

Fil chaud en régime périodique: application de la méthode 3ω à la mesure de propriétés thermophysiques de nanofluides.

Mihai CHIRTOC^{1*}, Jean-François HENRY¹, Alpaslan TURGUT², Sebnem TAVMAN³, Ismail TAVMAN², Caroline SAUTER⁴, Joseph PELZL⁵

¹ UTAP/LTP, EA 3802, UFR Sciences de Reims, Moulin de la Housse, B.P. 1039, F-51 687 Reims

² Mechanical Engineering Dept., Dokuz Eylul Univ., 35100 Bornova Izmir, Turkey

³ Food Engineering Dept., Ege Univ., 35100 Bornova Izmir, Turkey

⁴ Inst. of Food Process Engineering, Univ. of Karlsruhe, 76131, Germany

⁵ Inst. fuer Experimentalphysik, Ruhr-Universitaet, D-44801 Bochum, Germany

*(Auteur correspondant : mihai.chirtoc@univ-reims.fr)

Résumé: Nous présentons une nouvelle application du fil chaud en tant que capteur pour effectuer des mesures simultanées et indépendantes des conductivité et diffusivité thermiques de « nanofluides ». Les nanofluides sont des fluides ensemencés de particules de taille nanométrique dans le but d'accroître certaines de leurs propriétés thermophysiques. La méthode dite « 3ω » est basée sur une détection synchrone à la fréquence triple du courant d'excitation du fil. L'identification de la conductivité thermique k s'effectue à partir de la partie imaginaire du signal tandis que la diffusivité thermique a est obtenue à partir de sa phase. Dans le cas de mesures relatives, la précision des résultats est de l'ordre de 0,1% sur k et 0,3% sur a .

Nomenclature

a	diffusivité thermique, $m^2.s^{-1}$	<i>Symboles grecs</i>	
c	capacité calorifique, $J.m^{-3}.K^{-1}$	β	coefficient de température de R , K^{-1}
C	facteur de calibration, $\Omega.m^2.W^{-1}$	μ	longueur de diffusion thermique, m
f	fréquence, Hz	φ	phase, rad
F	amplitude réduite	ρ	résistivité électrique, $\Omega.m$
k	conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$	θ	écart de température, K
l	demi longueur du fil, m	ω	pulsation de modulation élec., $rad.s^{-1}$
I	intensité du courant, A	<i>Indices et exposants</i>	
r	rayon du fil, m	eff	efficace
R	résistance électrique, Ω	p	probe = sonde
S	sensibilité réduite	s	sample = échantillon
V	tension, V	w	water = eau
Z	impédance thermique, $K.W^{-1}$	o	référence à température ambiante
z	impédance spécifique, $(m^2).K.W^{-1}$	Im, A, φ	Imaginaire, amplitude, phase

1. Introduction

Les méthodes de mesure des propriétés thermiques en régime stationnaire ne sont en effet pas adaptées aux fluides du fait de la présence de courant de convection naturelle lors de l'établissement du gradient thermique. En régime instationnaire, la méthode impulsionnelle du fil chaud [1] et les méthodes en régime périodique sont couramment utilisées. Récemment on a montré que la première méthode nécessite des corrections assez compliquées pour prendre en compte la longueur finie du fil [2], et la référence [3] donne d'autres arguments indiquant que la dernière méthode est préférable à la première dans le cas des fluides. La méthode basée sur les oscillations thermiques et la diffusion d'«ondes thermiques» a été

proposée par A. J. Angstrom en 1863. Elle a ensuite été utilisée pour la mesure de la diffusivité thermique de fluides en 1986 [4]. La conductivité thermique [3], la diffusivité thermique [5] ou les deux paramètres [6] sont mesurés en géométrie cylindrique soumise à un flux thermique longitudinal périodique. L'étude des nanofluides fait souvent appel à une interprétation simultanée de mesures de transfert de chaleur transitoire et d'écoulement [7] et les travaux en régime thermique périodique sont rares [8].

J.S. Powell [8] utilise un fil chaud modulé pour mesurer la conductivité thermique de liquide tandis que A. I. Buzin [9] pour une analyse désignée comme microthermique choisit une sonde thermique, fil de Wollaston excité par un courant alternatif, complètement immergée dans différents liquides purs. La méthode 3ω a également été utilisée pour la mesure de conductivité thermique de solides [10] ou d'effusivité thermique [11]. Un descriptif de ces différentes méthodes, 1ω , 2ω et 3ω , se trouve en référence [12].

L'objectif de ce papier est de présenter une méthode précise de mesures simultanées de la conductivité et de la diffusivité thermiques de nanofluides utilisant un fil chaud en régime périodique associée à une détection synchrone sur la 3^{ème} harmonique (méthode 3ω).

2. Théorie

La sonde thermique ("thermal probe", ThP) utilisée peut être considérée comme un fil métallique de longueur $2l$ et de rayon r immergée totalement dans le fluide à analyser et qui est excité en courant alternatif $I(t) = I_0 \cos(\omega t)$. La température $\theta(f, t)$ possède une composante à 2ω proportionnelle à la puissance $P(t) R_0$. Pour un fil suffisamment long, $\theta(f, t)$ est uniforme au long du fil, et aussi sur la section du fil. Sa résistance électrique $R(t)$ est donnée par:

$$R(t) = R_0 [1 + \beta \theta_{2\omega} \cos(2\omega t - \varphi)] \quad (1)$$

et la tension aux bornes du fil est :

$$V(t) = I(t)R(t) = I_0 R_0 \{ \cos(\omega t) + (1/2)\beta \theta_{2\omega} [\cos(\omega t - \varphi) + \cos(3\omega t - \varphi)] \} \quad (2)$$

Le terme en 3ω est généré par le produit de l'excitation en courant à ω et la résistance à 2ω .

$$V_{3\omega}(f) = \frac{I_0 R_0}{2} \beta \theta_{2\omega} \quad (3)$$

A basse fréquence (sous le kHz pour la sonde utilisée), l'énergie thermique stockée par le fil est négligeable et nous pouvons considérer que l'intégralité de la puissance dissipée est transmise par conduction dans le fluide. L'amplitude de la température $\theta_{2\omega}$ est donnée par:

$$\theta_{2\omega} = \frac{I_0^2 \rho (2l) Z_s}{2\pi r^2} \frac{Z_s}{2} \quad (4)$$

expression dans laquelle Z_s est l'impédance de l'interface entre le fil (demi-longueur) et le liquide. Une notation adimensionnée de l'impédance permet d'exprimer les différentes grandeurs en fonction d'un facteur F :

$$F = \frac{Z_s}{Z_p} = \frac{z_s / 2\pi r l}{l / (\pi r^2 k_p)} = \frac{k_p r}{2l^2} z_s \quad (5)$$

où z_s est l'impédance spécifique de contact de l'interface, et Z_p l'impédance thermique de la demi-longueur du fil dans la direction axiale. Si $F \ll 1$, le fil est supposé thermiquement infini et les pertes thermiques par les bords sont négligées. A partir des équations (4) et (5), nous obtenons alors :

$$V_{3\alpha_{eff}}(f) = \left(\frac{I_{eff} l}{\pi r^2} \right)^3 C.F(f) \quad (6)$$

Ici, $C = \rho^2 \beta / k_p$ est le facteur de calibration du constituant du fil [13]. L'équation (6) montre qu'il est possible de normaliser le signal 3ω en utilisant le facteur F qui peut être considéré comme une amplitude réduite.

Pour une source linéique périodique dans un milieu infini homogène en géométrie cylindrique, le facteur F est donnée par [10, 14]:

$$F = \frac{k_p r^2}{2k_s l^2} \left(\ln \frac{\mu_s}{1.2594 r} - i \frac{\pi}{4} \right) \quad (7)$$

μ_s étant la longueur de diffusion thermique dans le milieu $\mu_s = \{a_s / [\pi(2f)]\}^{1/2}$ et $a_s = k_s / c_s$ sa diffusivité thermique. On constate que ce facteur F (et donc l'amplitude du signal 3ω) est inversement proportionnel à la conductivité thermique de l'échantillon k_s et a une dépendance moindre vis-à-vis de la diffusivité thermique a_s et de la fréquence f .

Les sensibilités relatives du module et de la phase du signal complexe par rapport à un paramètre m sont données par :

$$S_{m,A} = \frac{d|F|}{|F|} \bigg/ \frac{dm}{m} \quad \text{et} \quad S_{m,\varphi} = \frac{d\varphi}{\varphi} \bigg/ \frac{dm}{m} \quad (8)$$

Dans notre cas, l'amplitude réduite $|F|$ dépend des deux paramètres k_s et a_s . Cependant, la partie imaginaire $Im(F)$ ne dépend que de k_s (puisque $S_{k,Im(F)} = -1$, $S_{a,Im(F)} = 0$) et la phase φ uniquement de a_s (puisque $S_{k,\varphi} = 0$, $S_{a,\varphi} \neq 0$), rendant possible la mesure simultanée et indépendante des deux paramètres.

Dans ce travail, nous étudions les évolutions des propriétés thermiques de nanofluides (eau pureensemencée de nanoparticules) par rapport à celles de l'eau pure (*water w*). Nous avons donc adopté le schéma de normalisation suivant qui ne requiert, en principe, qu'une seule et unique fréquence d'étude. A partir de l'équation (7), on obtient la formule :

$$\frac{k_s}{k_w} = \frac{Im(F_w)}{Im(F_s)} \quad (9)$$

indépendante de a_s et de la fréquence f . De même, à partir de la phase, nous avons :

$$\cot \varphi_s = \frac{Re(F_s)}{Im(F_s)} = -\frac{4}{\pi} \ln \frac{\mu_s}{1.2594 r} \quad (10)$$

et pour deux mesures à même fréquence :

$$\cot \varphi_s - \cot \varphi_w = \frac{\sin(\varphi_w - \varphi_s)}{\sin \varphi_s \sin \varphi_w} = -\frac{2}{\pi} \ln \frac{\alpha_s}{\alpha_w} \quad (11)$$

Pour de faibles écarts de diffusivités thermiques, on peut écrire :

$$\frac{\alpha_s}{\alpha_w} = 1 + \frac{\pi(\varphi_s - \varphi_w)}{2 \sin^2 \varphi_w} \quad (12)$$

En combinant les équations (8) et (12), la sensibilité de la phase à la diffusivité s'obtient comme $S_{\alpha,\varphi} = (2/\pi) \sin^2(\varphi_w)$ (exprimée en radian pour 100% de variation en diffusivité) et est tracée sur la Figure 1.

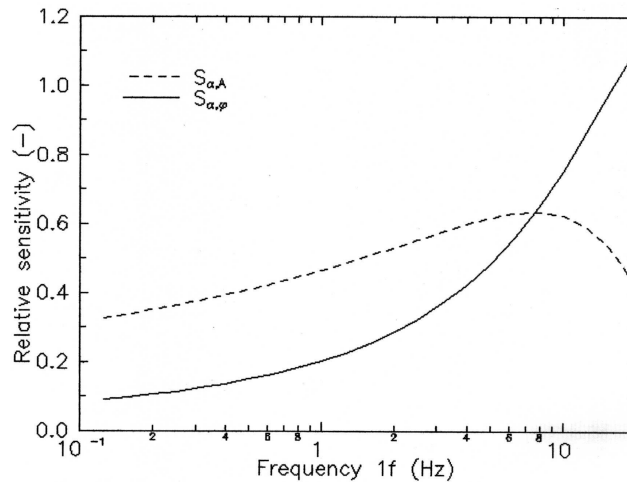


Figure 1 : Sensibilités relatives en amplitude et en phase du signal 3ω à la diffusivité thermique (Eq. 8) calculées à partir du modèle (Eq. 7). L'échantillon est de l'eau distillée et les propriétés thermiques du fil sont celles données dans le paragraphe 3: f est la fréquence électrique d'excitation du fil.

A basse fréquence, la phase (ainsi que sa sensibilité) tend vers zéro. D'autre part, lorsque la fréquence augmente, les parties réelle et imaginaire de F deviennent comparables et la sensibilité à la phase augmente rapidement, mais l'approximation effectuée pour l'équation (7) n'est plus forcément valable. Il apparaît alors un domaine de fréquences telles que $r/\mu_s < 1$ et pour lesquelles les équations (9) et (12) fournissent un bruit minimum et des résultats stables en fonction de la fréquence.

3. Dispositif expérimental

La sonde thermique est constituée d'un fil de Ni de $40 \mu m$ de diamètre, d'une longueur totale de $2l=19 mm$ et dont les propriétés thermophysiques sont: $c=3,95 \times 10^6 J m^{-3} K^{-1}$, $k_p = 90,9 W m^{-1} K^{-1}$, $\rho=6,91 \times 10^{-8} \Omega m$, $\beta=5,19 \times 10^{-3} K^{-1}$, $C = 0,272 \times 10^{-18} \Omega^2 m^3 W^{-1}$.

Le premier terme de l'équation (2) est prédominant et doit être annulé par un pont de Wheatstone. La détection de la 3^{ème} harmonique du signal aux bornes du pont est assurée par un amplificateur à détection synchrone de type Stanford SR850. Avec un courant d'excitation $I_{eff} = 0.17 A$, l'amplitude des oscillations thermiques $\theta_{2\omega}$ dans l'eau est de l'ordre de $1,25 ^\circ C$, générant un signal 3ω de $0,1 mV$. Le volume de liquide testé est ici de l'ordre de $100 ml$ mais le volume minimum nécessaire pour satisfaire l'équation (7) est un cylindre centré autour du fil et de rayon $3\mu_s$ (ce qui donne à $2f = 1 Hz$, un volume de $25 \mu l$). Les échantillons de nanofluides utilisés sont constitués de 10 à 12 % en poids de particules d'Aérosil 200V (particules en silice de $12 nm$ de diamètre, commercialisées par Degussa Co.) dispersées dans l'eau par ultrasons ou par traitement à haute pression. Nous avons utilisé de l'eau distillée comme échantillon de référence.

4. Résultats et discussions

La Figure 2 donne les valeurs mesurées pour l'eau pure (points), exprimées en termes d'amplitude réduite (facteur F) issues de l'équation (6). Les courbes théoriques (Eq. 7) sont représentées en traits pleins. Il est clair que la partie imaginaire ne peut-être négligée. L'accord théorie-expérience est bon en dessous d'une fréquence de 1 Hz ce qui justifie les remarques de la section « Théorie », en particulier concernant la condition $F \ll 1$. Les écarts apparaissent au-delà d'une fréquence de 1 Hz et sont plus prononcées pour les valeurs en phase. En effet, à partir de $2f=100$ Hz, le rapport $r/\mu_w \approx 1$ et en théorie, on devrait obtenir une phase de zéro mais l'offset de phase de 180° de l'amplificateur modifie cette valeur.

Les conductivités et diffusivités relatives sont calculées à l'aide des formules (9) et (12). La Figure 3 correspond aux résultats obtenus pour trois nanofluides. Les valeurs des paramètres sont obtenues dans le domaine de fréquences $1f = 1$ à 2 Hz ($r/\mu_s \approx 0,1$), pour lequel les points de mesure sont constants. A plus basse fréquence, le bruit augmente. Sur la Figure 3, les étoiles correspondent à deux séries effectuées dans l'eau distillée à plusieurs jours d'intervalle. A partir de ces mesures, nous obtenons une reproductibilité des mesures à long terme de l'ordre 0,3% en conductivité et 0,7% en diffusivité. La reproductibilité à court terme du signal, qui affecte les séries consécutives de mesure incluant la calibration dans l'eau pure, est de 0,1% en amplitude et de 0,01 degré en phase. La résolution dépend du temps d'intégration imposé au niveau de l'amplificateur à détection synchrone.

Un phénomène indésirable qui réduit l'augmentation de la conductivité thermique équivalente du mélange, est l'agrégation des nanoparticules. Le tableau 1 donne les résultats obtenus pour les trois échantillons. Ainsi que l'on pouvait s'y attendre, pour une même méthode de dispersion des particules (U1 et U2), les conductivités et diffusivités thermiques augmentent avec le pourcentage de particules. Les différences observées sur deux nanofluides de même constitution (U2 et H) sont attribuées aux différentes méthodes de dispersion utilisées. La dispersion des particules par ultrasons semble plus efficace pour accroître les propriétés thermiques du nanofluide.

Nanofluide	Composition % poids	Méthode de dispersion	Δk_s (%)	$\Delta \alpha_s$ (%)
U1	10	ultrasons	2.5 ± 0.1	3.8 ± 0.3
U2	12	ultrasons	3.5 ± 0.1	4.8 ± 0.3
H	12	haute pression	2.4 ± 0.1	4.1 ± 0.3

Tableau 1 : Variation des conductivités thermiques k_s et diffusivités thermiques a_s par rapport à l'eau. Les échantillons sont des nanofluides à base de particules d'Aerosil 200V dispersées dans l'eau.

5. Conclusion

Nous avons construit un capteur à fil chaud et développé une technique de normalisation des données pour mesurer de façon simultanée et indépendante les conductivités et diffusivités thermiques pour de petits volumes de liquide ($> 25 \mu\text{l}$). Les conditions de validité du modèle d'analyse sont facilement réalisables en pratique. Aucune contrainte, autre que le volume minimum requis, n'est imposée au niveau de la géométrie de l'échantillon. La sonde joue les rôles de source d'excitation et de capteur de température. Le dispositif est compact, réutilisable, de faible coût et peut être utilisé à différents niveaux de température. La nature périodique du signal et l'utilisation d'une détection synchrone permettent d'obtenir une reproductibilité à long terme de 0,3% sur k et 0,7% sur a . Dans le cas de mesures relatives, les résolutions obtenues sont de 0,1% sur k et 0,3% sur a , ce qui rend ce dispositif très performant pour effectuer des recherches précises des propriétés thermophysiques des (nano)fluides dans des applications visant l'amélioration du refroidissement par convection forcée.

Références

- [1] Y. Nagasaka and A. Nagashima, *J. Phys. E: Sci. Instrum.* 14, (1981), 1435-1440.
- [2] H. Xie, H. Gu, M. Fujii and X. Zhang, *Meas. Sci. Technol.* 17 (2006), 208-214.
- [3] P. Bhattacharya, S. Nara, P. Vijayan, T. Tang, W. Lai, P.E. Phelan, R.S. Prasher, D.W. Song and J. Wang, *Int. J. Heat and Mass Transfer* 49 (2006), 2950-2956.
- [4] A. Santucci, L. Verdini and P.G. Verdini, *Rev. Sci. Instrum.* 57 (1986), 1627-1632.
- [5] S. K. Das, N. Putra, P. Thiesen, and W. Roetzel, *J. Heat Transfer* 125 (2003), 567-574.
- [6] W. Czarnetzki and W. Roetzel, *Int. J. Thermophys.* 10 (1995), 413-422.
- [7] M. Kostic and S.U.S. Choi, *Proc. of Multifunctional Nanocomposites MN2006*, (Honolulu, Hawaii 20-22 Sept. 2006), contribution 17036.
- [8] J.S. Powell, *Meas. Sci. Technol.* 2 (1991), 111-117.
- [9] A. I. Buzin, P. Kamasa, M. Pyda and B. Wunderlich, *Thermochim. Acta* 381 (2002), 9-18.
- [10] D.G. Cahill, *Rev. Sci. Instrum.* 61 (1990), 802-808.
- [11] N.O. Birge and S.R. Nagel, *Rev. Sci. Instrum.* 58 (1987), 1464.
- [12] C. Dames and G. Chen, *Rev. Sci. Instrum.* 76 (2005), 124902.
- [13] M. Chirtoc, X. Filip, J.F. Henry, J.S. Antoniow, I. Chirtoc, D. Dietzel, R. Meckenstock and J. Pelzl, *Superlattices and Microstructures* 35 (2004), 305-314.
- [14] H.S. Carslaw and J.C. Jaeger, "*Conduction of Heat in Solids*", Second ed., Oxford Univ. Press, London, UK, (1959).

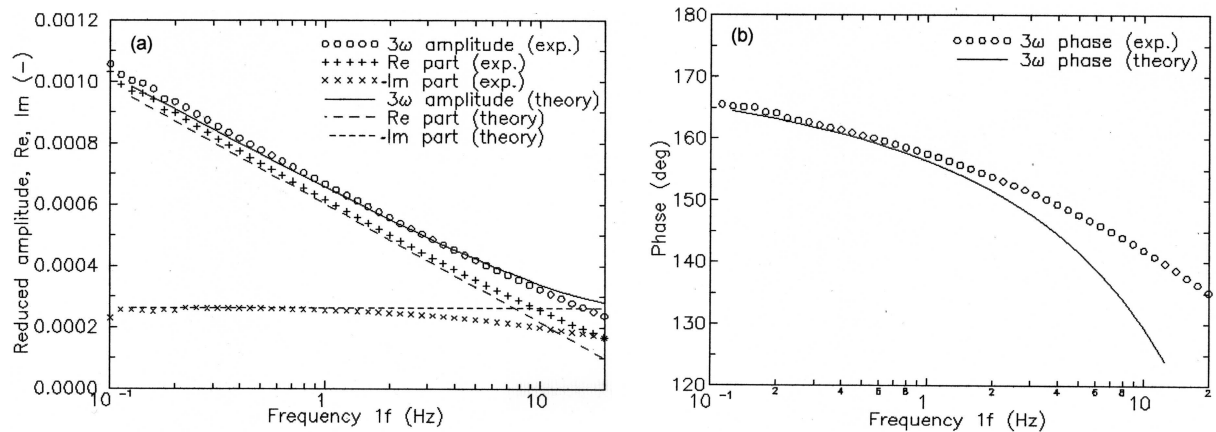


Figure 2 : Résultats expérimentaux pour l'eau : amplitude du signal 3ω et ses composantes (a) et phase (b). L'amplitude réduite (facteur F) est déterminée dans les conditions de l'expérience à partir de l'équation (6) tandis que les courbes théoriques sont obtenues à partir de l'équation (7).

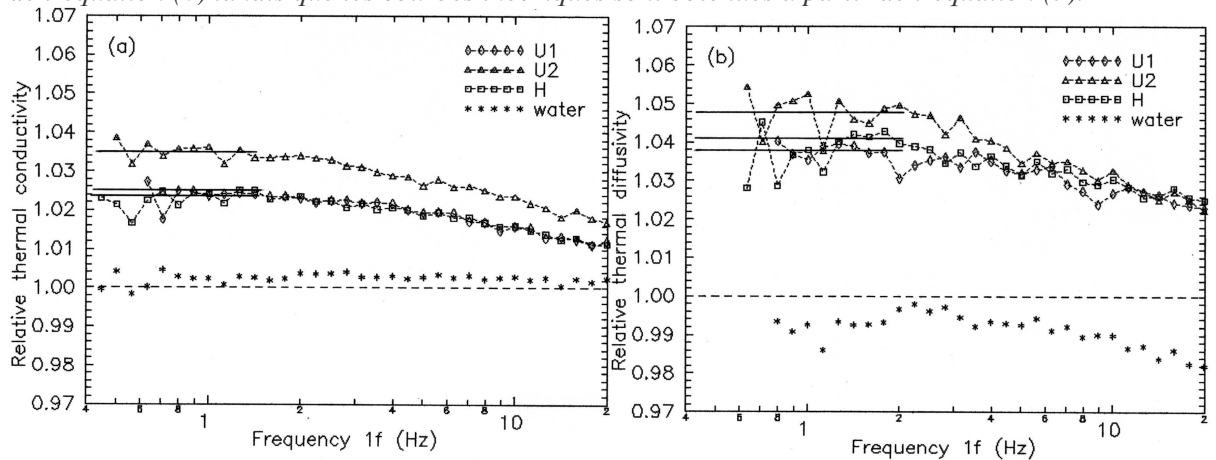


Figure 3 : Valeurs expérimentales des conductivités relatives k_s/k_w (Eq. 9) (a) et diffusivités réduites α_s/α_w (Eq. 12) (b), pour trois nanofluides à base de particules d'Aerosil dans l'eau. Les lignes pointillées servent de guide pour l'œil. Les résultats obtenus pour deux séries de mesures (eau distillée) espacées de plusieurs jours (étoiles) montrent la reproductibilité des mesures avec ce dispositif.