Coefficient de transfert gaz-liquide en écoulement de Taylor réactif : une donnée-clé pour les opérations intensifiées de captage de gaz.

Emilien BOURDON[1], David ROUZINEAU[2], Anne-Marie BILLET[2], Carine JULCOUR[2], Céline VOLPI[1], Renaud CADOURS[1]

[1] : TotalEnergies SE, 2 Place Jean Millier 92078 –Paris La Défense Cedex – FRANCE

[2] : Laboratoire de Génie Chimique, Université de Toulouse, CNRS, INP, UPS, Toulouse, France

Contexte de l'étude et objectif

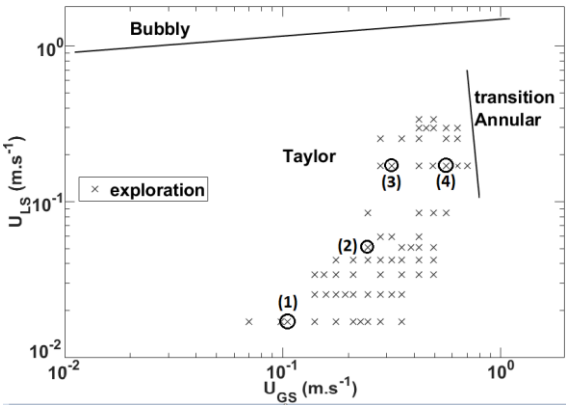
La capture du CO_2 présent dans le gaz naturel ou les effluents industriels est un enjeu économique et écologique majeur. Elle est conventionnellement réalisée par absorption réactive du gaz par un solvant (solution aqueuse basique) dans des colonnes à garnissage. Cette opération est envisagée dans cette étude en écoulement de Taylor en millicanal (Figure 1), en vue d'une technologie intensifiée pour le lavage de gaz. En effet, ce type d'écoulement offre une très bonne efficacité de transfert entre phases (le coefficient k_L pouvant atteindre 10^{-3} m.s^{-1} [Haase et al., 2016]), et une perte de charge linéique de quelques mbar seulement. De plus, le caractère structuré de cet écoulement permet l'évaluation directe de l'efficacité de nouveaux solvants pour la capture de CO_2. Pour cela, la mise en place de l'absorption réactive du CO_2 en écoulement de Taylor nécessite la connaissance de la dynamique de transfert entre les deux phases. Pour ce type d'écoulement, les corrélations disponibles dans la littérature ont été établies en absorption physique ou chimique. Dans ce dernier cas, l'importance relative des contributions respectives des bouchons de liquide entre les bulles et des films de lubrification est modifiée ; cependant le facteur d'accélération est rarement estimé. Ainsi, les coefficients k_L prédits par les corrélations existantes diffèrent d'un facteur pouvant dépasser 10. Dans cette étude, l'absorption du CO_2 dans de la soude est étudiée dans un canal en verre de 2 mm de diamètre, dans des conditions opératoires variées, afin d'obtenir des valeurs spécifiques à ce système réactif.

Figure 1 : Écoulement de Taylor en canal de section circulaire de 2 mm de diamètre interne, avec absorption réactive de CO_2 pur par de la soude ($Q^G_{CO_2}$ = 1,77 L/h, Q^L_{NaOH}= 0,4 kg/h, [OH-]$_0$ = 0,5 N)

Démarche expérimentale

La technique d'ombroscopie est utilisée dans cette étude : à l'entrée du canal, une fenêtre de visualisation d'environ 10 cm de long est éclairée par un panneau de LEDs et filmée par une caméra rapide (sCMOS PCO Edge 5.5) selon un dispositif qui minimise la distorsion optique. Le volume des bulles diminue tout au long de leur progression dans le canal, en lien direct avec le flux de CO_2 absorbé. Les images de bulles donnent également accès à l'aire interfaciale volumique, à la vitesse des bulles, et à la rétention gaz. Deux difficultés majeures sont à prendre en compte : (1) selon les conditions opératoires (taille initiale des bulles, concentration initiale en soude), la variation du volume des bulles peut être non mesurable si elle est non significative, ou au contraire trop rapide; (2) l'absorption de CO_2 étant accélérée par la réaction chimique ayant lieu dans la phase liquide, le facteur d'accélération doit être déterminé localement pour donner accès au coefficient de transfert physique.

Pour cela, une cartographie des écoulements de Taylor a été établie en faisant varier les débits des phases et la concentration de soude (Figure 2).



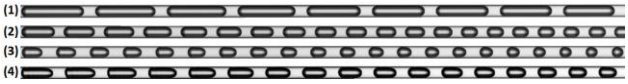


Figure 2 : Cartographie des écoulements de Taylor (système CO_2 pur-NaOH, d_{canal}=2 mm) : identification des conditions opératoires permettant l'évaluation de k_L par ombroscopie.

Pour chaque condition opératoire retenue, plusieurs séquences successives de 4000 images de l'écoulement sont enregistrées ($f_{acquisition} \leq 240$ Hz). Selon le nombre de bulles présentes dans la fenêtre de visualisation, celle-ci est discrétisée en secteurs (< 2 cm) sur lesquels les grandeurs caractéristiques des bulles sont obtenues par analyse d'images avec le logiciel MATLAB®, et moyennées dans le temps. Le flux de CO_2 absorbé est alors décrit par l'équation-bilan (1) :

$$\frac{dV_B}{dz} = -\frac{R \cdot T}{U_{TP}} \cdot Ek_L \cdot S_B \cdot H_{CO_2 \to NaOH} \qquad (1)$$

où U_{TP} est la vitesse globale de l'écoulement diphasique, S_B la surface d'une bulle à la cote z, E le facteur d'accélération du transfert, et $H_{CO2 \to NaOH}$ la constante de Henry du système gaz-liquide considéré. De cette équation et de l'évolution axiale du volume de bulle est extraite une valeur moyenne du produit $E.k_L$; le facteur E, lié aux réactions (R1) et (R2) entre le CO_2 dissous et la soude, est calculé sur la base du nombre adimensionnel de Hatta, de la concentration locale en NaOH, et des relations explicitées dans les travaux de Krauβ et Rzehak [Krauβ et Rzehak, 2017].

$$CO_2(aq) + HO^- \to HCO_3^- \qquad (R1)$$

$$HCO_3^- + HO^- \leftrightarrow CO_3^{2-} + H_2O \qquad (R2)$$

Pour chaque expérience menée, la valeur de k_L (moyenne sur la fenêtre de visualisation) est déduite.

Premiers résultats, perspectives

Les valeurs de k_L obtenues se situent entre 1.10^{-5} et $2,5.10^{-4}$ m.s^{-1}, suivent une évolution croissante attendue avec la vitesse globale de l'écoulement diphasique et sont en général plus faibles pour les bulles les plus longues. Les modèles de la littérature (par exemple les modèles proposés par van Baten et Krishna [van Baten and Krishna, 2004] : transfert diffusif en film mince, ou modèle de pénétration appliqué aux interfaces proches des bouchons agités) ne parviennent cependant pas à prédire les valeurs expérimentales de k_L obtenues dans cette étude.

Références bibliographiques

Haase, S.; Murzin D.Y.; Salmi T., Review on hydrodynamics and mass transfer in minichannel wall reactors with gas–liquid Taylor flow. *Chemical Engineering Research and Design*, 2016, vol. 113, 304-329.

Krauβ, M.; Rzehak, R., Reactive absorption of CO2 in NaOH: Detailed study of enhancement factor models. *Chemical Engineering Science*, 2017, 166, 193-209.

van Baten, J.; Krishna, R., CFD simulations of mass transfer from Taylor bubbles rising in circular capillaries. *Chemical Engineering Science*, 2004, vol. 59, no 12, 2535–2545.