

Etude expérimentale et numérique d'un module de stockage thermique par chaleur latente.

Kevin MERLIN^{1,2*}, Jérôme SOTO², Didier DELAUNAY¹, Luc TRAONVOUEZ³

¹Laboratoire de Thermocinétique de Nantes, Polytech²Nantes – UMR 6607
La Chantrerie, rue Christian Pauc – 44306 Nantes Cedex 3

²Institut Catholique d'Arts et Métiers de Nantes
35 avenue du Champ de Manœuvres, 44470 Carquefou

³Insula France

57 rue des Vignerons, 44220 Couëron

*(auteur correspondant : kevin.merlin@icam.fr)

Résumé – Le stockage par chaleur latente est une technique très efficace en raison de la forte densité de stockage thermique des Matériaux à Changements de Phase (MCP). Cependant, ces matériaux possèdent des conductivités thermiques faibles qui limitent leur usage seul pour des applications industrielles à plusieurs cycles par jour. L'objectif de cette communication est de présenter un dispositif expérimental de stockage thermique utilisant un matériau à changement de phase associé à une structure conductrice ayant pour but l'amélioration du transfert thermique dans le matériau. Le dispositif expérimental est constitué d'un tube échangeur dans lequel circule un fluide caloporteur et autour duquel est placé le MCP. Une étude des caractéristiques thermophysiques de ce matériau « composite » est détaillée. Une augmentation de la conductivité thermique du matériau de l'ordre de 100 fois supérieure à celle du MCP seul est mesurée. Le coefficient de transfert thermique entre le fluide caloporteur et le MCP obtenu est supérieur à $3000 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ et confirme l'intérêt d'un tel dispositif de stockage pour des procédés industriels à plusieurs cycles par jour. Un modèle numérique permettant la simulation du transfert thermique au sein d'un tel matériau est mis au point par méthode enthalpique en géométrie axisymétrique. Il est comparé à des résultats expérimentaux et est utilisé pour la détermination de l'influence de la résistance de contact entre le tube et le matériau.

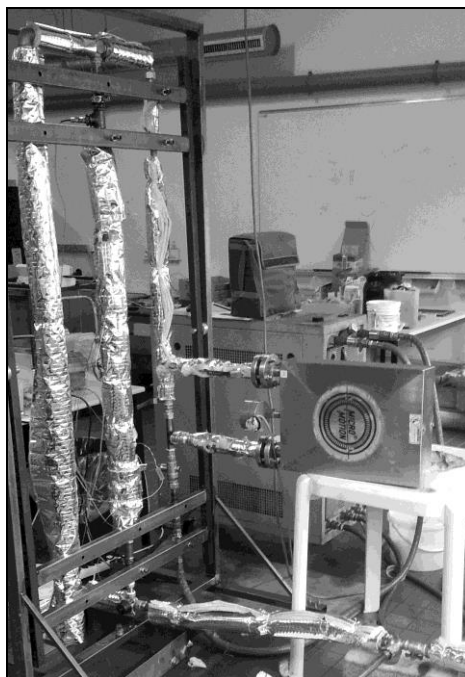


Figure 1 : Photo du dispositif de stockage expérimental

Nomenclature

T	température, K	f	fraction fondue
h	enthalpie massique, $J.kg^{-1}$	L_f	chaleur latente de fusion, $J.kg^{-1}$
C	capacité thermique massique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$	N	nombre de pas de temps
h_{ech}	coefficient d'échange, $W.m^{-2}.K^{-1}$	<i>Symboles grecs</i>	
R	résistance thermique de contact, $K.W^{-1}$	λ	conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$
r	rayon du tube, m	ρ	masse volumique, $kg.m^{-3}$
t	temps, s		

1. Introduction

Dans le contexte actuel, la maîtrise de l'énergie est au centre des attentions. Nous nous intéressons ici à un stockage de l'énergie sous forme de chaleur, plus particulièrement pour des applications industrielles. L'objectif de l'étude est de dimensionner un module de récupération d'énergie fatale adaptable à différents types de procédés industriels. La méthode de stockage utilisée dans cette communication est un stockage par chaleur latente en raison des températures d'utilisation visées, du degré de maturité de cette technique, mais aussi de la densité de stockage thermique élevée des matériaux à changement phase (MCP), en comparaison d'un stockage par chaleur sensible. De nombreuses applications déjà existantes intègrent des matériaux à changement de phase, telles que la régulation thermique dans le bâtiment, le stockage d'énergie d'origine solaire, la régulation thermique de systèmes électroniques, etc. Généralement, les applications utilisant des MCP ont lieu sur des cycles assez longs, comme par exemple le stockage d'origine solaire ayant une période de vingt-quatre heures. La plupart des applications industrielles intègrent plusieurs cycles par jour et des quantités d'énergie pouvant être considérables, impliquant alors des coefficients de transfert élevés. Cependant, l'inconvénient majeur des MCP réside dans leur faible conductivité thermique réduisant alors leur intérêt pour un stockage appliqué à des procédés industriels. Il existe cependant des méthodes permettant d'intensifier le transfert thermique de ces matériaux telles que l'amélioration de la surface d'échange ou encore l'amélioration de la conductivité thermique par ajout de particules conductrices ou l'intégration du MCP dans une structure conductrice. En accord avec les différents types d'échangeurs précédemment testés dans nos travaux [1], la géométrie intégrant une matrice de graphite naturel expansé (GNE) imprégné par un matériau à changement de phase est retenue, celle-ci présentant un coefficient de transfert thermique entre un fluide caloporteur et le MCP supérieur à $3000 W.m^{-2}.K^{-1}$, une valeur cohérente pour des applications industrielles. L'étude thermique du matériau composite utilisé est réalisée afin de comprendre les transferts intervenant dans ce matériau, et par la suite de pouvoir simuler numériquement les résultats obtenus expérimentalement sur un banc d'essai.

2. Dispositif expérimental et caractérisation du matériau

2.1. Montage expérimental

Le montage expérimental permet la circulation d'un fluide caloporteur dans des conduites en cuivre. Il est composé d'un thermorégulateur TOOL TEMP TT180, d'un radiateur et du module de stockage intégrant le MCP. De plus, le circuit est muni d'un by-pass permettant la circulation ou non du fluide dans le module de stockage. Le module de stockage est muni d'un tube en cuivre dans lequel le fluide caloporteur circule, et autour duquel est placé le matériau à changement de phase. Ce dernier est imprégné dans une structure conductrice en graphite naturel expansé afin d'améliorer la conductivité thermique du mélange et ainsi le

coefficient de transfert thermique entre le fluide et le MCP. Le matériau composite ainsi réalisé sous forme de couronne et placé autour du tube présente un diamètre intérieur de 22 mm (diamètre extérieur du tube) et un diamètre extérieur de 54 mm. Plusieurs couronnes sont assemblées autour du tube pour une longueur totale de 0,9 m, soit une quantité de MCP de 1,36 kg.

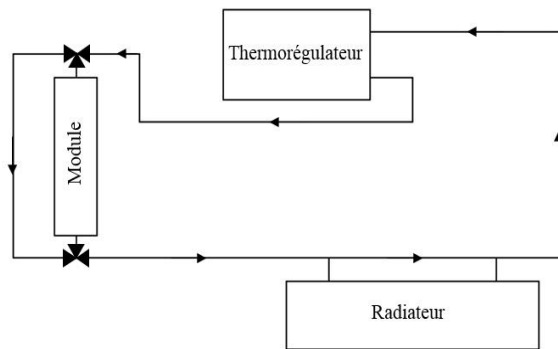


Figure 2 : Schéma du montage expérimental



Figure 3 : Photo d'une couronne de GNE+MCP placée autour du tube de cuivre

2.2. Caractérisation du matériau

Le choix du matériau à changement de phase est une étape importante dans la conception du module de stockage, la quantité d'énergie récupérable étant directement liée à la nature du matériau. La mesure en calorimétrie différentielle à balayage (DSC) est effectuée à l'aide d'une TA Instruments Q200 et permet la détermination d'un certain nombre de paramètres thermiques tels que la capacité thermique massique, la chaleur latente, la température de fusion et de solidification du matériau ou encore son degré de surfusion. Les principaux matériaux investigués sont des paraffines en raison de leur bonne stabilité thermique et d'une surfusion peu importante, ainsi que des sels hydratés pour leurs bonnes conductivités thermiques et chaleurs latentes.

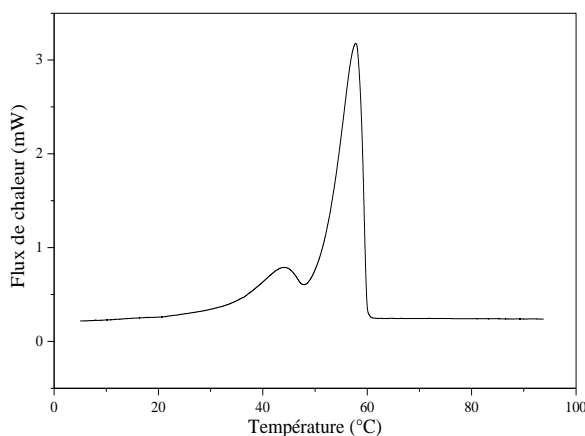


Figure 4 : Flux de chaleur en fonction de la température de la paraffine RT60

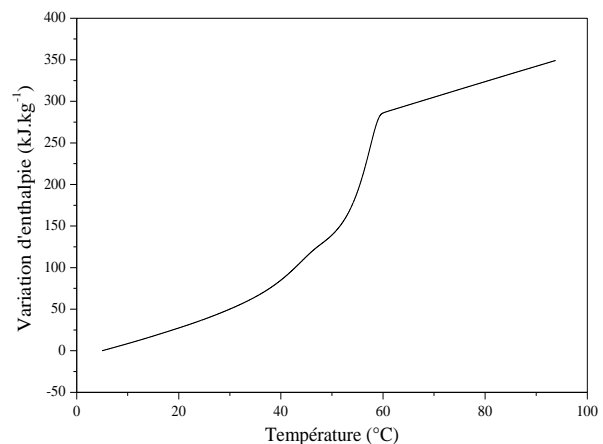


Figure 5 : Variation d'enthalpie de la paraffine RT60 en fonction de la température

Après analyses, le matériau retenu est une paraffine de type RT60 (Rubitherm) ayant une fusion se situant entre 55 et 60 °C, une chaleur latente d'environ 160 J/g et présentant très peu

de surfusion. Ainsi, la figure 4 présente la mesure de flux de la paraffine issue de la DSC, pour une vitesse de chauffage de 1 K/min. On remarque la succession de deux pics endothermiques, le premier correspond à une transition solide-solide, tandis que le second, beaucoup plus élevé, correspond à la fusion du matériau. L'enthalpie de fusion du matériau correspond à l'aire sous le pic de fusion et nécessite la prise en compte de la variation de la capacité thermique massique du matériau entre l'état solide et l'état liquide, en considérant une sigmoïde. Une relation entre enthalpie et température est alors établie. Elle est présentée en figure 5 et pourra être utilisée par la suite dans le modèle numérique.

La mesure de conductivité du matériau est également une étape importante dans la réalisation du module de stockage. La conductivité thermique des matériaux à changement de phase étant faible et plus particulièrement pour les paraffines (de l'ordre de $0,2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$), il est alors nécessaire de doper le matériau afin d'améliorer le transfert de chaleur entre le fluide caloporteur et le MCP. La méthode utilisée est l'imprégnation de la paraffine dans une structure conductrice en graphite. Le graphite est réalisé sous forme de plaques de graphite expansé (Mersen) qui seront par la suite découpées en couronne pour notre application. Le processus d'expansion du graphite et de mise en forme de ce type de matériaux est détaillé J.H. Han *et al.* [2]. La mesure de conductivité thermique est réalisée par différents types de méthodes pouvant être en régime stationnaire ou en régime permanent. Une mesure de conductivité est réalisée en régime stationnaire par la méthode de la plaque chaude gardée. L'estimation de la conductivité par cette méthode est réalisée à l'aide de la loi de Fourier unidimensionnelle, un flux est imposé par une chauffelette et les températures de part et d'autre de l'échantillon sont mesurées. Une mesure est également réalisée en régime transitoire, par une méthode flash permettant la détermination de la diffusivité thermique. Un pulse thermique est imposé sur une face de l'échantillon (par un laser) et l'élévation de température est mesurée sur la face opposée. La vitesse de propagation de la température, ainsi que la géométrie de l'échantillon permettent la détermination de la diffusivité thermique.

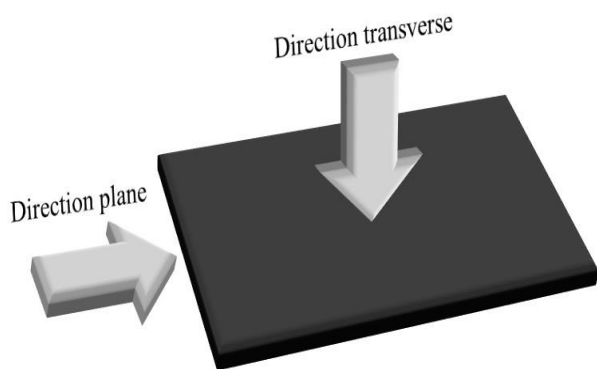


Figure 6 : Schéma d'une plaque de graphite naturel expansé (GNE)

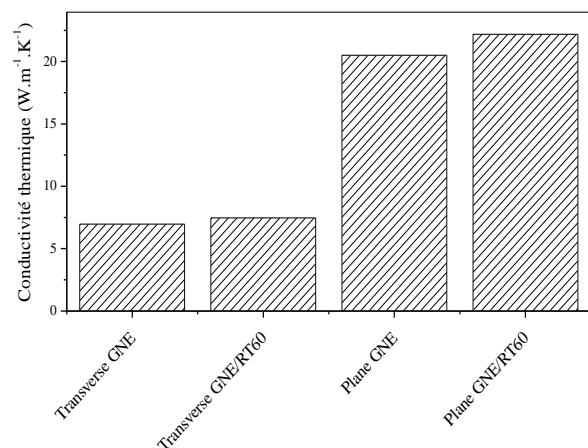


Figure 7 : Conductivité du GNE et du composite pour les directions plane et transverse

On peut observer sur la figure 7, les résultats obtenus pour les mesures de conductivité du GNE et du composite GNE+MCP par la méthode de la plaque chaude gardée. Le GNE utilisé possède une densité de 220 kg.m^{-3} , il est intéressant de noter que la conductivité thermique du matériau dépend directement de la densité du graphite utilisé, comme le montrent D. Haillot *et al.* [3]. Les valeurs de conductivité mesurées dans la direction plane des plaques (direction orthogonale à la compression des plaques) sont de l'ordre de 100 fois supérieures à la conductivité du matériau à changement de phase seul, soit une conductivité thermique de

l'ordre de $20 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. En revanche, la conductivité mesurée dans la direction transverse n'excède pas les $6-7 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, ce qui est dû à la mise en forme des plaques de graphite naturel expansé. La compression des plaques induit une orientation des plans de graphite dans la direction orthogonale à la compression, qui favorise la conductivité dans cette direction. Des mesures sur un composite utilisant un MCP différent et un rapport volumique MCP/GNE similaire ont été réalisées par méthode flash et les conductivités obtenues sont proches avec un écart relatif inférieur à 15%.

La paraffine, prisonnière dans le graphite, subit des variations volumiques au cours du changement de phase et peut ainsi entraîner des fissures dans le matériau composite ou encore une modification de la surface d'échange avec le tube. Une mesure de la dilatation du matériau composite sur dilatomètre a été effectuée et une variation linéique d'environ 8% est observée suivant la direction transverse des plaques (direction de compression des plaques), et environ 0.5% dans la direction plane. Le transfert thermique entre le fluide caloporteur et le matériau ayant lieu principalement dans la direction plane, une variation de volume de seulement 0.5% devrait peu impacter la résistance thermique de contact entre le tube et le matériau. De même, la dilatation suivant l'épaisseur des plaques peut entraîner des fissures qui ne devraient pas être trop pénalisantes dans cette direction.

3. Modèle numérique

Un modèle numérique est mis au point afin de simuler les transferts au sein de ce matériau de la manière la plus proche possible de la réalité. Le modèle utilise la méthode enthalpique en géométrie axisymétrique définie par la relation suivante :

$$\rho \frac{\partial h}{\partial t} = \frac{\lambda}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) \quad (1)$$

La conductivité thermique du matériau est supposée indépendante de la température et la conductivité du graphite étant prédominante sur la conductivité globale du matériau, celle-ci est supposée constante lorsque le MCP change de phase. L'avantage de la méthode enthalpique, contrairement à d'autres, comme la méthode à frontière mobile par exemple [4], est que la fusion du matériau peut être modélisée sur une plage de température et non à une température franche. La relation entre enthalpie et température est alors définie de la manière suivante :

$$h = \begin{cases} C_s(T - T_i) & T < T_s \\ C_s(T_s - T_i) + \int_{T_s}^{T_l} C_{app} dT + f.L_f & T_s \leq T \leq T_l \\ C_s(T_s - T_i) + \int_{T_s}^{T_l} C_{app} dT + L_f + C_l(T - T_l) & T_l < T \end{cases} \quad (2)$$

où T_s et T_l sont respectivement les températures de début et de fin de fusion et T_i la température initiale. C_{app} correspond à la capacité thermique massique apparente du matériau durant la fusion et est définie par la relation suivante :

$$C_{app} = (1 - f)C_s + fC_l \quad (3)$$

où f est la fraction fondue pendant la fusion, elle vaut 0 lorsque le matériau est solide et 1 lorsque le matériau est totalement fondu. C_s et C_l sont respectivement la capacité thermique massique en phase solide et liquide. La fraction massique de graphite dans le composite est mesurée expérimentalement pendant l'imprégnation des plaques de GNE. Les grandeurs issues des mesures en DSC sont utilisées pour la simulation de la relation enthalpie-

température (2) du matériau, en tenant compte de la fraction massique de graphite présente dans le composite par une loi des mélanges. En effet, la question de la représentativité d'un échantillon d'une masse de quelques milligrammes ne permet pas l'exploitation directe des mesures du matériau composite en DSC.

La condition à la limite en $r=r_0$, correspondant au rayon intérieur de la couronne est définie par une condition de troisième espèce dépendant du coefficient de transfert thermique entre le fluide caloporteur et le MCP :

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial r} \Big|_{r=r_0} = h_{ech0} (T_{fluide} - T_{r=r_0}) \quad (4)$$

où h_{ech0} est défini comme étant le coefficient d'échange entre le fluide et le matériau composite au contact du tube, dépendant du coefficient d'échange du fluide, de la résistance thermique du tube, ainsi que d'une résistance thermique de contact entre le tube et le matériau.

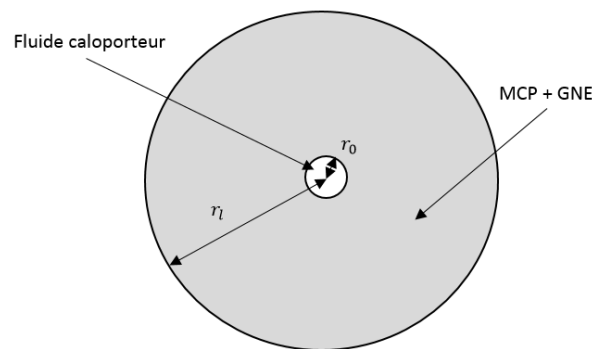


Figure 8 : Schéma du module de stockage

De la même manière, la condition à la limite en $r=r_1$, correspondant au rayon extérieur de la couronne est définie par une condition de troisième espèce, dépendant de la température extérieure, ainsi que d'un coefficient d'échange convectif :

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial r} \Big|_{r=r_1} = h_{ech1} (T_{r=r_1} - T_{ext}) \quad (5)$$

avec h_{ech1} défini comme étant le coefficient d'échange convectif entre le matériau et le milieu extérieur.

4. Résultats et discussions

Le fluide caloporteur utilisé est de l'eau. L'écoulement imposé est tel que le nombre de Reynolds obtenu est de 62000 et le nombre de Prandtl de 2,5 pour le fluide porté à 70°C.

Un thermocouple de type K est placé dans la couronne supérieure (à mi-distance du rayon intérieur et extérieur de la couronne) à l'entrée de l'échangeur. La température du fluide est également mesurée à l'entrée de l'échangeur par une sonde PT100, cette valeur est utilisée dans la simulation numérique par la relation portant sur la condition à la limite (4). Initialement la température du fluide est maintenue à 45 °C, le temps que la totalité du matériau se stabilise à cette température, puis un échelon de +25 K est imposé au fluide. Le fluide caloporteur transfère alors son énergie au matériau qui entre en fusion aux alentours de 50 °C. La figure 9 montre l'évolution de la température expérimentale du fluide caloporteur,

la température du thermocouple placé dans le matériau à changement de phase ainsi que l'évolution de la température correspondante simulée numériquement. On remarque le palier de température entre 55 et 60 °C correspondant à la phase de chaleur latente du matériau.

Sur la figure 9, on observe un bon accord des résultats entre la température expérimentale et la valeur numérique. Les mesures expérimentales ont permis l'estimation du coefficient d'échange global entre le fluide et le matériau (au point du thermocouple). La valeur de la résistance thermique de contact intervenant dans le coefficient d'échange h_{ech0} entre le fluide et le matériau au contact du tube a été estimée à partir du coefficient d'échange global et des différentes résistances thermiques du système :

$$RTC = R_{globale} - R_{fluide} - R_{tube} - R_{matériau} \quad (6)$$

La résistance de contact a également été estimée numériquement par minimisation en utilisant la méthode des moindres carrés. La méthode consiste à minimiser la somme quadratique des erreurs entre température expérimentale et numérique :

$$err(RTC) = \sum_{i=1}^N (T_{exp} - T_{num}(RTC))^2 \quad (7)$$

Où N représente le nombre de pas de temps comparés. Les résultats obtenus pour chacune de ces méthodes sont cohérents et une résistance thermique de contact entre le tube et le matériau de $3,5 \cdot 10^{-4} \text{ K} \cdot \text{W}^{-1}$ a été retenue. Ce résultat confirme les prédictions faites en section 2.2 quant à la variation volumique du matériau à changement de phase dans le graphite qui est peu existante dans la direction du flux thermique (entre le fluide et le matériau) : la direction orthogonale à la direction de compression des plaques. Ainsi, le contact entre le tube et le matériau n'en est pas détérioré.

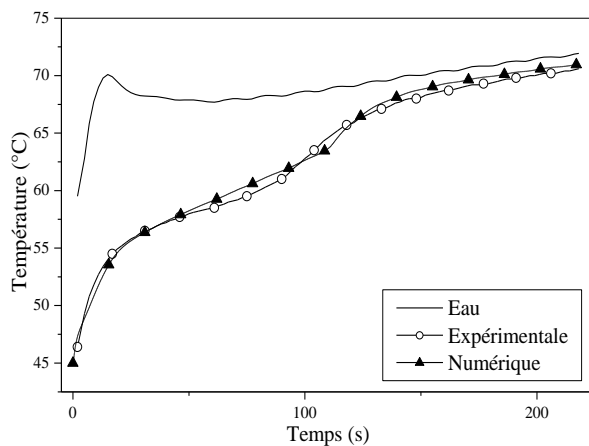


Figure 9 : Comparaison entre température expérimentale et numérique

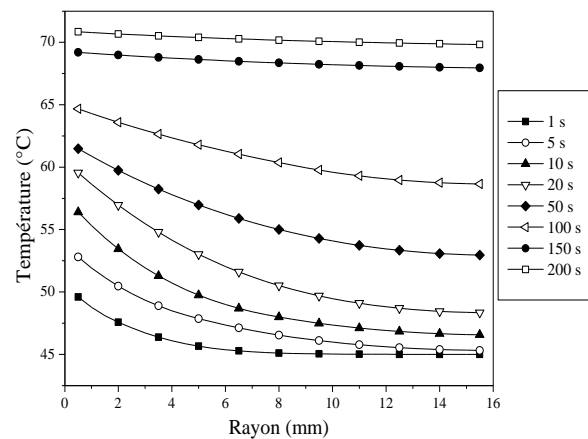


Figure 10 : Profils topologiques de température dans le matériau à différents instants (résultat numérique)

Un léger décalage entre la courbe de température expérimentale et la courbe numérique est observé sur la figure 9, en particulier au niveau du palier de température dû à la fusion du matériau. Cette différence est probablement liée à des incertitudes de mesure lors de la caractérisation du matériau à changement de phase et du graphite naturel expansé, ainsi qu'à l'estimation des fractions volumiques respectives. Le modèle numérique donne accès à un grand nombre d'informations, comme le montre par exemple la figure 10, où les profils topologiques de température dans le matériau à différents instants sont reportés et permettent d'étudier l'évolution de la fusion dans le matériau. Les résultats des simulations numériques pour le temps de fusion complète du matériau sont comparés et validés à l'aide de la méthode

analytique simplifiée de Baehr *et al.* [5]. Une méthode inverse sera prochainement mise au point afin de déterminer les propriétés effectives du matériau composite à partir de mesures expérimentales sur banc d'essai et seront comparées aux valeurs trouvées lors de la caractérisation directe du matériau.

5. Conclusion

Dans cette étude, la caractérisation des propriétés thermiques d'un matériau composite a été effectuée et a permis l'identification du matériau à changement de phase pour l'application souhaitée. L'imprégnation du MCP dans une structure conductrice faite de graphite naturel expansé permet une amélioration de la conductivité thermique de l'ordre de 100 fois celle du MCP seul. Des résultats expérimentaux montrent qu'une telle amélioration de conductivité du matériau permet d'obtenir un coefficient de transfert thermique supérieur à $3000 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ entre le matériau et un fluide caloporteur pendant le chargement du matériau [1]. De plus, l'étude de la variation volumique du matériau montre que le contact entre le tube et le matériau est très peu impacté lors des phases de fusion/solidification. Le modèle numérique permet une bonne simulation des résultats obtenus sur banc d'essai avec un ajustement de la résistance thermique de contact. Il est envisagé dans la suite de ce travail la prise en compte d'une dimension supplémentaire (2D axisymétrique) afin de prendre en compte l'évolution du transfert thermique suivant l'écoulement du fluide. La mise au point d'une méthode inverse est également prévue afin de pouvoir identifier les paramètres thermophysiques du dispositif étudié à partir de données expérimentales.

Références

- [1] K. Merlin, D. Delaunay, J. Soto, L. Traonvouez, Etude expérimentale de l'intensification du transfert de chaleur dans un matériau à changement de phase, *Congrès Français de Thermique* (Lyon, 3-6 juin 2014).
- [2] J.H. Han, K.W. Cho, K.-H. Lee, H. Kim, Porous graphite matrix for chemical heat pumps, *Carbon*, 36-12 (1998), 1801-1810.
- [3] D. Haillot, V. Goetz, X. Py, M. Benabdelkarim, High performance storage composite for the enhancement of solar domestic hot water systems – Part 1: Storage material investigation, *Solar Energy*, 85 (2011), 1021-1027.
- [4] A.A. Al-abidi, S.B. Mat, K. Sopian, M.Y. Sulaiman, A.T. Mohammed, CFD applications for latent heat thermal energy storage: a review, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 20 (2013), 353-363.
- [5] H.D. Baehr, K. Stephan, Wärme-und Stoffübertragung, Springer Verlag, Berlin Heidelberg (1994).

Remerciements

Ces travaux ont bénéficié d'une aide financière de la part de l'Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME)

Les résultats présentés sont pour partie issus des travaux en PFE de Pierre Godet, Camille Guillory, Gladys Barbin et Hugo Charruau.