

Méthode fiable d'estimation de la conductivité thermique de différents nano-fluides

Reliable Method for Estimating the Thermal Conductivity of Different Nano-fluids

Mohamed Amine HERMASSI^{1*}, Bertrand GARNIER¹, Ahmed OULD EL MOCTAR¹, Mohamed BENKHAEDDA²

¹Laboratoire de Thermique et Energie de Nantes (LTeN) UMR CNRS 6607, Nantes Université, Rue Christian Pauc, 44306 Nantes Cedex 3, France

²Université M'hamed Bougara, Boumerdes, Algérie

*(auteur correspondant : mohamed-amine.hermassi@etu.univ-nantes.fr)

Résumé - La conductivité thermique des nanofluides demeure fortement dispersée dans la littérature, en raison des protocoles expérimentaux et du traitement numérique des signaux. Ce travail présente une méthodologie basée sur la méthode du fil chaud transitoire, couplée à une modélisation analytique multicouche par quadripôles thermiques dans le domaine de Laplace, validée par des simulations numériques de type éléments finis. La conductivité thermique est estimée par résolution d'un problème inverse, nécessitant une transformation inverse de Laplace du modèle thermique direct. Concernant ce dernier, plusieurs algorithmes d'inversion sont comparés sur un cas expérimental représentatif, conduisant à la sélection de la méthode de De Hoog, appliquée à l'ensemble des résultats. Une analyse des incertitudes est menée à partir de la formulation du problème inverse, selon l'approche de Milošević et Raynaud [1]. La méthodologie est validée sur l'eau déionisée puis appliquée à trois nanofluides. Les résultats expérimentaux mettent en évidence une augmentation de la conductivité thermique supérieure à 60% alors que les modèles de milieux effectifs classiques prévoient des augmentations inférieures à 2%.

Abstract - Thermal conductivity measurements of nanofluids remain widely scattered due to experimental protocols and numerical signal processing. This work presents a transient hot-wire methodology coupled with a multilayer analytical thermal-quadrupole model formulated in the Laplace domain and validated using finite elements. Thermal conductivity is identified by solving an inverse problem requiring an inverse Laplace transform to solve the direct heat transfer problem. Several inversion algorithms are compared on a representative experimental dataset, leading to the selection of the De Hoog method applied to all results. An uncertainty analysis based on the inverse problem formulation is performed following the approach of Milošević and Raynaud [1]. The methodology is validated using deionized water and applied to three nanofluids. Experimental results highlight an increase in thermal conductivity higher than 60% when the classical effective medium models predict an increase less than 2%.

Nomenclature (11 points, 2 colonnes)

λ	conductivité thermique, $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$
ρC_p	capacité thermique volumique, $\text{J m}^{-3} \text{K}^{-1}$
α	diffusivité thermique, $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
t	temps, s
r	coordonnée radiale, m
R	rayon, m
T	température, K
θ	élévation de température, K
P_0	puissance linéique dissipée, W m^{-1}
ϕ	fraction volumique de nanoparticules, –
p	variable de Laplace

Méthode des quadripôles

$\mathbf{M}_i$	matrice quadripôle de la couche i
$\mathbf{M}_{total}$	matrice quadripôle globale
A_i, B_i, C_i, D_i	coefficients de la matrice quadripôle

$\theta_{fil}(p)$	transformée de Laplace de la température du fil, K. s
-------------------	---

Analyse inverse

$\mathbf{X}$	matrice des coefficients de sensibilité
$\mathbf{W}$	matrice de pondération
$\mathbf{S}_{final}$	matrice de covariance des paramètres
σ_{mes}	écart-type de la mesure expérimentale
σ_{m_p}	écart-type des paramètres connus

Indices

1, f	fil chauffant
2, iso	isolant
3, flu	fluide / nanoparticule
$paroi$	paroi externe

1. Introduction

L'intensification des échanges thermiques constitue un enjeu industriel majeur. Les nano-fluides, suspensions stables de nanoparticules (typiquement de taille inférieure à 100 nm) dans un fluide caloporteur classique (eau, éthanol, huile) ont suscité un vif intérêt pour leur potentiel d'amélioration de la conductivité thermique depuis les travaux de Choi et Eastman [2]. Cependant, la littérature rapporte une forte dispersion des valeurs mesurées, mise en évidence par le benchmark INPBE [3]. Comme l'a montré Buongiorno [4], ces divergences découleraient principalement des protocoles expérimentaux et du traitement des données plutôt que de nouveaux mécanismes physiques. Plusieurs hypothèses ont néanmoins été avancées dans la littérature pour expliquer les gains de conductivité observés : effets d'agglomération des nanoparticules, mouvement Brownien, ou encore formation de couches interfaciales nanométriques [3]. Ces mécanismes font encore l'objet de débats et leur quantification requiert des caractérisations microstructurales dédiées.

La mesure précise de la conductivité thermique des fluides est délicate en raison de l'apparition rapide de la convection naturelle, qui affecte les méthodes stationnaires. À l'inverse, la méthode du fil chaud transitoire permet d'opérer sur des temps courts, garantissant un régime de conduction pure, ce qui en fait une technique de référence [5]. Néanmoins, sa précision dépend du modèle thermique et du traitement numérique. L'utilisation de modèles avancés comme les quadripôles thermiques dans le domaine de Laplace implique une inversion numérique influant directement sur la fiabilité des paramètres estimés [6].

L'objectif de ce travail est de valider une méthodologie expérimentale couplant la méthode du fil chaud à une modélisation par quadripôles, vérifiée à l'aide d'une simulation numérique par éléments finis. Plusieurs algorithmes d'inversion de Laplace sont comparés sur un cas représentatif, conduisant à la sélection de la méthode de De Hoog. Une estimation rigoureuse des incertitudes, fondée sur la formulation du problème inverse, est également menée pour quantifier les erreurs sur les valeurs obtenues [1].

2. Modélisation

La méthode du fil chaud transitoire repose sur l'application d'un échelon de puissance électrique à un fil métallique fin immergé dans le fluide à caractériser. Le fil joue simultanément le rôle d'élément chauffant et de capteur de température, l'élévation de température étant déduite de la variation de sa résistance électrique. Les mesures sont réalisées sur des durées courtes, de l'ordre de 120 secondes, afin de garantir un régime de conduction thermique pure et de négliger les effets de convection naturelle.

2.1. Modélisation thermique par quadripôles

Afin de représenter fidèlement la géométrie réelle du capteur, le système est modélisé comme un milieu cylindrique multicouche composé de trois couches concentriques :

- **Couche 1** : fil d'Alumel ($0 \leq r \leq r_h$). Il est considéré dans le modèle thermique comme un cylindre plein de rayon $r_h = 40 \mu\text{m}$, contenant un terme source volumique représentant la puissance de chauffage.
- **Couche 2** : isolant (Polyimide) ($r_h \leq r \leq r_{iso}$). C'est une couche passive d'épaisseur $3 \mu\text{m}$, modélisée comme un cylindre creux. Elle assure l'isolation électrique.
- **Couche 3** : fluide ($r_{iso} \leq r \leq r_0$). Il représente la couche d'intérêt et est modélisé comme un cylindre creux passif d'épaisseur $2,957 \text{ mm}$.

Le système d'équations décrivant le transfert de chaleur unidimensionnel en régime transitoire peut être résolu par la méthode des quadripôles thermiques [6]. Chaque couche matérielle i est alors représentée par une matrice de transfert $\mathbf{M}_i = \begin{bmatrix} A_i & B_i \\ C_i & D_i \end{bmatrix}$.

Les coefficients de ces matrices sont issus de la littérature spécialisée [6]. Pour la couche 1 (cylindre plein avec source), les coefficients A_1, B_1, C_1, D_1 correspondent aux expressions du tableau A3.2.3 (page 147 [6]). Pour les couches 2 et 3 (cylindres creux passifs), les coefficients A_i, B_i, C_i, D_i correspondent aux expressions du tableau A3.1.2 (page 145) de cet ouvrage [6].

Le modèle complet est obtenu par la multiplication des matrices individuelles, reliant le vecteur d'entrée (fil) au vecteur de sortie (paroi externe) :

$$\begin{bmatrix} \theta_{fil} \\ P_0 \end{bmatrix} = \mathbf{M}_1 \mathbf{M}_2 \mathbf{M}_3 \begin{bmatrix} \theta_{paroi} \\ \varphi_{paroi} \end{bmatrix} \quad (1)$$

En notant $\mathbf{M}_{total}$ la matrice résultante du produit $\mathbf{M}_1 \mathbf{M}_2 \mathbf{M}_3$, le système s'écrit :

$$\begin{bmatrix} \theta_{fil} \\ P_0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_{tot}(1,1) & M_{tot}(1,2) \\ M_{tot}(2,1) & M_{tot}(2,2) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_{paroi} \\ \varphi_{paroi} \end{bmatrix} \quad (2)$$

En imposant une température constante à la paroi externe ($\theta_{paroi} = 0$, température du bain thermostaté), le système se simplifie et permet de déduire l'expression de la température au centre du fil dans le domaine de Laplace :

$$\theta_{fil}(p) = \frac{M_{tot}(1,2)}{M_{tot}(2,2)} P_0(p) \quad (3)$$

où $P_0(p)$ désigne la transformée de Laplace de la puissance linéique dissipée par effet Joule dans le fil. C'est cette fonction de transfert qui est utilisée pour l'estimation des paramètres.

Les hypothèses retenues dans ce modèle ont été validées grâce à des simulations numériques transitoires 2D axisymétriques réalisées à l'aide du logiciel COMSOL MULTIPHYSICS, en particulier ce qui concerne les effets de bords et la convection.

2.2. Estimation des paramètres & Transformée inverse de Laplace

L'estimation des propriétés thermophysiques du fluide repose sur la résolution d'un problème inverse consistant à ajuster la réponse du modèle analytique aux élévations de température mesurées au centre du fil. Le modèle direct fournit, dans le domaine de Laplace, la relation entre la puissance de chauffe appliquée et la température au centre du fil, via la fonction de transfert thermique du système.

Après inversion numérique de la transformée de Laplace, la réponse temporelle du modèle est comparée aux données expérimentales sur une fenêtre temporelle choisie. L'estimation des paramètres est alors formulée comme un problème de minimisation d'un critère de moindres carrés défini par :

$$J(\lambda, \rho C_p) = \sum_{k=1}^N [T_{exp}(t_k) - T_{mod}(t_k, \lambda, \rho C_p)]^2 \quad (4)$$

où T_{exp} désigne la température mesurée, T_{mod} la réponse du modèle analytique dépendant des paramètres λ et ρC_p , et t_k les instants d'échantillonnage retenus.

Les paramètres géométriques et électriques sont fixés à leurs valeurs mesurées. L'estimation de λ et ρC_p est réalisée avec la méthode du Simplex sous Matlab. La méthode de Nelder-Mead (Simplex) a été retenue pour sa robustesse en l'absence d'information sur le gradient de la fonction coût, ce qui la rend particulièrement adaptée aux problèmes d'estimation de paramètres thermophysiques [7].

La reconstruction de la réponse temporelle du modèle nécessite le calcul de la transformée inverse de Laplace. Plusieurs algorithmes ont été implémentés et comparés sur une mesure expérimentale, parmi lesquels les algorithmes de De Hoog [8], de Stehfest [9] et de Talbot [10].

L'algorithme de Stehfest, bien que simple à implémenter, s'est révélé très sensible au bruit expérimental en raison de l'amplification des erreurs numériques aux premiers instants du transitoire [9]. L'algorithme de Talbot offre un compromis entre précision et coût de calcul, mais présente une sensibilité accrue aux premiers instants du transitoire. [10].

L'algorithme de De Hoog a été retenu compte tenu du fait qu'il converge toujours et est moins sensible aux bruits expérimentaux [8].

3. Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est constitué d'une cellule de mesure cylindrique réalisée en cuivre, afin d'assurer une excellente homogénéité thermique des parois. La cellule est immergée dans un bain thermostaté (Lauda E300), permettant d'imposer une température initiale stable et uniforme sur une plage comprise entre 20 et 80°C.

Le fil chauffant est un fil d'Alumel de diamètre 80 μm , positionné verticalement au centre de la cellule. Il est électriquement isolé du fluide par une fine couche de **polyimide**. L'alimentation du fil est assurée par une source de tension stabilisée (Rohde & Schwarz), garantissant un échelon de puissance reproductible et faiblement bruité. La mesure de la tension de déséquilibre du pont de Wheatstone est réalisée à l'aide d'un système d'acquisition rapide (Yokogawa DL850E).

Le principe du montage électrique ainsi que la géométrie axisymétrique de la cellule de mesure sont présentés dans la Fig. 1.



Figure 1 : Dispositif expérimental utilisé pour la méthode du fil chaud transitoire.

Avant toute campagne de mesure, un étalonnage précis du fil chaud est réalisé afin d'établir la relation entre le signal électrique mesuré et l'élévation de température du fil. La cellule est placée dans un bain thermostaté dont l'eau est portée à des températures entre 20 et 80°C avec des plages de 5°C. On a obtenu une loi donnant le rapport entre la tension de déséquilibre du pont U_d et sa tension d'alimentation V en fonction de la température :

$$U_d/V = 5.12 \times 10^{-4} \cdot T(^{\circ}C) - 1.42 \times 10^{-2} \quad (5)$$

On a vérifié que cette loi était indépendante de la puissance de chauffage et de la valeur de la tension d'alimentation du pont.

4. Résultats expérimentaux

La méthodologie de mesure complète, incluant la résolution du modèle analytique, la procédure d'estimation des paramètres et le dispositif expérimental, a préalablement été validée sur un fluide de référence. Des mesures de conductivité thermique réalisées avec de l'eau déionisée sur une plage de température allant de 20 à 60°C ont montré une excellente concordance avec les données de la littérature, les écarts restant inférieurs à 3.8 % [5].

4.1. Nanofluides de travail

Les nanofluides étudiés sont préparés à partir de nanoparticules (MgO, TiO₂ et graphite) dispersées dans un fluide de base (eau déionisée ou éthanol). La préparation repose sur une méthode en deux étapes, consistant en une dispersion mécanique suivie d'une agitation ultrasonore prolongée afin de limiter l'agrégation des particules [2, 4].

Les suspensions obtenues sont visuellement stables sur la durée des expériences. Des essais de reproductibilité ont été réalisés afin de vérifier l'absence de sédimentation significative pendant le temps de mesure, garantissant la représentativité des résultats expérimentaux. Les différentes combinaisons et fractions volumiques étudiées sont récapitulées dans le Tableau 4.1.

La puissance électrique appliquée au fil est de 0.5 W pour les fluides à base d'eau (MgO/eau et TiO₂-MgO/eau) et de 0.05 W pour le fluide à base d'éthanol (Graphite/éthanol). Ce choix permet d'assurer un compromis entre un rapport signal sur bruit suffisant et le maintien d'un régime de conduction thermique pure. Les durées de mesure sont limitées à des temps inférieurs à 2 min, ce qui permet d'éviter l'apparition de la convection naturelle au sein du fluide.

Nanoparticule	Fluide de base	Fraction volumique ϕ (%)
MgO	Eau	0,112
		0,224
		0,448
TiO ₂ -MgO (Hybride)	Eau	0,112
		0,224
		0,448
Graphite	Éthanol	0,302
		0,603
		0,901

Tableau 1 : Composition des nanofluides étudiés.

4.2. Mesures de conductivité thermique

Les mesures sur le fluide **MgO/eau** donnent les résultats présentés à la Figure 2.a.

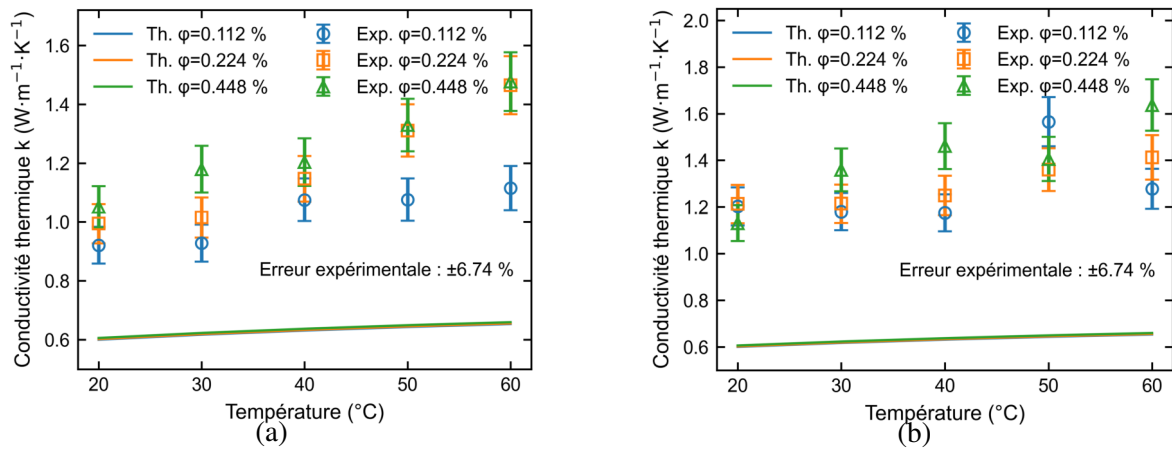


Figure 2 : Conductivité thermique du nanofluide MgO/eau (a) & du nanofluide TiO₂-MgO/eau (b).

Un écart important entre les conductivités des nanofluides et la conductivité de l'eau de base est constaté. Cet écart est évalué à 63 % pour la première fraction volumique (0.112 %), 88,67 % pour la deuxième (0.224 %) et 98,68 % pour la troisième (0.448 %).

En utilisant un algorithme de régression polynomiale multivariée, on a pu établir la loi de comportement suivante pour la conductivité thermique λ en fonction de la fraction volumique ϕ et de la température T :

$$\lambda(\phi, T) = 8,27 \cdot 10^{-1} + 2,35 \cdot 10^1 \phi + 5,10 \cdot 10^{-4} T - 7,24 \cdot 10^1 \phi^2 + 9,73 \cdot 10^{-1} \phi T + 7,86 \cdot 10^{-5} T^2 \quad (6)$$

où T est en $^{\circ}C$ et λ en $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$.

Cette loi présente une erreur absolue moyenne (MAE) de $0,049 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$.

Les mesures sur le fluide hybride **TiO₂-MgO/eau** sont présentées dans la figure 1.b. Un décalage encore plus marqué est observé pour ce fluide, avec une augmentation de 104 % pour la première fraction, 108 % pour la deuxième et 122 % pour la troisième. La loi de conductivité identifiée est la suivante :

$$\lambda(\phi, T) = 1,08 - 2,95 \cdot 10^1 \phi + 4,90 \cdot 10^{-3} T + 2,40 \cdot 10^1 \phi^2 + 1,66 \phi T - 2,64 \cdot 10^{-5} T^2 \quad (7)$$

L'erreur absolue moyenne (MAE) est ici de $0,066 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$.

Il faut noter que pour ces deux fluides à base d'eau, en plus de l'augmentation notable de la conductivité thermique avec la fraction volumique, l'évolution de la conductivité en fonction de la température présente une pente plus forte lorsque la fraction volumique en nanoparticules augmente.

Enfin, les mesures sur le fluide **Graphite/éthanol** sont présentées à la Figure 3.

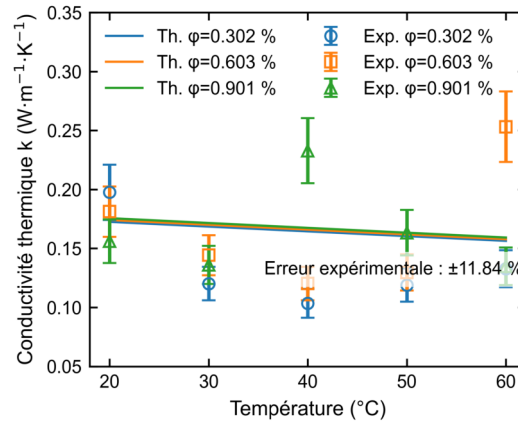


Figure 3 : Conductivité thermique du nanofluide Graphite/éthanol.

Pour ce fluide, à cause de la puissance de chauffe très faible imposée ($0,05 \text{ W}$), les signaux présentent des bruits qui influencent le traitement et la précision des valeurs estimées.

Par ailleurs, pour l'ensemble des configurations testées, il est apparu que le modèle théorique classique de Maxwell [11] sous-estime systématiquement les valeurs mesurées. En effet, pour les deux fluides à base d'eau (MgO et $\text{TiO}_2\text{-MgO}$), les modèles ne prévoient respectivement que des augmentations marginales de $0,15\%$ et $1,5\%$, échouant ainsi à capturer l'ordre de grandeur de l'amélioration thermique observée expérimentalement (supérieure à 60%). Cet échec des modèles classiques de milieux effectifs s'explique par leurs hypothèses restrictives : particules sphériques isolées, non interagissantes, dans un milieu continu. Plusieurs mécanismes proposés dans la littérature permettent d'interpréter qualitativement les gains observés [12, 3]. L'agglomération des nanoparticules peut former des réseaux percolants constituant des chemins de conduction thermique préférentielle, augmentant ainsi la conductivité effective bien au-delà des prédictions de Maxwell [11]. Le mouvement Brownien des nanoparticules induit une micro-agitation locale qui intensifie le transport de chaleur à l'échelle nanoscopique, et dont l'intensité croît avec la température, ce qui pourrait expliquer qualitativement l'augmentation de la pente de λ en fonction de T observée pour les deux fluides à base d'eau lorsque la fraction volumique augmente [12]. Enfin, la formation de couches interfaciales nanométriques (nanolayers) de fluide structuré autour des particules, dont la conductivité thermique est intermédiaire entre celle du solide et du liquide, contribue également à l'amélioration observée [4]. La quantification précise de ces mécanismes nécessiterait des caractérisations microstructurales complémentaires (distribution de taille des particules, degré d'agglomération) qui dépassent le cadre de la présente étude.

Concernant le nanofluide Graphite/éthanol, les résultats présentent une dispersion plus importante. La forte incertitude ($\pm 11,84\%$) s'explique par le faible rapport signal sur bruit, lié à la conductivité thermique naturellement faible de l'éthanol ($\lambda \approx 0,17 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$) et à la puissance de chauffe réduite imposée ($0,05 \text{ W}$) pour maintenir le régime de conduction pure. Ces

résultats sont présentés à titre indicatif et appellent des mesures complémentaires à puissance optimisée.

Une analyse rigoureuse des incertitudes associées à ces estimations a été menée selon l'approche de Milošević et Raynaud [1]. L'application de cette méthodologie conduit à des incertitudes relatives sur la conductivité thermique de l'ordre de 6,74 % pour les échantillons A et B, et atteint 11,84 % pour l'échantillon C en raison du rapport signal sur bruit plus faible.

5. Conclusion

Ce travail a permis de développer et valider une méthodologie robuste pour la caractérisation thermique des nanofluides, couplant la méthode du fil chaud transitoire à une modélisation analytique par quadripôles thermiques.

L'application de cette méthode à trois types de nanofluides (MgO/eau, TiO₂-MgO/eau et Graphite/éthanol) a mis en évidence une amélioration significative de la conductivité thermique, croissante avec la température et la fraction volumique. Les gains observés s'avèrent bien supérieurs aux prédictions des modèles classiques de milieux effectifs (Maxwell, Hamilton-Crosser) [11, 13]. L'analyse rigoureuse des incertitudes, évaluées entre 6,7 % et 11,8 % selon la puissance appliquée, confirme la fiabilité de ces observations. Les gains de conductivité observés, bien supérieurs aux prédictions des modèles classiques, pourraient être attribués qualitativement à des mécanismes tels que l'agglomération des nanoparticules, le mouvement Brownien et la formation de nanolayers interfaciales.

Références

- [1] N. D. Milošević and M. Raynaud, *Thermal conductivity measurements : uncertainty analysis*, Proceedings of the 3rd International Conference on Thermal and Mechanical Simulation and Experiments in Microelectronics and Microsystems (EuroSimE), Paris, France (2002).
- [2] S. U. S. Choi and J. A. Eastman, *Enhancing thermal conductivity of fluids with nanoparticles*, Proceedings of the ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition, San Francisco, USA (1995).
- [3] J. Buongiorno, D. C. Venerus, T. Pradeep, J. Philip, T. Barlow, S. Kabelac, et al., *A benchmark study on the thermal conductivity of nanofluids*, Journal of Applied Physics, **106** (2009) 094312.
- [4] J. Buongiorno, *Convective transport in nanofluids*, Journal of Heat Transfer, **128** (2006) 240–250.
- [5] J. J. Healy, J. J. de Groot and J. Kestin, *The theory of the transient hot-wire method for measuring thermal conductivity*, Physica B+C, **82** (1976) 392–408.
- [6] D. Maillet, S. André, J.-C. Batsale, A. Degiovanni and C. Moyne, *Thermal Quadrupoles : Solving the Heat Equation through Integral Transforms*, Wiley, Chichester (2000).
- [7] J. A. Nelder and R. Mead, *A simplex method for function minimization*, Computer Journal, **7** (1965) 308–313.
- [8] F. R. De Hoog, J. H. Knight and A. N. Stokes, *An improved method for numerical inversion of Laplace transforms*, SIAM Journal on Scientific Computing, **3** (1982) 357–366.
- [9] H. Stehfest, *Algorithm 368 : Numerical inversion of Laplace transforms*, Communications of the ACM, **13** (1970) 47–49.
- [10] A. Talbot, *The accurate numerical inversion of Laplace transforms*, Journal of the Institute of Mathematics and its Applications, **23** (1979) 97–120.
- [11] J. C. Maxwell, *A Treatise on Electricity and Magnetism*, Oxford University Press, Oxford (1873).
- [12] J. A. Eastman, S. R. Phillpot, S. U. S. Choi and P. Keblinski, *Thermal transport in nanofluids*, Annual Review of Materials Research, **34** (2004) 219–246.
- [13] R. L. Hamilton and O. K. Crosser, *Thermal conductivity of heterogeneous two-component systems*, Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals, **1** (1962) 187–191.