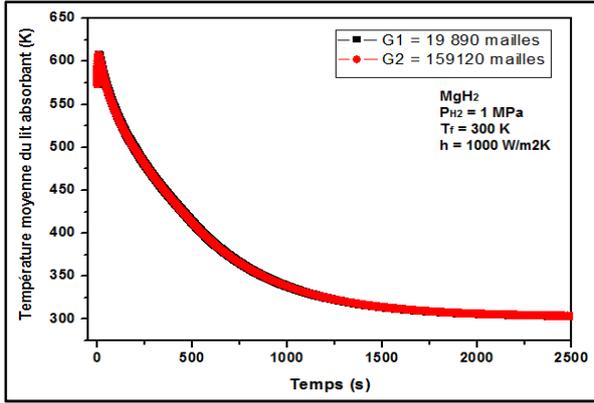


Fig. 6 Variation temporelle de température moyenne du lit adsorbant en fonction du maillage 3D

**B. Effet du refroidissement du réservoir lors de l'absorption**

Afin de connaître l'effet du refroidissement du réservoir sur les températures enregistrées lors de la phase de l'absorption, nous avons comparé les températures qui en résultent lors d'un échange thermique à l'air ambiant (convection naturelle) avec un échange thermique par fluide caloporteur sur la surface extérieure. Les résultats obtenus (fig. 7) montrent que la température maximale atteinte lors des premières secondes de l'absorption est moins importante avec un caloduc que sans ce dernier. De plus, avec un simple échange à l'air libre, les cinétiques d'absorptions seront tellement lentes qu'elles engendreront un temps de réaction quatre fois plus long que celui avec un échange convectif forcé, ce qui motive l'utilisation d'un caloduc qui accélérerait un tant soit peu, le phénomène d'absorption de l'hydrogène.

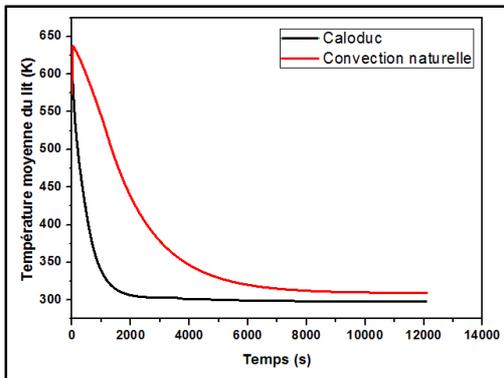


Fig. 7 Effet du refroidissement du réservoir sur la température moyenne pendant la réaction d'hydruration

**C. Résultats obtenus au terme de la phase d'absorption**

Les figures de 08 à 10 montrent les gradients axiaux et radiaux de température du lit durant les sept premières secondes de l'absorption. Ces isothermes deviennent de plus en plus espacées et irrégulières en fonction du temps écoulé. En effet, sur ces figures, la température moyenne maximale atteinte du lit adsorbant avoisine les 635 K à seulement 7,3 s

du début de l'absorption avec une pression initiale de l'hydrogène égale à 10 MPa. Ces figures montrent aussi l'aspect des isothermes à différents moments de l'hydruration et ce, dans deux plans différents, soit : XY et ZX. Les contours isothermiques dont les gradients de température sont notamment radiaux. La chaleur générée par la réaction quant à elle, est concentrée au centre du réservoir. Aux alentours de 300 secondes depuis le commencement de la réaction (Fig. 9), la température à l'intérieur du réservoir devient plus homogène et tend vers la valeur de température de refroidissement  $T_f$ .

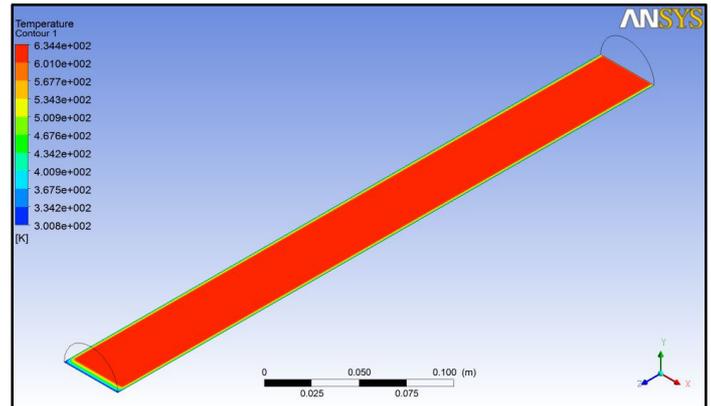


Fig. 8 Contours de la température lors de l'absorption sur l'axe de symétrie à 7,3 secondes

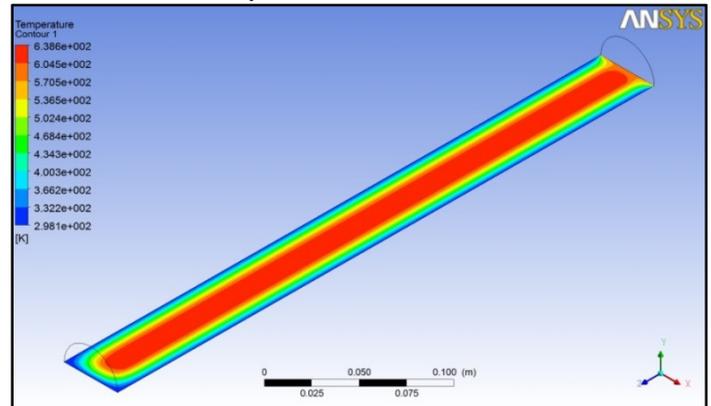


Fig. 9 Contours de la température lors de l'absorption sur l'axe de symétrie à 300 s

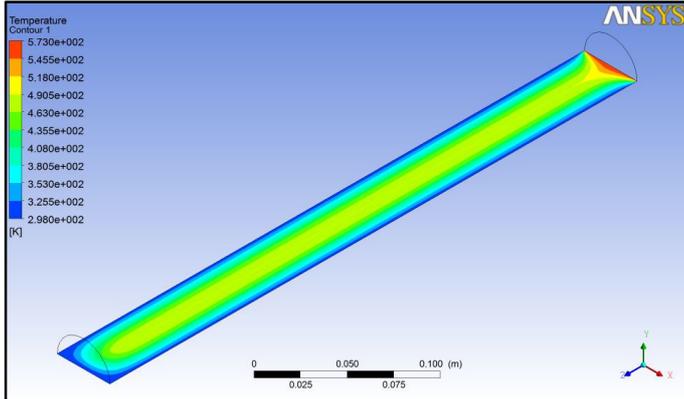


Fig. 10 Contours de la température lors de l'absorption sur l'axe de symétrie à 636 s(plan ZX)

Les figures 11 à 15 montrent des contours de la concentration de l'hydrogène en fonction du temps de réaction. En effet, au tout début de l'hydruration, la capacité de stockage du matériau est maximale. Au fur et mesure que le temps passe, elle baisse progressivement jusqu'à saturation du matériau hôte (poudre de magnésium) et l'occupation par l'hydrogène de toutes les interstices disponibles (pores). Le temps alloué jusqu'à saturation du métal est de près de 450 secondes, soit environ 7,5 minutes.

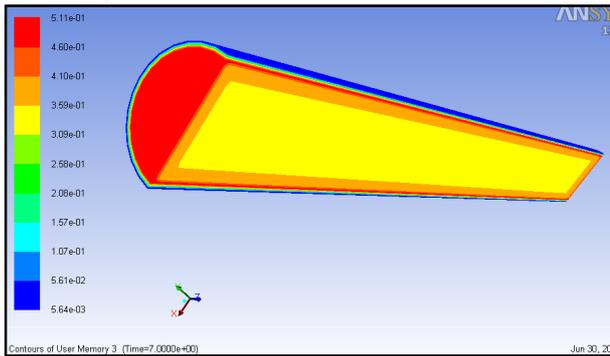


Fig. 11 Contours du taux d'hydruration à 7 secondes

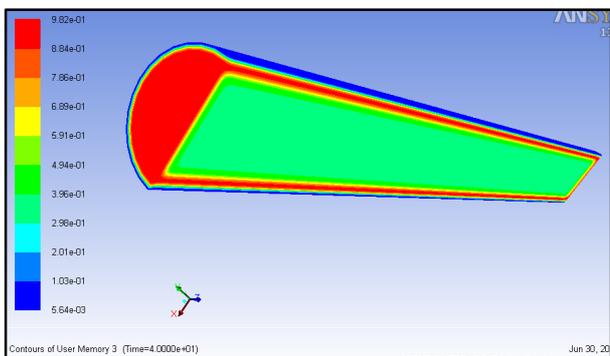


Fig. 12 Contours du taux d'hydruration à 40 secondes

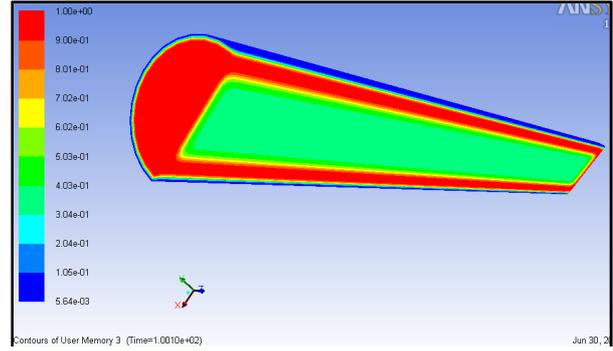


Fig. 13 Contours du taux d'hydruration à 100 secondes

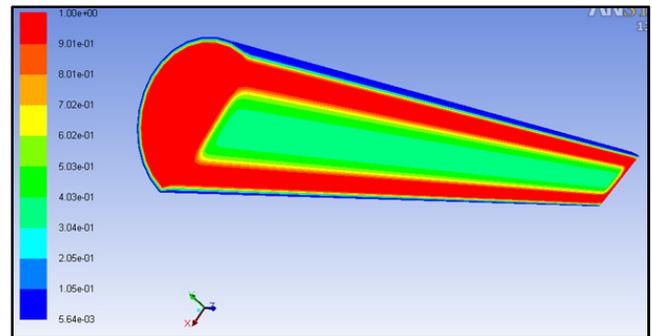


Fig. 14 Contours du taux d'hydruration à 170 secondes

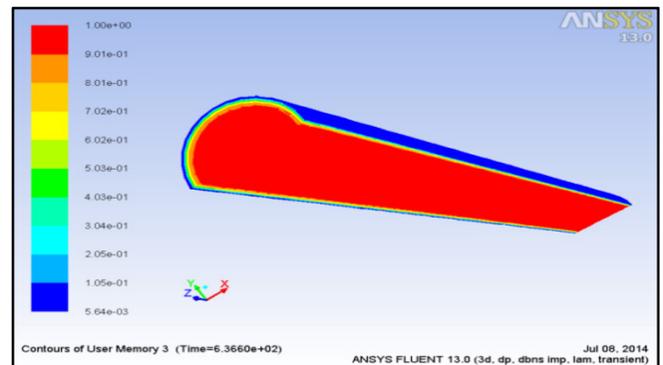


Fig. 15 Contours du taux d'hydruration à 636 secondes

#### D. Résultats obtenus au terme de la phase de désorption

La modélisation de la thermodynamique et des cinétiques permet le calcul de l'évolution spatiale et temporelle de la vitesse et du taux de déhydruration dans le matériau. Ces lois sont incluses dans l'UDF qui permet ce calcul à la fin de chaque pas de temps.

Le réservoir est chauffé jusqu'à une température initiale de 350°C. Au terme de cela, on impose une pression d'hydrogène de 0,1 MPa en ouvrant la vanne du réservoir à  $t = 0$  s, l'hydrogène s'échappe à la pression ambiante. La réaction de

désorption étant endothermique, la température s'abaisse et atteint l'équilibre. Il faut alors fournir de la chaleur au réservoir pour permettre à la réaction de se poursuivre.

En effet, la température chute rapidement dans le réservoir jusqu'à la température d'équilibre correspondant à cette pression (figure 16). Le débit est plus faible que dans le cas de l'absorption car l'écart de température entre le fluide caloporteur et la température d'équilibre est moins importante. Pour ces valeurs de débit, les pertes de charge dans la conduite de gaz sont faibles et la pression dans le réservoir est stable et peu différente de la pression atmosphérique.

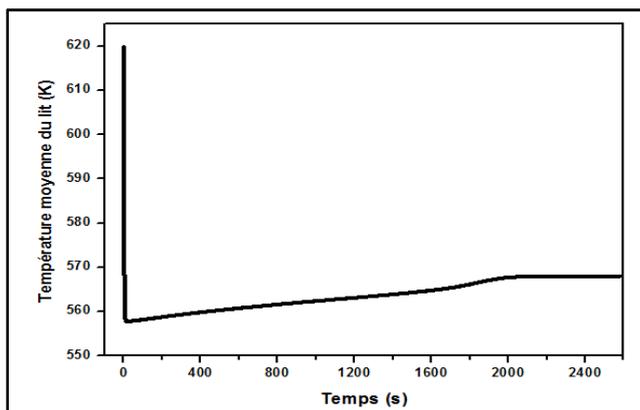


Fig. 16 Variation de la température moyenne du lit en fonction du temps lors de la désorption

On observe, comme dans le cas de l'absorption, que la réaction évolue sous la forme d'un front longitudinal. Au cours de la désorption, l'hydrogène se décharge progressivement du réservoir sous l'influence de l'apport en chaleur engendré par le caloduc situé sur la surface de ce dernier (fig. 17). La durée de cette phase est sensiblement plus courte car elle profite directement de la maîtrise de la chaleur soumise contrairement à la phase d'absorption qui exige un refroidissement en rapport avec la quantité d'hydrogène à charger et la conception du réservoir. Quant à la concentration de l'hydrogène (fig. 18), on remarque une baisse graduelle avec le temps jusqu'à la décharge complète de réservoir qui est subordonné à l'apport en chaleur.

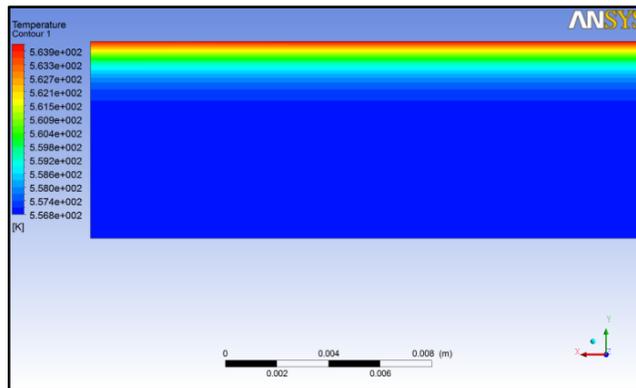


Fig. 17 Profil des isothermes à l'extrémité du réservoir à 20 secondes du début de la désorption

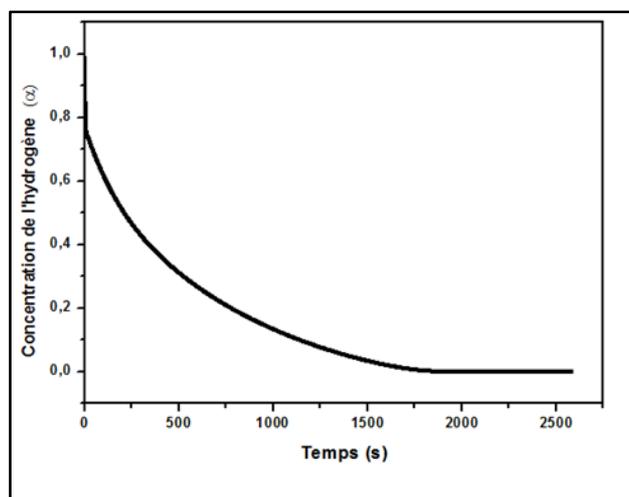


Fig. 18 Evolution temporelle de la concentration de l'hydrogène à l'intérieur de l'hydrure lors de la phase de désorption

## VI. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

L'objectif de ce travail était l'étude paramétrique d'un réservoir d'hydrures de magnésium lors de son fonctionnement cyclique de charge et de décharge dynamique.

Dans cette étude numérique, les aspects thermiques d'un réservoir à hydrure métallique en trois dimensions sont étudiés par la formulation de transfert de chaleur par conduction transitoire. Quatre modèles différents pour la réaction cinétique dans le lit poreux (hydrure métallique) ont été introduits dans notre UDF. Nous avons utilisé la méthode des

volumes finis pour discrétiser les équations générées par le modèle mathématique. La validation a été réalisée en comparant les résultats obtenus avec les données expérimentales et à cet effet un bon accord a été observé.

Les résultats ont montré une production rapide et importante de la chaleur au début du processus d'absorption de l'hydrogène à l'intérieur de l'hydrure métallique. Ces gradients de température entre le centre et la surface du réservoir sont axiaux et radiaux. En outre, malgré la variation des modèles cinétiques de réaction, peu de différences entre les contours de température ont été remarquées lors du changement. Par ailleurs, le caloduc de refroidissement est nécessaire afin de permettre la poursuite du chargement de l'hydrogène.

Le modèle numérique développé avec ce logiciel prend en compte les aspects chimiques, thermodynamiques, thermo-fluides du comportement de ces réservoirs. La simulation du comportement de réservoirs présentant, a permis :

- de prouver que l'utilisation d'une équation du mécanisme de réaction plutôt qu'une autre influe sur les résultats obtenus
- de vérifier l'impact de chaque équation de la cinétique de réaction sur les résultats
- de vérifier que la chaleur de réaction dans le réservoir limite le chargement et le déchargement en hydrogène
- de monter la sensibilité du chargement et du déchargement à certains paramètres physiques
- de confirmer la présence d'un gradient de température lors du chargement et du déchargement du réservoir,
- d'acquérir une compréhension globale du fonctionnement de ce type de réservoirs pour concevoir un système de refroidissement et de chauffage efficace et améliorer par conséquent les performances de ces réservoirs.

Par ailleurs, nos résultats, bien qu'ils soient en adéquation avec ceux disponibles dans la littérature, devraient se concrétiser par la conception et la fabrication d'un réservoir expérimental et le développement du matériau hôte et ce, afin d'améliorer performances relatives à ce type d'applications prometteuses.

## RÉFÉRENCES

- [1]. P. Muthukumar, U. Madhavakrishna, A. Dewan : Parametric studies on a metal hydride based hydrogen storage device, *Int. J. of Hydrogen Energy*, vol 32, pp 4988 – 4997, (2007).
- [2]. A. Jemni, S. Ben Nasrallah: Study of two dimensional Heat and mass transfer during absorption in a metal hydrogen reactor, *In. J. of Hydrogen Energy*, vol 20, Nr 1, pp 43 – 52, (1995).
- [3]. Dogan, Y. Kaplan, T. N. Veziroglu : Numerical investigation of heat and mass transfer in a metal hydride bed, *Applied Mathematics and Computation*, vol 150, pp 169–180, (2004).
- [4]. K. Phate, M. P. Maiya, S. S. Murthy : Simulation of transient heat and mass transfer during hydrogen sorption in cylindrical metal hydride beds: *Int. J. of Hydrogen Energy*, vol. 32, pp. 1969 – 1981, (2007).
- [5]. M. Botzung, S. Chaudourne, O. Gillia, C. Perret, M. Latroche, A. Percheron-Guegan, P. Marty: Simulation and experimental validation of a hydrogen storage tank with metal hydrides, *Int. J. of Hydrogen Energy*, vol 33, pp 98 – 104, (2008).
- [6]. F. Askri, M. Ben Salah, A. Jemni, S. Ben Nasrallah : Heat and mass transfer studies on metal-hydrogen reactor filled with  $MmNi_{4.6}Fe_{0.4}$ , *In. J. of Hydrogen Energy*, vol 34, pp 6705 – 6711, (2009).
- [7]. F. Ye, J. Xiao, B. Hu, P. Bénard, R. Chahine : Implementation for model of adsorptive hydrogen storage using UDF in fluent, *Physics Procedia*, vol 24, pp 793 – 800, (2012).
- [8]. S. Aymen, S. Ben Nasrallah : Etude des réacteurs Métal - Hydrogène, Rapport préliminaire de thèse, (2010/2011).
- [9]. Recommandations du World Energy Congress, Daegu, Corée du Sud - (Octobre 2013).
- [10]. B. Delhomme, P. de Rango : Couplage d'un réservoir d'hydrure de magnésium et d'une source externe de chaleur, Thèse de Doctorat - (Juin 2012).
- [11]. A. Chaise : Etude expérimentale et numérique de réservoirs d'hydrure de magnésium, Thèse de Doctorat - (Décembre 2008).
- [12]. S. Garrier, P. de Rango, P. Marty : Conception et simulation d'un réservoir à hydrure de magnésium avec récupération de la chaleur de réaction à l'aide d'un matériau à changement de phase, Thèse de Doctorat - (Janvier 2011).
- [13]. G. Momen, M. K. Hassouni : Modélisation numérique et étude expérimentale du stockage de l'hydrogène dans des réservoirs à lit fixe adsorbants, Thèse de Doctorat - (Novembre 2006).
- [14]. C. Juliana (Petrache) Stan : Phases et nouveaux composés à base de magnésium pour le stockage de l'hydrogène, Thèse de Doctorat - (Octobre 2008).
- [15]. V. Artero, D. Fruchart, L'hydrogène : Une énergie propre pour demain ?, *Revue Pour la science*, n°405 - (Juillet 2011).
- [16]. T. Maeda, M. Tange, A. Nakano, H. Ito, Y. Kawakami, M. Masuda, T. Takahashi: Experimental study of hydrogen storage with reaction heat recovery using metal hydride in a totalized hydrogen energy utilization system, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 36, pp 11767-1176, (2011).
- [17]. P. Marty : Phénomènes thermiques lors du stockage d'hydrogène dans des matériaux réversibles, Présentation du LEGI, (2007)
- [18]. Hydrogen Storage book (Technology Materials and Applications), édité par Taylor & Francis Group - (2013).

[19]. B. Delhomme, P. de Rango : Couplage d'un réservoir d'hydrure de magnésium et d'une source externe de chaleur, Thèse de Doctorat - (Juin 2012).

[20]. A. Chaise : Etude expérimentale et numérique de réservoirs d'hydrure de magnésium, Thèse de Doctorat - (Décembre 2008).

[21]. S. Garrier, B. Delhomme, P. de Rango, P. Marty , D. Fruchart S. Miraglia: A new MgH<sub>2</sub> tank concept using a phase-change material to store the heat of reaction, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 38, pp 9766-9771, 2013.

[22]. F. Askri, M. Ben Salah, A. Jemni, S. Ben Nasrallah : Heat and mass transfer studies on metal-hydrogen reactor filled with MmNi<sub>4.6</sub>Fe<sub>0.4</sub>, *In. J. of Hydrogen Energy*, vol. 34, pp. 6705 – 6711,( 2009).

[23]. R. Varin, T. Czujkon, Z. S. Wronski :Nanomaterials for Solid State Hydrogen Storage book (Fuel cells and hydrogen energy. Springer - ISBN 978-0-387-77711-5, (2009).

[24]. C.A. Chung, Ci-Siang Lin : Prediction of hydrogen desorption performance of Mg<sub>2</sub>Ni hydride reactors, *Int. J. of Hydrogen Energy*, vol 34, pp 9409 – 9423, (2009).

[25]. P. Marty, J.F. Fourmigue , P. De Rango, D. Fruchart, J. Charbonnier: Numerical simulation of heat and mass transfer during the absorption of hydrogen in a magnesium hydride, *Energy Conversion and Management*, vol 47 , pp 3632–3643, (2006).

[26]. A. Chaise, P. Marty, P. de Rango, D. Fruchart : A simple criterion for estimating the effect of pressure gradients during hydrogen absorption in a hydride reactor, *Int. J. of Heat and Mass Transfer*, vol 52 , pp 4564-4572, (2009).

[27]. H. Ben Mâad, F. Askri, S. Ben Nasrallah : Numerical investigation of heat and mass transfer during the desorption process of an Mg<sub>2</sub>Ni-H<sub>2</sub> reactor, *Int. J. of Hydrogen Energy*, vol 38, pp 4597 - 4610, (2013)

[28]. H. Dhaoua, S. Mellouli, F. Askri,A. Jemni, S. Ben Nasrallah, Experimental and numerical study of discharge process of metal–hydrogen tank, *International Journal of Hydrogen Energy* ,vol 32, pp 1922 – 1927, (2007).

[29]. C.A. Chung, C-S. Lin: Prediction of hydrogen desorption performance of Mg<sub>2</sub>Ni hydride reactors, *Int. J. of Hydrogen Energy*, vol 34, pp 9409 – 9423, (2009).

[30]. P. Muthukumar, S. V. Raman: Study of heat and mass transfer in MmNi<sub>4.6</sub>Al<sub>0.4</sub> during desorption of hydrogen, *Int. J. of Hydrogen Energy*, 35, 10811 – 10818, (2010)

[31]. M. Visaria, I. Mudawar : Experimental investigation and theoretical modeling of dehydrating process in high-pressure metal hydride hydrogen storage systems, *Int. J. of Hydrogen Energy*, vol 37, pp 5735-5749, (2012)

[32]. G. Hermosilla-Lara, Stockage de l'hydrogène par absorption sur charbon actif : Etude des effets thermiques lors de la charge dynamique d'un réservoir à lit fixe adsorbant, Thèse de Doctorat - (Février 2007).

[33]. R. Chahine, P. Bénard, E. Dundar, S. Ubaid , J. Xiao : Hydrogen Absorption Storage Systems From Molecular

Design to System Design , WHEC 2012, June 3-7, Toronto, Canada

[34].Patankar, S.V. : Numerical heat transfer and fluid flow, Hemisphere, Washington. DC, (1980)

[35]. S. Bories, M. Prat : Transferts de chaleur dans les milieux poreux, Techniques de l'Ingénieur, traité Génie énergétique, B 8 250 – 1.

[36]. P. Muthukumar, S. V Ramana : Numerical simulation of coupled heat and mass transfer in metal hydride-based hydrogen storage reactor, *Journal of Alloys and Compounds*, vol 472, pp 466 – 472, (2009).

## NOMENCLATURE

			<b>Indices et exposants</b>	
$C_p$	chaleur spécifique, J/kg/K			
$\Delta H$	enthalpie molaire de réaction dans les conditions standards, J/mol	$e$	énergie	
$K$	Perméabilité, $m^2$	$eff$	effective	
$M$	masse molaire de l'hydrogène, kg/mol	$eq$	équilibre	
$P$	pression d'hydrogène, Pa	$F$	final	
$P_{eq}(T)$	pression d'équilibre, Pa	$g$	gaz	
$R$	constante universelle des gaz = 8.314 J/mol.K	$H$	hydrogène	
$S$	terme source de réaction, mol/m.s	$M$	métal	
$\Delta S$	entropie molaire de réaction dans les conditions standards, J/mol.K	$m$	masse	
$wt$	pourcentage massique maximum d'hydrogène dans le matériau, %	$MH$	métal hydride	
<b>Symboles grecs</b>			$0$	initial
$\alpha$	taux d'adsorption	$p$	pente	
$\lambda$	conductivité thermique, W/m.K	$s$	solide	
$\varepsilon$	porosité	$ss$	solide à saturation	
$\rho$	masse volumique, kg/m <sup>3</sup>			
$\varphi$	facteur de forme			
$d\alpha/dt$	Vitesse d'hydruration, s <sup>-1</sup>			