

Etude de la convection dans la phase liquide de matériaux à changement de phase lors de la fusion et de la solidification

Michael LISSNER^{(1-2) (*)}, Julien TISSOT⁽¹⁾, Kamel AZZOUZ⁽¹⁾, Denis LEDUCQ⁽²⁾

¹Valeo Thermique Moteur, 8, rue Louis Lormand, La Verriere 78320 Le Mesnil Saint Denis

²IRSTEA GPAN LGP2ES (EA 21) – 1 rue Pierre Gilles de Gennes CS 10030 92761 Antony Cedex

*(auteur correspondant : michael.lissner@valeo.com)

Résumé – Cette communication porte sur l'étude expérimentale et numérique de la convection dans la phase liquide de matériaux à changement de phase (MCP) lors de fusion et de la solidification. A partir d'analyses calorimétriques les propriétés thermophysiques liées au changement de phase sont déterminées puis implémentées dans un modèle numérique. Les résultats numériques sont ensuite comparés à ceux obtenus au cours d'essais réalisés grâce à un dispositif expérimental.

Nomenclature

C, m, n	coefficients de l'équation (1)	ν	viscosité cinématique, $m^2.s^{-1}$
C_p	capacité thermique massique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$	ρ	masse volumique, $kg.m^{-3}$
h	coefficient d'échange, $W.m^{-2}.K^{-1}$	<i>Indices et exposants</i>	
k	conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$	<i>app</i>	apparent
L	épaisseur de MCP, m	<i>df</i>	début de fusion
Ra	nombre de Rayleigh, $\frac{g\beta}{\alpha\nu}(T_{paroi} - T_{fusion})\delta^3$	<i>eq</i>	équivalent
T	température, $^{\circ}C$	<i>ff</i>	fin de fusion
t	temps, s	<i>f</i>	fusion
<i>Symboles grecs</i>		<i>l</i>	liquide
α	diffusivité thermique, $m^2.s^{-1}$	<i>s</i>	solide
ΔT	écart de température, $^{\circ}C$		
δ	épaisseur de MCP liquide, m		

1. Introduction

Les matériaux à changement de phase, parce qu'ils représentent une solution technologique économique et innovante de stockage d'énergie, connaissent actuellement un intérêt croissant dans le monde scientifique et industriel [1]. Cet intérêt a conduit à de nombreux travaux et développements sur les transferts de chaleur lors du changement de phase solide / liquide, travaux à la fois numériques et expérimentaux.

La modélisation du transfert de chaleur avec un changement de phase solide / liquide est le plus souvent basée sur l'équation de transfert de chaleur par conduction et est résolue par une approche « à frontière mobile » ou les inconnues du problème sont les températures dans les phases solide et liquide ainsi que la position de l'interface, ou par une approche dite « enthalpique ». En fonction des caractéristiques du problème, la solution peut être calculée par une méthode analytique ou numérique [2].

Une difficulté réside dans le fait que le phénomène de convection naturelle dans la couche liquide ne peut cependant pas toujours être négligé. Deux grands types d'approche sont alors

possibles : une modélisation des écoulements provoqués par les différences de densité, ou, si les moyens de calculs ne le permettent pas, une approche empirique consistant à estimer une conductivité équivalente dans le matériau pendant le changement de phase. Des expressions empiriques de cette conductivité équivalente peuvent être trouvées dans la littérature, mais également de nombreuses valeurs différentes des paramètres utilisés dans ces expressions.

Cette communication, à travers une approche numérique et expérimentale, propose de développer et valider un modèle de transfert de chaleur du changement de phase faisant intervenir la convection naturelle par une expression empirique et d'explorer ainsi la validité des paramètres cités dans la littérature. Elle s'appuie sur des expérimentations de fusion et de solidification du MCP lors desquelles la température est mesurée en différents points du matériau. Le modèle développé, basé sur une méthode enthalpique, met en œuvre une discrétisation de l'équation de la chaleur suivant la méthode des volumes finis ou la convection est prise en compte grâce à un coefficient de conductivité équivalente dans la phase liquide. Le but de cette étude est ainsi de valider la corrélation de conductivité équivalente ainsi que les coefficients associés.

2. Matériels et méthodes

2.1. Dispositif expérimental et caisson à température contrôlée

La figure 1 est une représentation schématique du dispositif expérimental utilisé pour cette étude, on distingue le bloc de polystyrène servant d'isolant, le récipient qui contient le MCP ainsi que l'emplacement des thermocouples (TC) disposés dans la hauteur. Le dispositif consiste à exposer une face du récipient parallélépipédique à un transfert de chaleur par convection forcée d'air, les autres faces étant isolées. Les récipients en polycarbonate de 2 mm d'épaisseur contenant le MCP mesurent 10 cm par 14 cm de côté et ont différentes hauteurs variant de 1 à 4 cm. Chaque face est isolées par du polystyrène hormis la face inférieure où a lieu l'échange de chaleur avec le milieu ambiant. Ce dispositif expérimental est placé dans un caisson permettant de contrôler la température entre -25 et $+25^{\circ}\text{C}$. Des ventilateurs produisent une circulation d'air sur la face inférieure du récipient. Selon la vitesse d'air, le coefficient d'échange convectif peut varier de 6 à $12 \text{ W/m}^2\text{K}$.

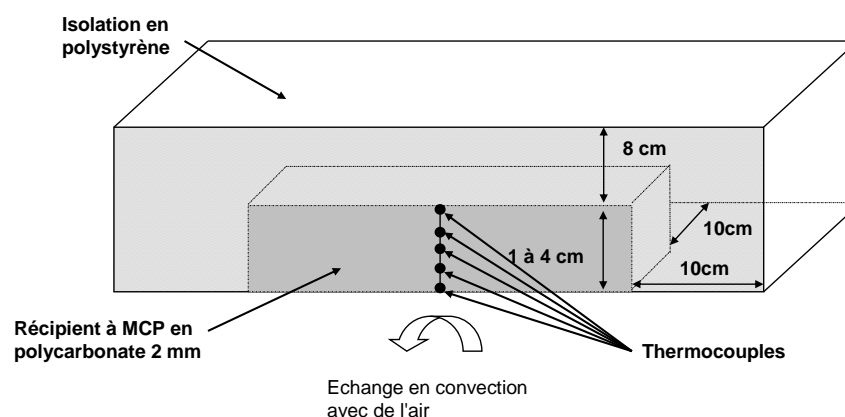


Figure 1 : vue en coupe du dispositif expérimental

Dans cette configuration, la chaleur se diffuse verticalement dans le MCP à partir de la face inférieure, l'isolation des autres faces permettant de supposer que le transfert de chaleur est uniquement monodimensionnel. Différentes hauteurs de récipients variant de 1 à 4 cm ont été utilisées. Les récipients de 1 et 2 cm sont équipés de thermocouples (type T) dans le sens de la hauteur et disposés tous les 5 mm, et tous les centimètres pour ceux de 3 et 4 cm. Un thermocouple est également présent dans le caisson afin de suivre la température de l'air au cours des mesures.

Tableau 1 : Propriétés thermophysiques des MCP utilisés

MCP	Analyse DSC				
	Type	T _{df} (°C)	T _{pic} (°C)	T _{ff} (°C)	Enthalpie de fusion (kJ/kg)
A	Sel hydraté	-12	-10	-9.2	220
B	Paraffine	-8	-3	-2.4	85
C	Sel hydraté	-3.6	-1.8	-0.9	300
D	Paraffine	0.5	6.3	7.2	94

Plusieurs MCP ont été utilisés et sont présentés dans le tableau 1 avec leurs propriétés, les paraffines (MCP B et D) changent de phase autour de -3 et 6°C, les sels hydratés (MCP A et C) quant à eux changent de phase autour de -10 et -2°C. Chaque matériau a été caractérisé par calorimétrie différentielle à balayage (DSC) afin de déterminer la chaleur latente de changement de phase ainsi que les températures de début et de fin de fusion. La capacité thermique massique liquide de la paraffine est mesurée par calorimétrie alors que la conductivité solide de ce même matériau est mesurée par la méthodologie développée par Laguerre et Flick [3]. La masse volumique est également mesurée.

2.2. Modélisation

En parallèle de la partie expérimentale, un modèle numérique représentatif des transferts de chaleur est développé. Les différentes hypothèses faites sont les suivantes :

- (1) Les propriétés thermophysiques du MCP sont indépendantes de la température mais sont différentes pour les phases liquide, solide et de transition (calculées par interpolation linéaire entre solide et liquide).
- (2) La composition du MCP est considérée homogène.
- (3) La conduction est le mode de transfert de chaleur prédominant.
- (4) L'énergie mécanique due au changement de masse volumique lors du changement de phase est ignorée.
- (5) Les dimensions de récipient sont assez grandes pour avoir un transfert de chaleur considéré comme monodimensionnel (dans la hauteur).
- (6) La résistance thermique de la paroi peut être négligée.

La troisième hypothèse implique que l'on ne développe pas les équations de conservation de la quantité de mouvement afin de décrire les mouvements du fluide liés à la convection. Cependant l'effet de la convection naturelle est inclus dans l'équation de conduction à travers un coefficient de conductivité thermique équivalente [4] exprimé de la manière suivante :

$$k_{eq} = k_f CRa^n \left(\frac{\delta}{L} \right)^m \quad (1)$$

En se basant sur les hypothèses précédentes, l'équation de conservation de l'énergie dans le MCP s'écrit donc :

$$\rho \frac{\partial H(T)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(k \frac{\partial T}{\partial x} \right) \quad (2)$$

Nous utilisons ici une approche à Cp apparent qui permet de remplacer le terme de gauche de l'équation (2) par :

$$\rho \frac{\partial H(T)}{\partial t} = \rho \frac{\partial C_{p,app} T}{\partial t} = \rho C_{p,app} \frac{\partial T}{\partial t} \quad (3)$$

$$\text{Où } Cp_{app} = \begin{cases} Cp_s & T < T_{df} \\ \frac{Cp_l + Cp_s}{2} + \frac{\Delta H}{\Delta T_{fusion}} & T_{df} < T < T_{ff} \\ Cp_l & T > T_{ff} \end{cases}$$

La résolution numérique de l'équation (2) est obtenue par discrétisation en volume finis.

Dans la littérature, plusieurs études ont été menées sur la convection au sein d'un MCP en transition [4-8]. Les valeurs des coefficients de la corrélation (1) obtenues dans ces études sont présentées dans le Tableau 2. On peut remarquer une diversité importante des valeurs de ces paramètres, pour des conditions expérimentales similaires.

Tableau 2 : Revue bibliographique des coefficients utilisés

Coefficient	Auteur				
	Farid [5]	O'Tool dans [5]	Zukowski [6]	Silva [7]	Brousseau [8]
C	0.159	0.229	0.05	-	0.099
n	0.34	0.252	0.25	0.25	0.25
m	0	0	1	1	0
Type de MCP	Paraffines	Paraffines	Paraffines	Paraffines	Paraffines

3. Résultats et discussions

Dans cette partie, les résultats obtenus pour les différents MCP testés sont présentés. La première partie présente les résultats d'essais alors que la seconde partie présente la comparaison des résultats numériques et expérimentaux.

3.1. Présentation et analyse des essais

Les essais correspondent à des fusions et solidifications du matériau à changement de phase pour les quatre hauteurs de MCP soit 1, 2, 3 et 4 cm. Dans chacun des deux cas, les MCP sont initialement maintenus à température constante puis placés dans le caisson ventilé. Dans le cas de la fusion, le MCP est initialement à -20°C , puis placé dans une ambiance à 20°C . Lorsque la solidification est étudiée, le MCP est initialement à 20°C puis placé dans l'enceinte à -20°C . Quelques températures initiales et finales différentes ont également été utilisées, afin d'obtenir différentes cinétiques.

La figure 2 présente respectivement en (a) et (b) l'évolution de la température du MCP D lors de sa fusion pour des hauteurs de 1 et 4 cm de matériau. Dans ces deux cas, on observe une première phase où la température initialement de -20°C augmente très rapidement jusqu'à environ $3-5^{\circ}\text{C}$. La montée en température dans cette première phase correspond à une contribution uniquement sensible du MCP. On observe une seconde phase où la température évolue faiblement autour de 5°C . Durant cette phase, le matériau change de phase. L'énergie absorbée par le MCP correspond à sa chaleur de changement de phase. Notons que la légère augmentation de la température lors de cette phase est due à la transition solide/liquide qui se fait, comme on peut le voir dans le tableau 1, entre $0,5$ et $7,2^{\circ}\text{C}$. Enfin, une fois le passage à l'état liquide terminé, la température croît de nouveau rapidement, caractéristique de l'état sensible du matériau, jusqu'à atteindre la température de l'air. On observe cependant une nette différence entre ces deux essais. La figure 2b montre très clairement la contribution de la convection dans le matériau. On observe en particulier lors du changement de phase que la température du premier TC décroît, phénomène lié à une intensification des échanges dans la

phase liquide et une accélération du changement de phase. On observe également une seconde particularité lors de la fin du changement de phase, il y a une inversion du gradient de température dans le MCP. Ceci s'explique probablement par la migration d'éléments solides au fond du récipient, liée à la densité plus importante de la phase solide. Ce phénomène est également visible pour les mesures avec 2 et 3 cm de MCP.

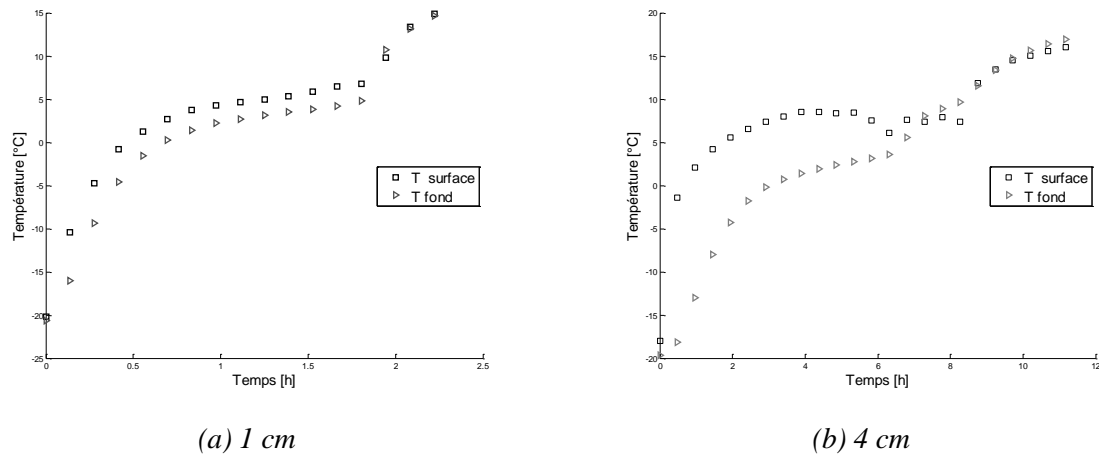


Figure 2 : Fusion du MCP D

Les essais de solidification réalisés avec le MCP D sont présentés en Figure 3, pour des hauteurs de 1 et 4 cm (resp. (a) et (b)). Comme pour les essais de fusion, on observe les trois phases : liquide et solide où l'énergie absorbée est uniquement sensible et la phase de transition correspondant à la chaleur latente. Contrairement aux essais de fusion, la contribution de la convection n'est pas visible. Cette constatation est en accord avec les résultats de Farid [5] qui précise que le phénomène de convection n'intervient pas dans le processus de solidification.

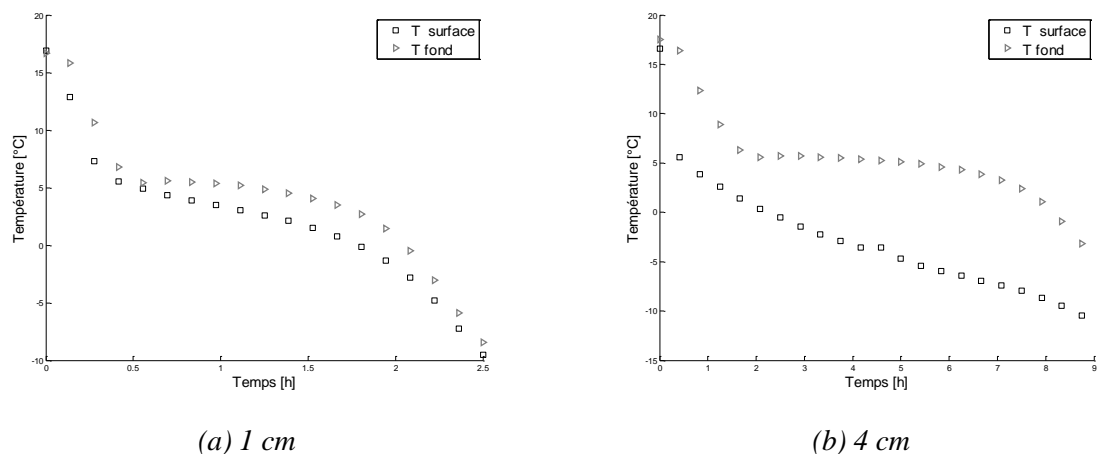


Figure 3 : Solidification du MCP D

3.2. Comparaison des réponses simulées et expérimentales

Les températures mesurées dans le MCP sont comparées à celles issues de la simulation pour les différents matériaux testés. Les propriétés thermophysiques utilisées sont celles fournies par le fabricant lorsque nous n'avons pas pu les mesurer.

La Figure 5 présente ces résultats pour 1 et 4 cm de PCM D. Pour 1 cm, le modèle ne justifie pas de prendre en compte la convection et pour les deux épaisseurs il y a une bonne adéquation entre les résultats de simulation et les résultats expérimentaux avec des coefficients C, m et n valant respectivement, 0.229, 1 et 0.2. Ces résultats sont également valables avec les autres MCP, paraffines et sels hydratés. Pour tous les matériaux, les

coefficients fournis par la littérature n'ont pas permis de caler parfaitement les courbes, mais permettent de s'approcher des résultats expérimentaux. Une nouvelle identification des paramètres pour l'ensemble des résultats expérimentaux permet une meilleure correspondance entre mesures et simulations dans notre cas.

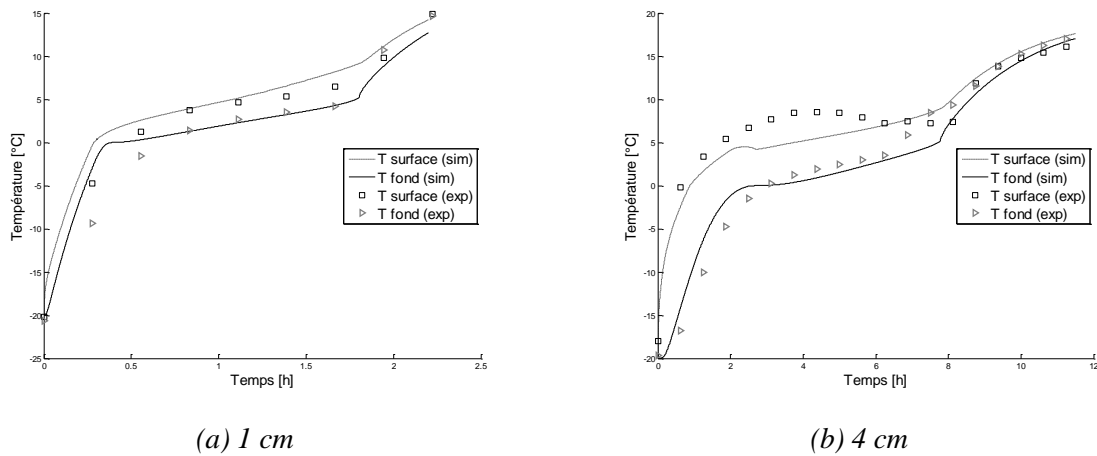


Figure 4 : Fusion du MCP D

Les écarts les plus visibles sur la figure 4 sont présents en début et en fin de fusion. En effet la formulation de la capacité thermique apparente fait apparaître des discontinuités au début et à la fin du changement de phase, discontinuités n'existant pas physiquement. Ainsi les courbes de mesure sont lisses alors que la température simulée du dernier élément présente des changements de pente brusques. De plus, pour 4 cm de MCP, on observe que le modèle prend en compte la convection dans la phase liquide, avec une température qui diminue (premier TC), cependant la précision n'est pas parfaite et nous verrons plus tard que la modélisation du MCP B donne une meilleure précision sur les températures.

Hormis la différence due aux discontinuités, on constate une bonne correspondance entre les résultats numériques et les résultats expérimentaux, en fusion mais aussi en solidification comme le montre la figure 5a. La prise en compte du phénomène de convection par la conductivité thermique équivalente de la phase liquide augmente les transferts de chaleur à partir de 2 cm. Si l'on néglige le phénomène de convection on constate de forts écarts entre mesures et simulations.

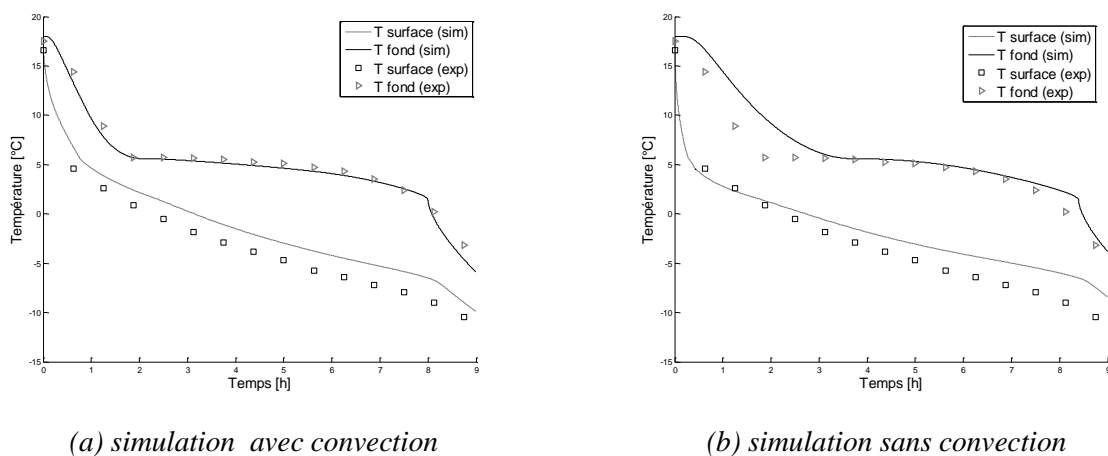
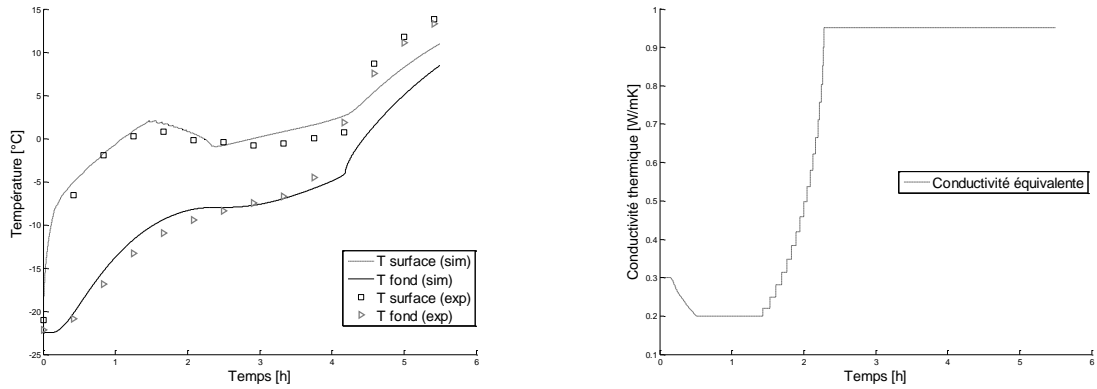


Figure 5 : Solidification de 4 cm du MCP D

En solidification (MCP D), on remarque sur la figure 5 que sans prendre en compte la convection dans la phase liquide (5b), les écarts de température entre mesure et simulation (entre le premier et le dernier élément) sont importants alors que lorsqu'on en tient compte (5a) ceux-ci diminuent. Il est donc nécessaire de prendre en compte la convection pour se

rapprocher de la réalité. On notera tout de même que le temps nécessaire pour obtenir la fin de la solidification du MCP est globalement le même dans les deux cas. La convection accélère peu le processus de solidification mais permet ici de calculer la température dans le MCP plus précisément.

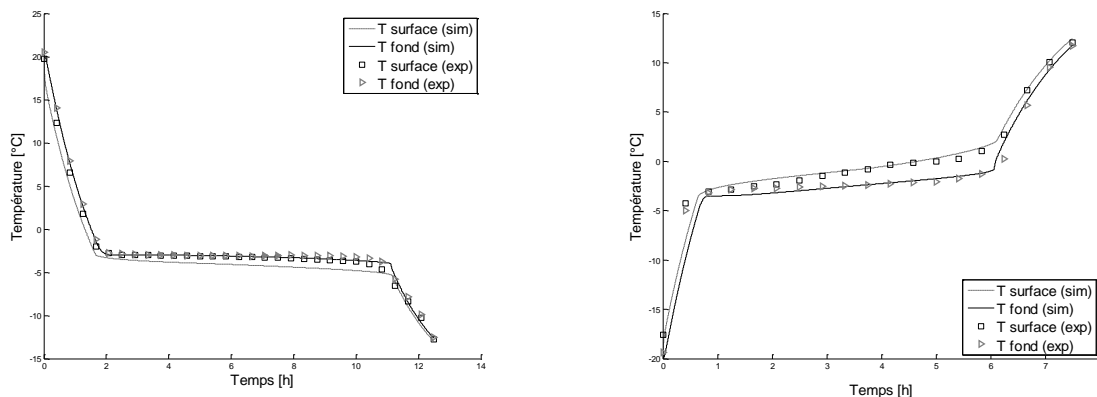


(a) Simulation de fusion

(b) conductivité équivalente du 1^{er} élément

Figure 6 : Solidification de 4 cm du MCP B et conductivité thermique équivalente associée

La figure 6 illustre l'effet important de la convection dans la phase liquide lorsque le gradient de température et donc la différence de densité entre la surface et le fond est grand. Le modèle numérique est capable de reproduire la diminution de la température en surface liée aux fortes variations de la conductivité thermique apparente comme déjà expliqué dans la partie analyse des essais. La conductivité thermique équivalente dans le premier élément est ainsi multipliée par 5 sur une courte période de temps (figure 6b). Cette augmentation de conductivité équivalente est due à l'épaisseur de la couche liquide qui augmente, et au gradient de température à l'intérieur du MCP qui se réduit alors fortement. Les paramètres tels que les propriétés thermophysiques (masse volumique, capacité thermique, conductivité thermique et viscosité) du MCP et l'épaisseur liquide influent directement sur la convection. En dessous de 2 cm, l'épaisseur n'est pas assez importante pour engendrer des mouvements de convection. Ces propriétés thermophysiques et l'épaisseur de la couche liquide sont prises en compte dans notre modèle à travers le nombre de Grashof et donc par le nombre de Rayleigh qui intervient dans la corrélation (1) de conductivité thermique équivalente.



(a) solidification

(b) fusion

Figure 7 : Fusion et solidification de 2 cm du MCP C

La figure 7 présente une fusion et une solidification de sel hydraté (MCP C). Elle montre que les résultats numériques sont en accord avec les résultats expérimentaux pour ce type de MCP et que les coefficients de l'équation de conductivité équivalente sont valables pour les sels hydratés alors que la littérature ne donne des coefficients que pour les paraffines. On retrouve dans ce cas des résultats comparables aux précédents, en solidification, la prise en

compte de la convection influe peu sur la vitesse du processus de solidification mais permet d'être précis sur la température dans la phase liquide (7a). En fusion, on observe (7b) que le modèle de convection est particulièrement bien adapté, par contre il ne montre pas de redescende en température. Dans ce cas le gradient de température dans le matériau est petit (2 à 3°C) et les différences de densité sont donc faibles ce qui réduit l'effet de la convection par rapport aux paraffines dans lesquelles on observait un important gradient (10 à 12°C) et une redescende en température très prononcée.

4. Conclusion

Les comparaisons effectuées entre résultats numériques et expérimentaux montrent que lorsque l'épaisseur de MCP devient importante, la convection lors du changement de phase est un paramètre non négligeable et nécessaire à prendre en compte, d'autant plus si le gradient de température au sein du MCP est important. Pour le cas présenté ici, un modèle en conduction pure n'est plus valide au-delà d'un centimètre de MCP. La méthode de la conductivité thermique équivalente permet alors d'obtenir une bonne précision tout en étant simple à implémenter. Les données expérimentales permettent d'ajuster les paramètres pour chaque matériau et géométrie, dans notre cas les valeurs obtenues sont 0.229, 1 et 0.2 pour les paramètres C, m et n respectivement, pour des MCPs incluant des paraffines et des sels hydratés. Pour la suite de ce travail et à partir de ces résultats, une étude plus large, incluant d'autres catégories de MCP (telles que les acides gras) sera menée. Il est aussi envisagé d'améliorer le modèle afin de prendre en compte dans le modèle des transitions de phase évitant les écarts constatés dus aux discontinuités.

Références

- [1] H. Melhing and L. F. Cabeza, *Heat and cold storage in PCM : An up to date introduction into basics and applications*, Springer ed., 2008.
- [2] D. Gobin and A. Bricard, "Transferts de chaleur avec changement d'état solide-liquide," *Techniques de l'ingénieur* 2001.
- [3] O. Laguerre and D. Flick, "Propriétés thermiques de produits composites," vol. 87, pp. 17-20, 1997.
- [4] A. Laouadi and M. Lacroix, "Thermal performance of a latent heat energy storage ventilated panel for electric load management," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 42, pp. 275-286, 1999.
- [5] M. M. Farid and A. K. Mohamed, "Effect of the natural convection on the process of melting and solidification of paraffin wax," *Chemical Engineering Communications*, vol. 57, pp. 297-316, 1987/07/01 1987.
- [6] M. Zukowski, "Mathematical modeling and numerical simulation of a short term thermal energy storage system using phase change material for heating applications," *Energy conversion and management*, vol. 48, pp. 155-165, 2007.
- [7] P. D. Silva, *et al.*, "Transient behaviour of a latent-heat thermal-energy store: numerical and experimental studies," *Applied Energy*, vol. 73, pp. 83-98, 2002.
- [8] P. Brousseau and M. Lacroix, "Numerical simulation of a multi-layer latent heat thermal energy storage system," *International Journal of Energy Research*, vol. 22, pp. 1-15, 1998.