

Analyse par méthode Flash du transfert thermique couplé conducto-radiatif au sein d'une mousse de carbone

Mathieu NIEZGODA¹, Denis ROCHAIS^{1*}, Benoit ROUSSEAU², Patrick ECHEGUT²

¹CEA, DAM, LE RIPAULT, F-37260 MONTS, France

²CEMHTI, CNRS UPR 3079, F-45071 ORLÉANS, France

* (auteur correspondant : denis.rochais@cea.fr)

Résumé - Ce travail a pour but de mieux cerner les mécanismes physiques régissant les transferts thermiques au sein de milieux semi-transparents poreux. Le matériau étudié est une mousse de carbone (100 ppi, porosité ~ 85 %). Nous déterminons sa diffusivité thermique effective à l'aide de la méthode Flash en implémentant un modèle semi-analytique couplé conduction-rayonnement en régime transitoire pour déterminer la température en face arrière. Nous avons mené une étude de sensibilités et de corrélations de paramètres avant de pouvoir conclure sur nos résultats et d'envisager les suites de ce travail.

Nomenclature

e	épaisseur du milieu, m	X_{β_i}	sensibilité au paramètre β_i
\mathbf{H}	quadripôle relatif aux pertes convectives	z	variable d'espace, m
L	luminance, W	<i>Symboles grecs</i>	
L^0	luminance du corps noir, W	α_i	coefficient dans l'étude de corrélations
\mathbf{L}	vecteur apparaissant dans l'expression de la température en face arrière	β	coefficient d'extinction
\mathbf{M}, \mathbf{N}	matrices apparaissant dans le formalisme quadripolaire des modèles	β_i	paramètre dans l'étude de sensibilités
\mathbf{M}_c	quadripôle relatif aux couches purement conductives	θ	température adimensionnelle
N_{pl}	nombre de Planck	ε_i	émissivité de la paroi i
P	fonction de phase de diffusion	μ	direction de diffusion
p	porosité	ρ_i	réflectivité de la paroi i
q	densité de flux de chaleur, $W.m^{-2}$	τ_0	épaisseur optique (βe)
Q	densité d'énergie du flash, $W.m^{-2}$	τ	profondeur optique (βz)
t	temps, s	ω	albédo
T	température absolue, K	<i>Indices et exposants</i>	
T_0	température de référence, K	r	radiatif
		$1/2$	relatif à la face avant/arrière
		*	quantité adimensionnée
		'	quantité directionnelle

1. Introduction – Contexte et objectif de l'étude

Nos recherches tentent de mieux cerner les mécanismes physiques régissant les transferts thermiques au sein de milieux semi-transparents poreux dont la taille moyenne des diffuseurs (pores, grains, brins) est supérieure à la longueur d'onde incidente. Pour cela, nous travaillons sur différents matériaux tels que des verres à bulles et des mousses de carbone ou métalliques. L'objectif est aussi de caractériser ces matériaux en déterminant leurs propriétés thermophysiques à différentes températures afin de prévoir leur comportement thermique lors de leur usage (isolation, diffusion des gaz dans les piles à combustible SOFC, ...).

Dans cet article, nous cherchons à déterminer par méthode inverse les propriétés thermiques effectives d'une mousse de carbone ayant les caractéristiques stéréologiques

suivantes à $T = 300 \text{ K}$: $\varnothing = 20 \text{ mm}$, $e = 7 \text{ mm}$, 100 ppi (pores per inch) et $p \sim 85 \%$. Cet échantillon a fait l'objet d'une caractérisation texturale par micro-tomographie X et sa diffusivité thermique a été caractérisée par la méthode Flash [1].

Dans un premier temps, l'expérience mise en place et le modèle théorique direct, permettant d'obtenir la température en face arrière de l'échantillon seront décrits. Puis, une étude de sensibilités et de corrélations de paramètres montrera quels sont les paramètres physiques identifiables. Cette étude originale met en évidence les corrélations de plusieurs paramètres entre eux et non plus par couple. Enfin, nous présenterons nos résultats et les suites que nous comptons donner à ce travail.

2. Modélisation de la méthode Flash

Cette partie s'attache à présenter la modélisation semi-analytique du transfert de chaleur couplé conduction-rayonnement dans un milieu semi-transparent poreux dans le cadre de la méthode Flash. La caractérisation expérimentale est déterminée à $T = 300 \text{ K}$.

2.1. Description de l'expérience

La détermination de la diffusivité thermique effective de notre échantillon est réalisée par un dispositif expérimental fondé sur la méthode Flash [2], qui consiste à exciter la mousse par une brève impulsion thermique (longueur d'onde $1,06 \mu\text{m}$) en face avant et à mesurer la réponse temporelle en température sur sa face arrière (appelée thermogramme). Notre échantillon de mousse de carbone ne peut être caractérisé sans prendre quelques précautions. En effet, en l'état, l'absorption de l'énergie se fait dans le volume de l'échantillon (voire le traverse directement), rendant ainsi non uniforme son dépôt en face avant. Les faces avant et arrière de ce milieu alvéolaire ont donc été imprégnées d'une colle graphite opacifiante (931 Cotronics) permettant l'absorption du rayonnement produit par l'excitation en face avant et la réémission du rayonnement induit par l'échauffement du milieu par la face arrière transformant ainsi la mousse en un milieu tricouche. Les propriétés thermiques de ces couches supplémentaires (ligaments de la mousse + colle), de $250 \mu\text{m}$ d'épaisseur ont été elles aussi caractérisées afin d'obtenir les données d'entrée nécessaires à l'estimation de paramètres par notre modèle théorique, décrit ci-après.

2.2. Modèle théorique développé

2.2.1. Hypothèses de la modélisation

Nous considérons ainsi un milieu monodimensionnel plan, d'épaisseur e , compris entre deux faces planes parallèles opaques, à réflexion et émissions diffuses, et équivalent à un milieu homogène effectif dont on veut déterminer les propriétés thermiques. De part et d'autres de ce milieu se trouvent deux couches supposées purement conductives. Le transfert de chaleur couplé conduction-rayonnement peut donc être considéré comme unidirectionnel (dans la direction axiale notée z). Cette hypothèse se justifie par le rapport des dimensions des échantillons utilisés en pratique.

Le transfert radiatif présente une symétrie azimutale i.e. les grandeurs ne dépendent pas de l'angle azimut. Le milieu est initialement à une température uniforme T_0 et reçoit à $t = 0$ une quantité d'énergie Q déposée uniformément sur sa face avant et dont la forme temporelle est supposée être un Dirac.

Dans le cadre de ce travail et pour faciliter cette première démarche, nous avons utilisé l'hypothèse du milieu gris (propriétés du milieu indépendantes de la longueur d'onde).

2.2.2. Équations du problème

Les équations qui gouvernent notre problème sont l'équation de la chaleur (1) et l'équation du transfert radiatif (2) que nous avons mises sous forme adimensionnelle [3].

$$\frac{\partial \theta(z^*; t^*)}{\partial t^*} = \frac{\partial^2 \theta(z^*; t^*)}{\partial z^{*2}} - \frac{\tau_0 T_0^*}{N_{pl}} \frac{\partial q_r^*(z^*; t^*)}{\partial z^*} \quad (1)$$

$$\frac{\mu}{\beta e} \frac{dL^*(z^*; \mu)}{dz^*} + L^*(z^*; \mu) = (1 - \omega) L^{*0}(T) + \frac{\omega}{2} \int_{-1}^1 P(\mu; \mu') L^*(z^*; \mu') d\mu' \quad (2)$$

Pour résoudre l'Éq. (2), nous devons tenir compte de deux conditions aux limites radiatives (3) et (4) et de deux conditions aux limites portant sur le flux total (5) et (6) :

$$L^{*+}(0; \mu) = \varepsilon_1 L^{*0}(T(0)) + 2\rho_1 \int_0^1 L^{*+}(0; -\mu) \mu d\mu \quad \mu > 0 \quad (3)$$

$$L^{*-}(1; \mu) = \varepsilon_2 L^{*0}(T(1)) + 2\rho_2 \int_0^1 L^{*-}(1; \mu) \mu d\mu \quad \mu < 0 \quad (4)$$

$$-\frac{\partial \theta}{\partial z^*} \Big|_{z^*=0} + \frac{\tau_0 T_0^*}{N_{pl}} q_r^*(0) = q^*(0) \quad (5)$$

$$-\frac{\partial \theta}{\partial z^*} \Big|_{z^*=1} + \frac{\tau_0 T_0^*}{N_{pl}} q_r^*(1) = q^*(1) \quad (6)$$

Nous avons considéré le cas assez général d'une diffusion anisotrope dont la fonction de phase est régie par une décomposition en polynôme de Legendre du second ordre qui s'écrit :

$$P(\mu; \mu') = 1 + a_1 \mu \mu' + \frac{1}{4} a_2 (3\mu^2 - 1)(3\mu'^2 - 1) \quad (7)$$

2.2.3. Résolution du problème

Nous avons résolu le système d'équations couplées précédent semi-analytiquement dans l'espace de Laplace (avec retour temporel par inversion numérique), à l'aide des méthodes des quadripôles (Figure 1) et de substitution de noyau associées à une méthode P1 selon le même formalisme que [3]. Le profil de température est donné par la formule (8).

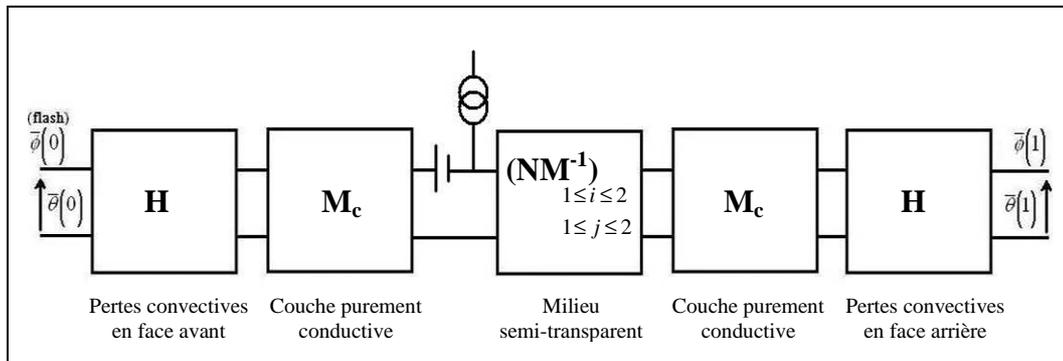


Figure 1 : Schéma quadripolaire du modèle tricouche

$$\bar{\theta}(1) = \frac{1}{(\mathbf{HM}_c \mathbf{NM}^{-1} \mathbf{M}_c \mathbf{H})_{2,1}} \left(1 - \sum_{i=3}^{10} (\mathbf{HM}_c \mathbf{NM}^{-1})_{2,i} \mathbf{L}_{i-2} \right) \quad (8)$$

Une fois ce modèle direct établi, il s'agit de mener l'estimation de paramètres en résolvant le problème inverse à l'aide de l'algorithme de Levenberg-Marquardt. Nous nous sommes intéressés à l'estimation de quatre paramètres intervenant dans le modèle : l'épaisseur optique, le nombre de Planck, l'albédo et la diffusivité thermique effective.

3. Étude de sensibilités et de corrélations - Résultats

En premier lieu, une étude de sensibilités (détaillée dans [4]) **a été menée afin de savoir si l'estimation des paramètres est effectivement possible.** Pour rappel, une sensibilité est la dérivée adimensionnée d'une grandeur par rapport à un paramètre donné. Cette étude, réalisée sur des thermogrammes simulés bruités, montre que les paramètres radiatifs ne sont pas identifiables à 20 °C par cette expérience, contrairement à la diffusivité thermique, seul paramètre identifiable avec une très bonne précision (1 à 2 % d'erreur en moyenne). Nous allons expliquer pourquoi.

3.1. Étude de corrélation

Une condition nécessaire pour pouvoir estimer correctement des paramètres est qu'ils ne soient pas corrélés entre eux i.e. qu'il n'existe pas de combinaison linéaire liant une sensibilité aux autres. Par ailleurs, un paramètre n'est pas nécessairement corrélé qu'avec un seul autre paramètre mais peut parfois l'être avec plusieurs. À notre connaissance, cela n'avait pas été envisagé jusqu'à présent. Afin de savoir avec quels paramètres un autre est corrélé, la méthode que nous présentons consiste à supposer *a priori* que chaque sensibilité puisse s'écrire comme une combinaison linéaire d'une ou plusieurs autres sensibilités aux autres paramètres du modèle (9).

$$X_{k>1}^* = \sum_{\substack{i=1 \\ i \neq k}}^N \alpha_i X_i^*, \quad \begin{cases} N \in \{1, 2, 3\} \\ k \in \{2, 3, 4\} \end{cases} \quad (9)$$

On cherche alors à estimer les coefficients de cette combinaison par une méthode des moindres carrés afin de voir si chaque sensibilité peut effectivement s'écrire comme une telle combinaison linéaire. Si tel est le cas (en s'assurant que des coefficients de la combinaison linéaire ne soient pas nuls), les paramètres dont les sensibilités sont mises en jeu dans cette égalité sont corrélés entre eux. Au contraire, si une sensibilité ne peut pas s'écrire comme combinaison linéaire de certaines autres, les paramètres concernés ne sont pas corrélés entre eux. Il convient alors de voir s'ils ne le sont pas en prenant en compte un ou plusieurs paramètres supplémentaires. On augmente alors le nombre de sensibilités considérées dans l'écriture de la combinaison linéaire et on refait le même type d'étude.

Si des paramètres sont corrélés, on ne pourra pas les identifier correctement. Il peut alors être nécessaire de fixer certains paramètres corrélés à une valeur nominale plausible pour retirer ce qu'on pourrait appeler de l'hyperstatisme dans l'estimation de paramètres.

3.2. Applications à notre étude

Nous avons donc d'abord cherché à exprimer chaque sensibilité en fonction d'une seule autre puisque si deux paramètres sont corrélés, cela se traduit par une relation linéaire entre

leurs deux sensibilités (droite dans le plan formé par ces deux sensibilités). En pratique, le tracé de chaque sensibilité en fonction de chacune des autres n'est pas linéaire et par conséquent, aucun des paramètres n'est corrélé avec un seul des autres.

Nous avons ensuite cherché à exprimer chaque sensibilité en fonction de deux autres (corrélations entre trois paramètres) en effectuant l'estimation des coefficients d'une sensibilité qui s'écrirait comme combinaison linéaire de deux autres. Nous avons tracé sur un même graphe (les Figures 2 et 3 donnent des exemples significatifs) la sensibilité considérée et les différentes combinaisons linéaires envisageables avec les coefficients estimés et nous avons procédé de la même manière pour chercher à exprimer chaque sensibilité en fonction des trois autres (étude de corrélation entre tous les paramètres).

On a pu constater que les trois sensibilités aux paramètres radiatifs pouvaient s'exprimer comme une combinaison linéaire des deux sensibilités aux deux autres paramètres radiatifs, puisque les courbes correspondantes se superposent parfaitement. Ceci prouve que ces trois paramètres sont corrélés et explique pourquoi on ne peut pas les estimer avec cette expérience. Par contre, dès que la sensibilité à la diffusivité thermique intervient (Figure 2), aucune combinaison linéaire ne coïncide avec la sensibilité considérée. Ainsi, on conclut que la diffusivité thermique n'est pas corrélée avec deux autres paramètres.

Pour montrer qu'elle ne l'est pas avec les trois autres paramètres, on s'intéresse alors aux combinaisons linéaires faisant intervenir trois sensibilités. Chaque sensibilité aux paramètres radiatifs s'exprime comme combinaison linéaire des trois autres sensibilités (chaque courbe donnant ces sensibilités coïncide avec la courbe de la combinaison linéaire des trois autres sensibilités avec les coefficients estimés). Mais le coefficient multiplicateur de la sensibilité à la diffusivité thermique est quasi nul et on retrouve bien le résultat précédent. La sensibilité à la diffusivité thermique ne s'exprime pas comme une combinaison linéaire des trois autres sensibilités (Figure 3) prouvant ainsi que la diffusivité thermique n'est corrélée avec aucun paramètre ou ensemble de paramètres, ce qui permet son estimation par notre modèle.

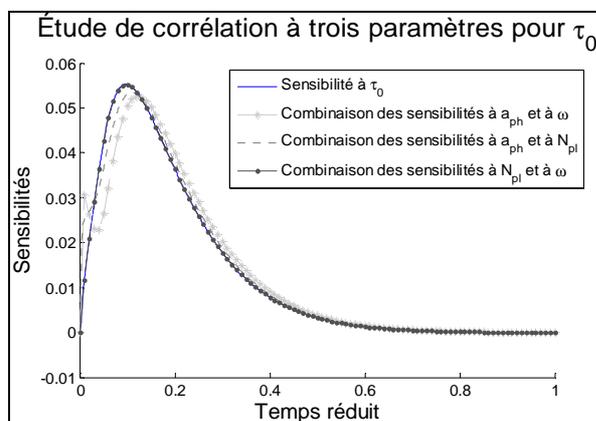


Figure 2 : Étude de corrélation entre trois paramètres pour l'épaisseur optique

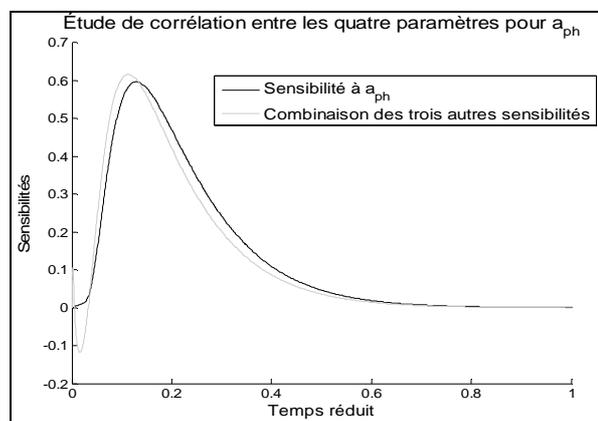


Figure 3 : Étude de corrélation entre quatre paramètres pour la diffusivité thermique

3.3. Résultats

On peut noter (cf. Figure 4) une très bonne concordance entre l'expérience et la théorie et la nécessité de la prise en compte du transfert couplé conducto-radiatif pour une estimation correcte de la diffusivité thermique. Ainsi donc, la diffusivité thermique effective de la mousse de carbone étudiée, estimée par notre modèle à 20 °C, est de $6,5 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Rappelons que la diffusivité thermique d'un ligament de la mousse est de $3,36 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ [5].

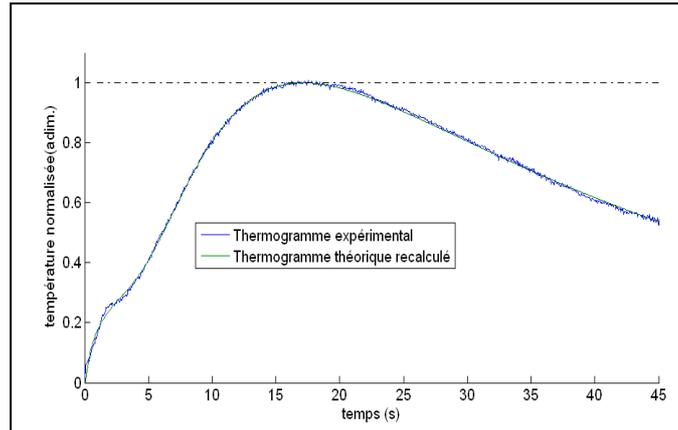


Figure 4 : Estimation de paramètres pour la mousse de carbone

4. Conclusion

Notre étude a permis de déterminer la diffusivité thermique effective d'une mousse de carbone à $T = 300$ K à partir d'un thermogramme issu de la méthode Flash. Comme l'a montré l'étude portant sur la sensibilité, la méthode mise en œuvre ne permet pas pour cette température de déterminer les grandeurs radiatives. La prochaine étape consistera à déterminer les grandeurs radiatives de l'échantillon à l'aide d'une technique de Monte-Carlo par lancer de rayons et ce à partir de la détermination conjointe des indices optiques du squelette solide et de la texture de la mousse tomographiée [6]. Ce travail permettra aussi de reproduire, pour des températures plus élevées, le thermogramme expérimental de la mousse via la connaissance de la diffusivité thermique en prenant en compte la dépendance spectrale des propriétés radiatives [7]. Enfin, nous pensons que la sensibilité aux paramètres radiatifs augmente fortement avec la température et nous reprendrons cette démarche pour voir si une estimation de ces paramètres est alors possible.

Références

- [1] W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Butler, G. L. Abbott, Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity and thermal conductivity, *J. of appl. Phys.*, 32 (1961), 1679-1684.
- [2] B. Hay, S. Barré, J-R. Filtz, M. Jurion, D. Rochais and P. Sollet, A new apparatus for measuring thermal diffusivity and specific heat of solid at very high temperature, *International Journal of Thermophysics*, 27 (2006), 1803-1815.
- [3] M. Lazard, S. André, D. Maillet, Diffusivity measurement of semi-transparent media : model of coupled transient heat transfer and experiments on glass, silica glass and zinc selenide, *Int. J. Heat and Mass Transfer*, 47 (2004), 477-487.
- [4] M. Niezgoda, *Modélisation de la méthode Flash utilisée pour caractériser la diffusivité thermique de matériaux semi-transparents*, Mémoire de master 2 ENSEM-CEA (2009).
- [5] G. Chollon, S. Delettretz, F. Langlais, G. Vignoles, D. Rochais, Carbon Open Cell Foams with Tunable Properties, *Carbon* (Biarritz, 14-19 juin 2009).
- [6] B. Rousseau, D. De Sousa Meneses, P. Echegut, M. Di Michiel, J.F. Thovert, Prediction of the thermal radiative properties of an X-Ray μ -tomographed porous silica glass, *J. Phys. D : Appl. Opt.*, 46 (2007), 4266.
- [7] H. Gomart, *Modélisation des propriétés thermo-radiatives de revêtements à haute efficacité énergétique*, Thèse de l'Université d'Orléans (2008).