

Transport de gaz à travers un échantillon poreux induit par un gradient de température en régime raréfié : Analyse expérimentale

Gas transport through a porous sample induced by a temperature gradient in a rarefied regime : Experimental analysis

Junhao TU, Emil GRIGOROV, Pierre PERRIER, Frédéric TOPIN, Irina GRAUR*

Aix-Marseille Université, IUSTI, CNRS UMR 7343, Marseille, France

* irina.martin@univ-amu.fr

Résumé - Nous étudions expérimentalement l'écoulement engendré par un gradient de pression en fonction du degré de raréfaction ainsi que celui induit par un gradient de température. Nous avons mis en évidence les limites de l'utilisation des modèles existants pour cette configuration expérimentale et proposons une méthode de mesure permettant de pallier aux défauts d'isothermie de notre dispositif. We experimentally study the flow generated by a pressure gradient as a function of the degree of rarefaction, as well as that induced by a temperature gradient. We have highlighted the limitations of using existing models for this experimental setup and propose a measurement method to overcome the isothermal defects of our apparatus.

1. Introduction

La Transpiration Thermique (TTh) ou thermal creep, est un phénomène de transport de gaz induit par un gradient de température le long des parois d'un canal, dans lequel les molécules de gaz se déplacent du côté froid vers le côté chaud. Identifié par Reynolds [12], puis étudié par Maxwell et Knudsen [11], [9], ce phénomène suscite un regain d'intérêt dans les systèmes micro- et nano-métriques, car il est plus important lorsque le libre parcours moyen des molécules devient comparable à la dimension du système. L'émergence des MEMS a conduit au développement de pompes de Knudsen utilisant la TTh comme moteur de l'écoulement, sans pièces mobiles, fonctionnant sans vibrations et présentant une longue durée de vie [10], [2]. La partie essentielle de pompes de Knudsen est un milieu poreux soumis à un gradient de température. Pour un gaz donné, les performances de ces pompes dépendent directement de la géométrie d'ensemble de la partie poreuse ainsi que du gradient de température imposé. La partie poreuse est souvent décrite comme un faisceau de capillaires [6]. L'analyse de la distribution de la température est aussi importante que la caractérisation géométrique du milieu poreux, pour améliorer le fonctionnement de ce type de pompes. Malgré le développement de modèles théoriques avancés, [15], [16], [4], [3], l'étude de la TTh reste encore très empirique et donc dépendante de données expérimentales précises. En particulier, les incertitudes dans la distribution de température affectent les mesures de débit et les analyses subséquentes. Du fait des contraintes expérimentales importantes, les études systématiques examinant la relation entre les conditions thermiques du système et la transpiration thermique restent encore limitées [4], [7].

Nous nous sommes tout d'abord intéressés au cas d'un microcanal isolé [14] de géométrie bien caractérisée. La température du côté chaud de l'échantillon était maintenue par une résistance électrique chauffante, avec le côté froid refroidi en convection naturelle à l'air ambiant. Le



Figure 1 : Échantillon utilisé dans ce travail. Gauche : extrémité d'une fibre et ses 60 microcanaux de diamètre $5.95\mu\text{m}$; droite : monolithe de 60 fibres de 5.9 cm de longueur fixé entre deux échangeurs sur le banc d'essais.

même type de contrôle thermique a aussi été appliqué pour étudier la TTh dans une céramique poreuse [5], pour laquelle la caractérisation géométrique est délicate.

L'échantillon utilisé ici comporte un nombre important de microcanaux de géométrie maîtrisée. L'instrumentation et les dispositifs de contrôle thermique de l'installation ont été améliorés afin d'obtenir une meilleure quantification de l'effet de TTh. Nous nous intéressons plus particulièrement à la caractérisation du champ de température au sein du dispositif expérimental, car celle-ci est essentielle pour établir des comparaisons fiables avec le modèle théorique proposé précédemment [15], [16], [3]. Comparé à nos travaux précédents notre échantillon actuel possède une porosité très faible avec un diamètre des micro-canaux très petit, ce qui induit des durées d'expérience très longues (plus de 100 fois par rapport à nos études précédentes), rendant le contrôle précis de la température du dispositif expérimental plus difficile. Parmi les travaux expérimentaux réalisés avec une configuration similaire [13], [14], [18], seules les températures aux extrémités de l'échantillon sont usuellement contrôlées et mesurées et, de manière générale, peu d'informations sont disponibles concernant l'homogénéité et la stabilité des températures des réservoirs.

L'objectif de ce travail est de mesurer les propriétés de Transpiration Thermique pour un échantillon donné. Il s'agit ainsi d'estimer l'impact des fluctuations de température des réservoirs, par comparaison entre les mesures expérimentales et le modèle théorique et de déterminer les conditions d'applicabilité de ce modèle pour la suite de l'étude.

2. Dispositif expérimental

L'échantillon est composé de 60 fibres optiques (Photonics, IXF-ACF), de longueur 5.9 cm insérées dans un tube de verre. L'espace entre les fibres est comblé avec de la résine époxy (Fig.1). Chaque fibre contient 60 microtubes circulaires de diamètre $5.95\mu\text{m}$, nous obtenons ainsi un faisceau parallèle de 3600 canaux. Cette configuration permet d'augmenter le débit par rapport au cas d'un tube unique [13]. Le monolithe obtenu est maintenu entre deux échangeurs en cuivre, permettant de contrôler la température de chacune de ses extrémités. Sa surface latérale est isolée.

Lors de l'étude préliminaire, les profils de température mesurés par caméra infrarouge, ainsi que la simulation directe de la géométrie expérimentale, ont montré que : (i) les profils radiaux de température au niveau des échangeurs sont plats, (ii) le profil axial le long de l'échantillon est linéaire; et (iii) les températures à ses extrémités sont identiques à celles des échangeurs. Les deux réservoirs sont connectés par une vanne (Fig. 2), initialement ouverte. A l'état stationnaire,

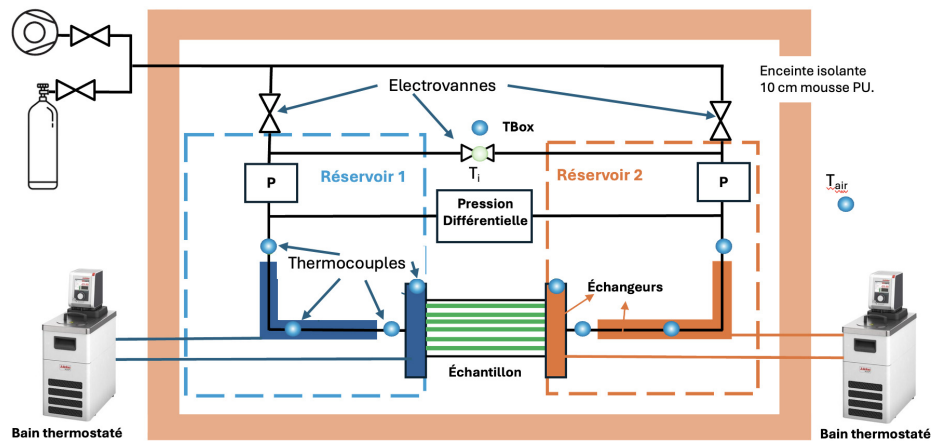


Figure 2 : Schéma du banc expérimental. Les échangeurs, respectivement chaud et froid, sont surlignés en orange et bleu. La position des thermocouples (en surface des tubes) est indiquée par les points bleus. La position de la température calculée T_i est indiquée par un point bleu.

la pression est homogène et une différence de température est imposée entre les deux côtés de l'échantillon, ce qui génère un écoulement stationnaire. Les réservoirs sont ensuite isolés par la fermeture de la vanne. Le gaz continue de s'écouler au travers de l'échantillon, du côté froid vers le côté chaud, par transpiration thermique. Ce processus génère une différence de pression entre les réservoirs, induisant un contre-écoulement de type Poiseuille dans l'échantillon (la durée d'expérience conduisant à un régime quasi-stationnaire). L'interaction entre ces deux mécanismes détermine le transfert massique net à travers les microcanaux.

Le banc expérimental, Fig. 2, est constitué d'une enceinte isolante (mousse polyuréthane d'épaisseur 10 cm) emplies de billes de polystyrène, afin de découpler l'expérience de l'ambiance extérieure. Des échangeurs, reliés à des bains thermostatés, (stabilité 0.03°C), sont placés aux extrémités de l'échantillon et sur une partie des tubes constituant les réservoirs. Ceux-ci sont conçus pour minimiser le volume total de l'expérience ($\approx 40 \text{ cm}^3$ de chaque côté), pour réduire la durée de chaque manipulation. Ces volumes restent toutefois très supérieurs au volume du gaz dans l'échantillon ($\approx 6 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3$), afin de maintenir des conditions quasi-stationnaires. Les deux réservoirs sont disposés symétriquement par rapport au capteur différentiel et à l'électrovanne située au milieu du banc.

La pression dans chaque réservoir est mesurée à l'aide d'un capteur capacitif à membrane CDG (INFICON CDG045D, 1000 Torr), tandis qu'un capteur différentiel (MKS 226B Baratron, $[-100, 100] \text{ Pa}$) enregistre la différence de pression entre les deux réservoirs. Comme dans les travaux [7] ou [17], les réservoirs sont constitués par des tubes élancés, ce qui induit une surface spécifique d'échange élevée et donc des échanges potentiellement élevés avec l'extérieur. La question de l'homogénéité et de la stabilité de la température des réservoirs est donc cruciale.

Deux séries de mesures, réalisées avec du CO_2 , font l'objet de cette étude. La première série, isotherme à température ambiante, et répartie sur la plage de pression absolue 13.08-114.4 kPa, vise à déterminer la perméabilité de l'échantillon et comporte 62 mesures. La seconde série, avec un écart de température aux bornes de l'échantillon d'environ 40 K, réalisée sur la même plage de pression, comporte 18 mesures et vise à caractériser les propriétés de transpiration thermique.

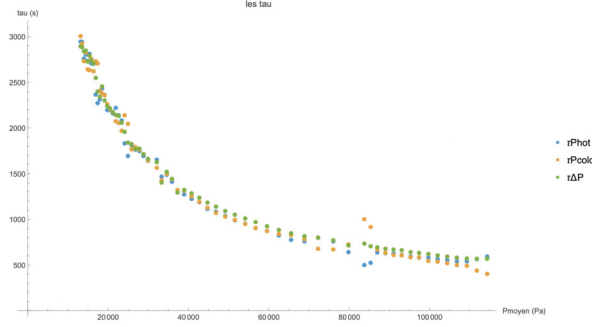


Figure 3 : Temps caractéristique des écoulements pour la mesure de perméabilité. 3 mesures utilisant respectivement le fit de la pression coté chaud, coté froid et de la différence de pression sont présentées ici et comparées. Les résultats sont identiques

Après l'analyse de données mesurées, plusieurs limites et difficultés techniques ont été identifiées sur banc actuel :

- En raison de l'encombrement du banc, chaque réservoir n'a pu être que partiellement thermalisé ;
- Le placement des thermocouples s'est avéré insuffisant pour obtenir une mesure précise de la température des réservoirs.
- Le thermocouple T_{Box} , situé au point de connexion entre les réservoirs, a dysfonctionné durant la campagne de mesure présentée ici.

3. Cas isotherme : mesure de la loi de perméabilité

Nous pouvons évaluer le débit dû au gradient de pression en utilisant la première série des mesures isothermes. Pendant cette série, une différence de pression initiale est imposée entre les deux réservoirs, avec $p_c < p_h$. Après l'ouverture de la vanne solénoïdale, les pressions évoluent dans chaque réservoir entre le temps t_0 et t_f . Les variations des pressions mesurées (chaud réservoir et leur différence) sont d'abord fittées sous la forme :

$$\begin{aligned} p_c(t) &= p_c(t_0) + (p_c(t_f) - p_c(t_0)) \exp(-(t - t_0)/\tau_c), \\ p_h(t) &= p_h(t_0) + (p_h(t_f) - p_c(t_0)) \exp(-(t - t_0)/\tau_h), \end{aligned} \quad (1)$$

où τ_c et τ_h sont les temps caractéristiques de coté froid et chaud, respectivement, voir Fig. 3. Le débit isotherme dû au gradient de pression est calculé ensuite comme :

$$\dot{M}_p^c = \frac{V_c}{\mathcal{R}\bar{T}} \frac{dp_c(t)}{dt}, \quad \dot{M}_p^h = -\frac{V_h}{\mathcal{R}\bar{T}} \frac{dp_h(t)}{dt}, \quad (2)$$

où $\bar{T}$ est la température moyenne du banc expérimental pour chaque expérience.

Notre échantillon est composé d'un faisceau de fibres dont les dimensions sont connues : le nombre de fibres ainsi que le diamètre de chaque microcanal au sein d'une fibre. Néanmoins, pour calculer le débit dû au gradient de pression, nous utilisons ici l'approche développée pour les milieux poreux [1], plutôt que l'expression de l'écoulement de Poiseuille dans un tube avec les conditions de glissement [18], afin d'évaluer simultanément l'étanchéité de notre expérience. Le débit engendré par un gradient de pression peut être lié à la perméabilité de l'échantillon comme suit :

$$\dot{M}_p = -\frac{K_{app} S (p_c^2 - p_h^2)}{2\mu L \bar{T} \mathcal{R}}, \quad (3)$$

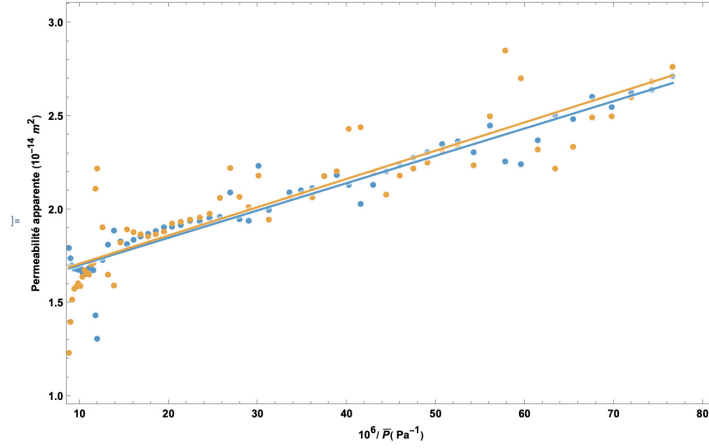


Figure 4 : Permeabilité de l'échantillon en fonction de l'inverse de la pression moyenne (62 mesures entre 0.1 et 1 bar), orange pour le débit dérivé des données coté chaud, bleu du coté froid

où S est la section du tube en verre avec le faisceau des fibres, L sa longueur et K_{app} est la perméabilité "apparente" qui dépend de la pression et peut s'écrire sous la forme proposée par Klinkenberg [8] pour tenir compte des effets de raréfaction :

$$K_{app} = K_D \left(1 + \frac{\beta}{p_m}\right), \quad (4)$$

où K_D is la perméabilité de Darcy, β est le coefficient de Klinkenberg, $p_m = (p_c + p_h)/2$ est la pression moyenne entre les deux réservoirs. Les deux paramètres, K_D et β , ont été mesurés à partir d'une série d'une soixantaine d'expériences de perméabilité isotherme (à température ambiante) réalisées à des pressions moyenne comprises entre 10^4 et 10^5 Pa. Le débit a été calculé 2 fois en utilisant la masse coté "chaud" et coté "froid", Eq. (2), pour exploiter les possibilités de contrôle du dispositif. Les valeurs retenues sont : $K_D = 1.56 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2$ et $\beta = 9.39 \cdot 10^3 \text{ Pa}$.

4. Évaluation de la température des réservoirs

Six thermocouples (TC) sont disposés sur la surface extérieure des tubes, autour et sous les échangeurs couvrant ces derniers, deux sont disposés sur les support de l'échantillon. Après étalonnage, le bruit de mesure des TC est de l'ordre de 0.05 K, et la précision sur la mesure de la température absolue est de 1 K. L'évaluation de la température moyenne du réservoir est réalisée par intégration du profil reconstruit à partir des mesures. La température dans chaque section instrumentée du réservoir est supposée homogène et égale à la valeur mesurée par le thermocouple correspondant. Notons que les vannes et capteurs sont modélisés par des longueurs de tube équivalentes, calculées à partir de leurs volumes internes. La différence de température aux bornes de l'échantillon est obtenue à partir des thermocouples placés sur les échangeurs qui le maintiennent. La température des sections du réservoir (cf. Fig. 2) non thermalisées a, dans un premier temps, été supposée égale à la température mesurée dans l'isolant environnant. Cependant, les résultats obtenus sont manifestement erronés, comme illustre la figure 5, qui montre une décroissance apparente de la masse totale de gaz dans le banc expérimental. Sachant que l'étanchéité du dispositif a été vérifié préalablement, et que la pression globale est toujours inférieure à la pression atmosphérique, une telle diminution de la masse est physiquement impossible. La variation observée est donc attribuée à des artefacts liés à la mesure de la température

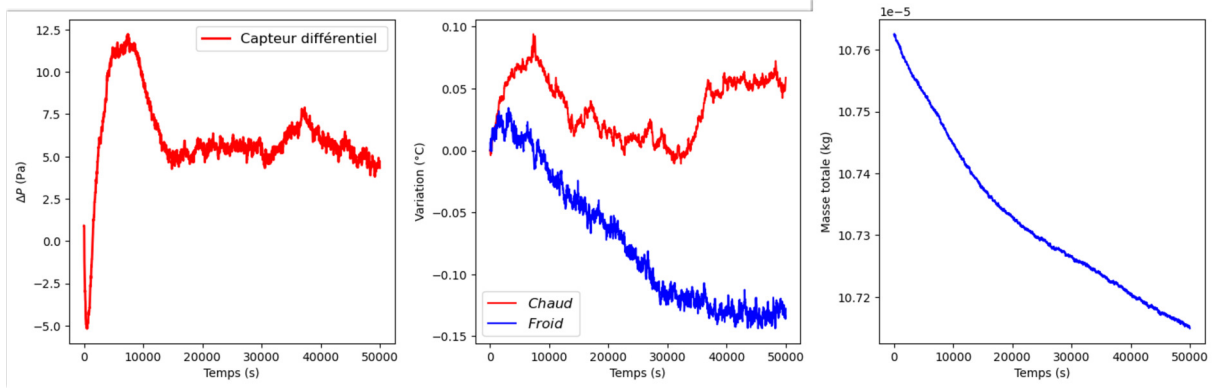


Figure 5 : Un exemple d'une mesure avec une différence de température entre les deux réservoirs de 40 K, une pression initiale de 82 kPa. (a) : Différence de pression entre deux réservoirs ; (b) Variation de la moyenne des températures des réservoirs ; (c) Evolution de la masse apparente du gaz dans le dispositif.

moyenne des réservoirs. L'analyse du système après démontage a permis d'identifier le thermocouple T_{Box} comme origine principale de cet effet. Nous avons également essayé d'utiliser d'autres points de mesure secondaires pour pallier à ce dysfonctionnement, sans succès.

Pour dépasser cette difficulté expérimentale, nous nous sommes appuyés sur la qualité de l'étanchéité du banc expérimental (éprouvée à de multiples reprises antérieurement) et avons choisi d'évaluer la température de jonction des deux réservoirs T_i à partir de la conservation de la masse totale de gaz. Notons que cette approche nous prive d'un moyen de contrôle - initialement prévu - de l'étanchéité et constitue donc une hypothèse dans ce travail.

La conservation de la masse dans le système entre le début de l'expérience, t_0 , et le temps t peut s'écrire en forme :

$$\frac{p_c(t_0)V_c}{T_c(t_0) + T_i(t_0)} + \frac{p_h(t_0)V_h}{T_h(t_0) + T_i(t_0)} = \frac{p_c(t)V_c}{T_c(t) + T_i(t)} + \frac{p_h(t)V_h}{T_h(t) + T_i(t)}, \quad (5)$$

où V_c et V_h sont respectivement les volumes des réservoirs froid et chaud, T_c , T_h et p_c , p_h sont les températures et pressions mesurées dans les parties froides et chaudes. Pour la valeur de la température dans la jonction entre les deux réservoirs au début de l'expérience, $T_i(t_0)$, nous avons supposées que elle est égale à la température moyenne, $(T_c(t_0) + T_h(t_0))/2$. L'équation (5) est ensuite résolue pour la température $T_i(t)$ à chaque instant t . Cette température assure donc la conservation de la masse dans le système. La température "conservative" dans chaque réservoir à l'instant t , $T_{c,h}^*(t)$, est donc obtenue à partir de l'expression suivante :

$$T_{c,h}^*(t) = (\bar{T}_{c,h}(t) + T_i(t))/2, \quad (6)$$

où $\bar{T}_{c,h}$ est la température moyenne (sur la quatre thermocouples pour chaque réservoir, $T_i(t)$ est la température de jonction entre les réservoirs obtenue en résolvant l'équation (5).

5. Débit de transpiration thermique

Dans notre expérience, les deux réservoirs sont maintenus à des températures différentes et initialement à la même pression, donc le gaz s'écoule à façon continue de coté froid vers le coté chaud. Après la fermeture de la vanne (électrovanne solénoïdale sans volume mort, Fig. 2), la pression dans le réservoir chaud commence à monter et engendre un écoulement dans le sens contraire, du chaud vers le froid, l'écoulement de Poiseuille. Les deux débits,

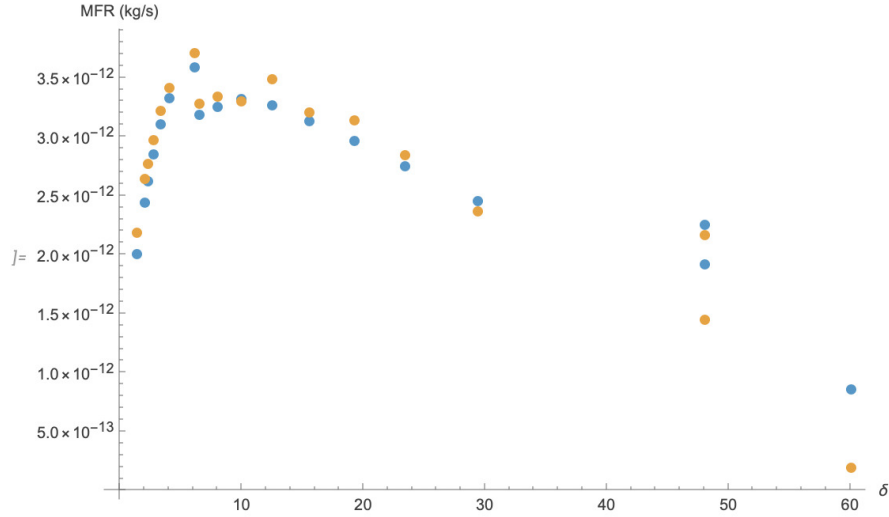


Figure 6 : Débit de thermal creep en fonction de l'inverse de la pression moyenne.

celui dû au gradient thermique, $\dot{M}_T$, et celui dû au gradient de la pression, $\dot{M}_p$, s'égalisent au cours du temps et le débit total à travers l'échantillon devient asymptotiquement nul, $\dot{M} = 0$. Notons que lorsque des fluctuations de température des réservoirs se produisent, cela engendre des variations des pressions et donc des fluctuations du débit total. Nous évaluons le débit de thermal creep à partir de l'équation suivante :

$$\dot{M}_T = \dot{M} - \dot{M}_p. \quad (7)$$

Les variations de débits dues aux variations de pression se retrouvent naturellement dans les 2 termes de droite et s'annulent ainsi. Le débit engendré par le gradient de température (moyenné sur les 30000 dernières secondes de chaque expérience), $\dot{M}_T$, est présenté sur la Fig. 6 en fonction de l'inverse de la pression moyenne ; l'allure obtenue est similaire aux données théoriques.

6. Conclusion

Les lois d'écoulement associées respectivement aux effet de température et de pression d'un échantillon composé de faisceau de 3600 microtubes a été analysé expérimentalement. Les mesures de débit engendré par un gradient de pression ont permis de déterminé la perméabilité apparente d'échantillon. L'analyse thermique du banc expérimental a permis de corriger l'absence d'informations sur la température dans une partie du système en utilisant la conservation de la masse dans le banc expérimentale. Finalement, le débit du CO₂ engendré par le gradient de température à travers de cette échantillon a été mesuré. L'approche développée dans ce travail permettra, à terme, la caractérisation complète d'échantillons de géométrie complexe et l'extension des approches développées pour les tubes aux milieux poreux.

Références

- [1] J. P. Bonnet, F. Topin, and L. Tadrist. Flow laws in metal foams : Compressibility and pore size effects. *Transport in Porous Media*, 73(2) :233–254, 2008.
- [2] Q. Cheng, Y. Qin, and Y. B. Gianchandani. A bidirectional Knudsen pump with 3D-printed thermal management platform. *Micromachines*, 12 :58, 2021.

- [3] I. Graur and F. Sharipov. Non-isothermal flow of rarefied gas flow through a long pipe with elliptic cross section. Microfluid and Nanofluid, 6(2) :267–275, 2008.
- [4] Y.-L. Han, E. P. Muntz, A. Alexeenko, and M. Young. Experimental and computational studies of temperature gradient-driven molecular transport in gas flows through nano/microscale channels. Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering, 11(1-2) :151–175, 2007.
- [5] M. V. Johansson, K. Shahrivar, H. Yamaguchi, F. Topin, P. Perrier, and I. Graur. Temperature gradient effects on gas flow through microporous media. Experimental Thermal and Fluid Science, 148 :110983, 2023.
- [6] M. V. Johansson, F. Testa, P. Perrier, J. Vicente, J. P. Bonnet, P. Moulin, and I. Graur. Determination of an effective pore dimension for microporous media. International Journal Heat and Mass Transfer, 142 :118412, 2019.
- [7] M. V. Johansson, H. Yamaguchi, P. Perrier, and I. Graur. Some properties of a gas flow submitted to a temperature gradient. International Journal of Heat and Mass transfert, 214 :124372, 2023.
- [8] L. J. Klinkenberg. The permeability of porous media to liquid and gases. Drilling and Production Practice, American Petroleum Institute, pages 200–213, 1941.
- [9] M. Knudsen. Die Gase der Molekularströmung und der inneren Reibungsströmung der Gase durch Röhren. Annalen der Physik, 333(1) :75–130, 1909.
- [10] J. Liu, N. K. Gupta, K. D. Wise, Y. B. Gianchandani, and X. Fan. Demonstration of motionless Knudsen pump based micro-gas chromatography featuring micro-fabricated columns and on-column detectors. Lab on a Chip, 11(20) :3487, 2011.
- [11] J. C. Maxwell. On stress in rarefied gases arising from inequalities of temperature. Phil. Trans. R. Soc. Lond., 170 :231–256, 1879.
- [12] O. Reynolds. On certain dimensional properties of matter in the gaseous state. Philos. Trans. R. Soc. London, 170 :727–845, 1879.
- [13] M. Rojas Cardenas, I. Graur, P. Perrier, and J. G. Méolans. Thermal transpiration flow : a circular cross-section microtube submitted to a temperature gradient. Phys. Fluids, 23 :031702, 2011.
- [14] M. Rojas-Cardenas, I. Graur, P. Perrier, and J. G. Méolans. An experimental and numerical study of the final zero-flow thermal transpiration stage. J Therm. Sci. Technol., 7 :437–452, 2012.
- [15] F. Sharipov. Rarefied gas flow through a long tube at any temperature ratio. J. Therm. Sci. Technol. A, 14(4) :2627–2635, 1996.
- [16] F. Sharipov and G. M. Kremer. Non-isothermal couette flow of a rarefied gas between two rotating cylinders. European Journal of Mechanics B/Fluids, 18(1) :121–130, 1999.
- [17] J. Wilson, , K. L. Walton, E. L. Tipton, T. K. Ghosh, R. V. Tompson, and S. K. Loyalka. Measurements of He-Ar, He-N₂, and He-Air thermal creep slip and accommodation coefficients at high temperatures. Journal of Vacuum Science & Technology B, 41(5), 2023.
- [18] H. Yamaguchi, M. Rojas-Cardenas, P. Perrier, I. Graur, and T. Niimi. Thermal transpiration flow through a single rectangular channel. Journal of Fluid Mechanics, 744 :169–182, 2014.

Remerciements

Les auteurs expriment leur gratitude au support financier du projet ANR TEGTIC, ANR-23-CE51-0055-01.