

Conductivité thermique effective des mousses cellulaires.

Cuong PHAM-HUU¹, David EDOUARD^{2,3*}

¹ Laboratoire des Matériaux, Surfaces et Procédés pour la Catalyse, UMR 7515 CNRS - Université de Strasbourg, 25 rue Becquerel 67087 STRASBOURG.

² University of Strasbourg Institute for Advanced Study (USIAS), Strasbourg, France

³ LAGEP, Université Claude Bernard Lyon 1, UMR CNRS 5007, 43 Bd du 11 Novembre 1918, 69622 Villeurbanne Cedex, France

*(auteur correspondant : edouardd@unistra.fr)

Résumé

Le développement de procédés composés de matériaux structurés tels que les mousses cellulaires représente une avancée importante dans l'intensification des opérations unitaires (échangeur de chaleur, réacteur chimique, etc.). Les principaux avantages des mousses cellulaires résident dans la haute surface de contact entre le fluide et la phase solide ainsi qu'une facilité de mise en œuvre. La connaissance des propriétés de transport dans ce milieu poreux est donc devenue indispensable pour assurer son développement à l'échelle industrielle. Dans ce contexte, nous avons développé un modèle géométrique qui permet de 'mimer' au mieux la structure morphologique de la mousse cellulaire et ainsi d'estimer la conductivité thermique effective en présence d'un fluide au repos (contribution statique) et/ou en mouvement (contribution dynamique).

Nomenclature (11 points, 2 colonnes)

a Diamètre des pores ou des fenêtres, (m)

ds Diamètre des ponts, (m)

P Nombre de Peclet, (-)

Symboles grecs

ϕ Taille des cellules, (m)

ε Porosité, (-)

λ Conductivité thermique, (W.m⁻¹.K⁻¹)

Indices et exposants

s Statique

eff Effective

D Dispersion ou dynamique

1. Introduction

Le développement de procédés composés de matériaux structurés (MS) représente une avancée importante pour la maîtrise des transferts de chaleur dans les procédés industriels (échangeur de chaleur, réacteur chimique, etc.). Les principaux avantages des MS résident dans la haute surface de contact entre le fluide et la phase solide ainsi qu'une facilité de mise en œuvre. L'exemple le plus connu est le 'packed-bed' (grains) qui est fréquemment utilisé dans l'industrie. Cependant, ce lit fixe peut induire d'importante perte de charge et présente une conductivité thermique effective généralement faible. Dans ce contexte, l'utilisation des mousses cellulaires [1] (Fig.1) peut s'avérer intéressante pour l'intensification des procédés. Ces mousses sont composées d'une structure alvéolaire interconnectée par des ponts de quelques micromètres de diamètre et présentent une haute porosité ($\varepsilon > 0.8$). Les propriétés morphologiques (porosité, taille des ponts, etc.) sont facilement ajustables au besoin hydro-thermal des procédés. Dans les procédés industriels, la conductivité thermique et la perte de charge constituent les paramètres 'clefs' pour le dimensionnement des procédés. Si actuellement la perte de charge concernant les mousses cellulaires a été largement documentée dans la littérature [2], relativement peu d'études sont consacrées à l'investigation des phénomènes de transferts de chaleur dans ces MS. Les principaux travaux ont été présentés par Kaviany et al. [3], Sullins et al. [4].

Dans ce contexte, nous avons développé un modèle géométrique basé sur un empilement de dodécaèdre pentagonal régulier [5] qui permet de ‘mimer’ au mieux la morphologie de la mousse. Ce modèle permet d’établir une relation entre le volume du solide (squelette) et le volume élémentaire de la cellule. A partir de cette relation et d’une structure périodique simple (c.à.d. un cube modifié en ses sommets), nous sommes capables de calculer de façon analytique la conductivité effective statique de la mousse cellulaire sans aucun paramètre d’ajustement mais seulement en fonction de la porosité. Sachant que la conductivité thermique effective globale d’un milieu poreux est la contribution de deux termes : (i) conductivité statique (fluide au repos) et (ii) dynamique (fluide en mouvement) (en négligeant les phénomènes de radiation), une relation empirique a également été utilisée pour quantifier la dispersion thermique [6]. Enfin, les résultats seront comparés aux données expérimentales et aux principaux modèles de la littérature concernant les mousses cellulaires.

2. Mousse cellulaire et structure périodique idéale.

Les mousses cellulaires peuvent être manufacturées de différentes natures et formes géométriques. Dans ce travail, nous ne considérerons que les mousses cellulaires obtenues à partir de la technique de réplcation des mousses de polyuréthane (Fig. 1). Il est maintenant bien établi qu’il n’existe pas de consensus général pour définir les principaux paramètres morphologiques de la mousse. Cependant, quatre paramètres sont généralement utilisés dans la littérature pour décrire les mousses: d_s (diamètre des ponts), a (diamètre des fenêtres ou ‘pores’), Φ (diamètre de la cellule élémentaire) et ε (porosité). Plusieurs travaux de recherches théoriques ont reporté des modèles géométriques pour établir des relations entre ces quatre paramètres. Parmi ces études, Truong et al. [5] ont proposé un nouveau modèle basé sur un empilement de dodécaèdre pentagonal régulier [5] (Fig. 1). En plus d’avoir de nombreuses similitudes avec la cellule unitaire qui constitue la mousse, il permet de prendre en compte la présence de ponts cylindriques ou triangulaires ainsi que l’accumulation ou non de matière aux nœuds du réseau (modèle ‘Fat’ ou ‘Slim’). Ce modèle sera utilisé dans le paragraphe suivant pour estimer la conductivité thermique effective.

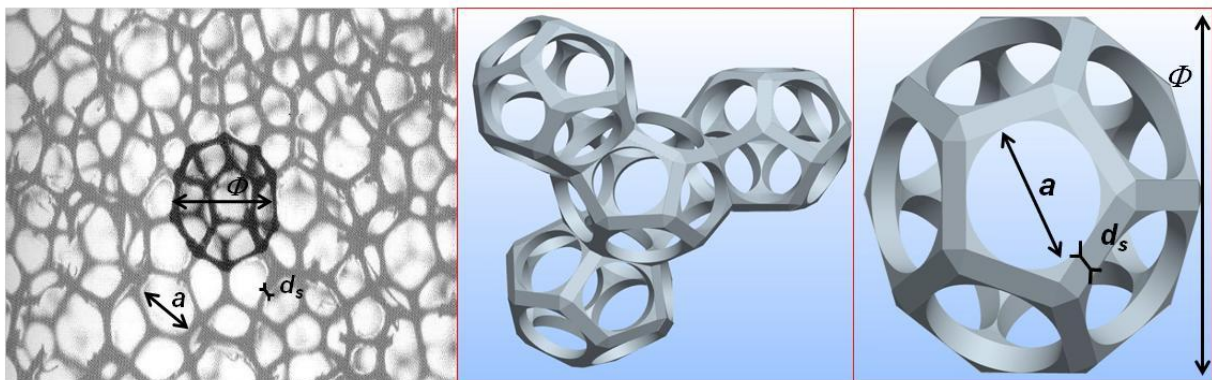


Figure 1: Mousse cellulaire et modèle dodécaèdre pentagonal régulier.

3. Conductivité thermique effective

Dans un procédé chimique où les phénomènes de radiation sont négligeables, la conductivité thermique effective globale (λ_{eff}) du milieu poreux est composée généralement de deux termes : (i) statique (ou stagnant, λ_{eff}^s) et (ii) dynamique (ou dispersion, λ_{eff}^d) (Zehner et al. [7]; Hunt et al. [8], Calmidi et al. [9]):

$$\lambda_{eff} = \lambda_{eff}^s + \lambda_{eff}^d \quad (1)$$

λ_{eff}^s est directement lié à la nature et géométrie du milieu poreux. Dans la littérature, il existe différents travaux qui proposent des modèles empiriques ou analytiques prenant en compte la morphologie du milieu et les conductivités intrinsèques de chaque phase (fluide et solide) pour l'estimation de la conductivité statique d'une mousse cellulaire. Les principaux travaux sont ceux présentés par Calmidi et al. [9], Boomsma et al. [10] et Edouard [11]. Calmidi et al. [9], ainsi que Boomsma et al. [10] ont indépendamment et simultanément développé des modèles géométriques pour cette estimation. Leurs travaux sont essentiellement focalisés sur les mousses métalliques saturées par un fluide (air ou eau) au repos. Dans ces deux approches, les auteurs montrent que la porosité du milieu ainsi que le rapport de l'intersection des ponts avec leurs diamètres sont les paramètres majeurs dans l'estimation de la conductivité. Les deux modèles développés impliquent un paramètre géométrique inconnu (r) qui représente le ratio du diamètre des ponts avec le nœud carré ou circulaire (selon le modèle considéré). Ce ratio (r) est alors directement ajusté à partir des mesures réalisées par les auteurs et non par des calculs théoriques. Dernièrement, une première étude proposée par Edouard [11] permet de calculer la conductivité effective statique sans aucune identification paramétrique. Dans ce travail, l'auteur utilise directement les relations géométriques du modèle dodécaèdre pentagonal régulier ('Fat') pour calculer le ratio (r). Ensuite à partir des travaux de Zehner et al. [7], Dul'nev [12], Calmidi et al [9] et Boomsma et al [10], ainsi qu'une analogie avec un empilement de cube modifié (Fig. 2), il propose de déterminer simplement la conductivité effective statique d'une mousse cellulaire seulement à partir de la porosité. Dans ce dernier modèle, le volume accumulé aux intersections est représenté par des cubes de taille ($2x$) variable en fonction de la porosité et donné directement par le modèle 'Fat' dodécaèdre pentagonal régulier.

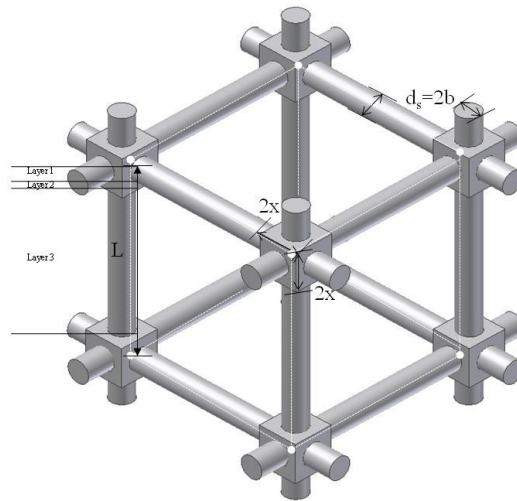


Figure 2 : *Modèle cubique modifié équivalent au modèle 'Fat'.*

La technique consiste à diviser la cellule unitaire en couche (Layer1,2 et 3). La conductivité effective statique de chaque partie (ou Layer) est obtenue directement par les fractions volumiques et les conductivités intrinsèques des phases :

$$\lambda_n = \frac{V_{n,solid} \lambda_s + (V_{n,cell} - V_{n,solid}) \lambda_f}{V_{n,cell}} \quad (2)$$

Ensuite, la conductivité thermique effective statique de la cellule complète est calculée par la méthode électro-thermique qui consiste à combiner les différentes couches. En série, λ_{eff}^s est donné par:

$$\frac{\sum_1^n L_n}{\lambda_{eff}^s} = \sum_1^n \left(\frac{L_n}{\lambda_n} \right) \quad (3)$$

Dans le cas des mousses cellulaires, λ_{eff}^s est alors donné par: (voir Edouard [11] pour les détails):

$$\begin{aligned} \frac{1}{\lambda_{eff}^s} &= \frac{2d}{(d^2(4y^2 - 2\pi y) + \pi d)\lambda_s + (d^2(2\pi y - 4y^2) - \pi d + 1)\lambda_f} \\ &+ \frac{2d(y-1)}{(4y^2d^2)\lambda_s + (1-4y^2d^2)\lambda_f} + \frac{(1-2dy)}{(\pi d^2)\lambda_s + (1-\pi d^2)\lambda_f} \\ &\text{avec } \begin{cases} y = x/b \text{ ('Fat' modele) et } y = 1 \text{ ('Slim' modele)} \\ d = b/L \end{cases} \end{aligned} \quad (4)$$

Enfin, la contribution de la conductivité dynamique peut facilement être obtenue par la corrélation empirique proposée par Edouard et al. [6], Truong-Huu et al. [13], et Saber et al. [14] pour les coordonnées radiales et axiales.

$$\frac{\lambda_{eff}^d}{\lambda_g} = \frac{1}{Pe} \text{Re Pr} \quad (5)$$

avec $\text{Pr} = \frac{\mu C p_f}{\lambda_f}$, $\text{Re} = \frac{u_f \rho_f \phi}{\mu}$, et $Pe \cong 14$ pour le terme radial et $Pe \cong 1$ pour le terme axial.

4. Résultats et discussions

Sur la Figure 3, λ_{eff}^s est représenté pour deux cas :

- mousse cellulaire en Aluminium ($\lambda_s = 218$ W/mK) avec de l'air comme fluide ($\lambda_f = 0.0265$ W/mK).

- mousse cellulaire en Aluminium ($\lambda_s = 218$ W/mK) avec de l'eau comme fluide ($\lambda_f = 0.613$ W/mK).

Les mesures expérimentales sont issues de la littérature et comparées aux principaux modèles.

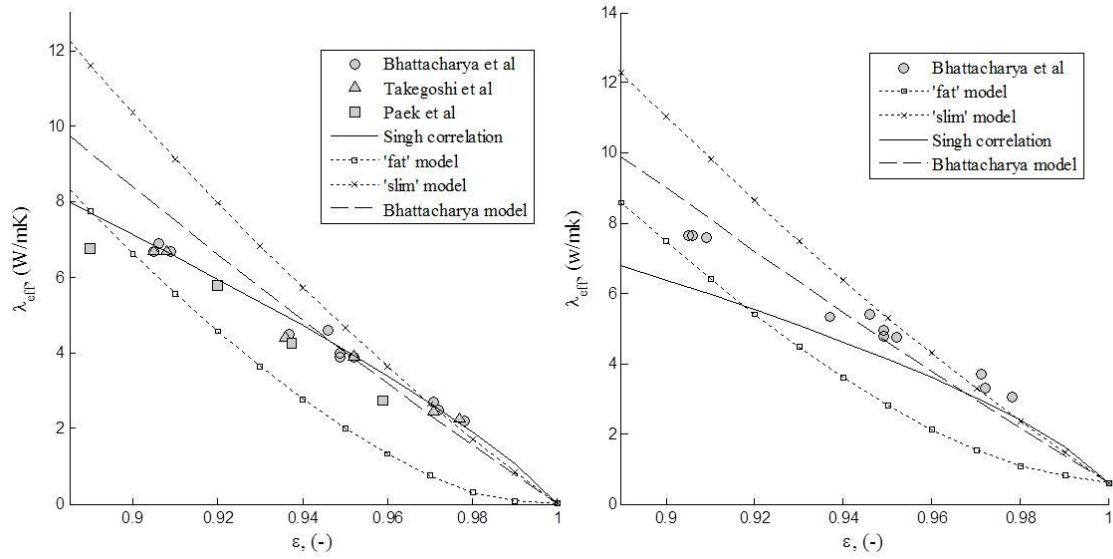


Figure 3 : Conductivité thermique effective statique vs. porosité

Il est aisé de remarquer que pour la gamme de porosité étudiée, le modèle de Bhattacharya et al. [17] et la corrélation de Singh et al. [18] donnent des résultats très proches qui sont cohérents avec la moyenne des valeurs expérimentales (mis à part pour le cas de l'air où la corrélation de Singh n'est plus valable). Si on regarde plus attentivement la figure 3, on peut également remarquer que dans le cas des faibles porosités ($\varepsilon < 0.94$), le modèle de Bhattacharya a tendance à surestimer les valeurs expérimentales, tandis que pour les hautes porosités c'est l'inverse. Ceci est dû au fait que le modèle de Bhattacharya est incapable de prendre en considération l'évolution du ratio (r) en fonction de la porosité (voir Edouard [11]). Le modèle proposé par Edouard [11] basé sur un empilement de dodécaèdre pentagonal régulier va permettre de calculer analytiquement λ_{eff}^s avec uniquement la connaissance de la porosité (aucun paramètre d'ajustement). Le modèle donne alors les deux limites (inférieure et supérieure) de λ_{eff}^s selon le système 'Slim' ou 'Fat' considéré. Pour une porosité ε donnée, le diamètre des ponts (d_s ou b) diminue dû à l'accumulation de matière aux nœuds ('Fat' modèle) et a pour conséquence une augmentation de la résistance thermique. De plus, la couche 2 (Layer 2) induit également une résistance supplémentaire. Enfin, il est important de noter que dans le cas des hautes porosités ($\varepsilon > 0.94$), les valeurs expérimentales sont plutôt proches des valeurs obtenues avec le modèle 'Slim' (absence de Layer 2), ce qui est cohérent avec la faible épaisseur de précurseur (métallique ou céramique) déposée sur la mousse polymère. En effet, dans ce dernier cas, la faible quantité de matière déposée va pouvoir 'migrer' plus facilement vers les ponts plutôt que de s'accumuler vers les nœuds (voir [5] et [11] pour plus de détails). Dans le cas des plus faibles porosités (c.à.d. plus de matière déposée sur la mousse polymère), le précurseur s'accumule préférentiellement aux nœuds et par conséquent, le modèle 'Fat' permet de calculer avec plus de précision la conductivité thermique effective statique.

Enfin, depuis que λ_{eff}^s est déterminé et que λ_{eff}^d est donné par l'Eq. 5, il est alors possible de calculer la conductivité effective globale (λ_{eff}). La figure 4 compare λ_{eff} (modèle 'Slim') pour des coordonnées radiales dans le cadre d'un réacteur tubulaire composé de mousses métallique (Aluminium, $\lambda_s = 218$ W/mK) ou céramique (SiC, $\lambda_s = 5$ W/mK) avec une porosité

$\varepsilon = 0.9$ et $\Phi = 1750 \mu\text{m}$, en fonction de la vitesse superficielle du fluide ($\rho_{gas} = 1.2 \text{ kg.m}^{-3}$, $\mu_{gas} = 1.838.10^{-5} \text{ Pa.s}$, $\lambda_{gas} = 0.0265 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$).

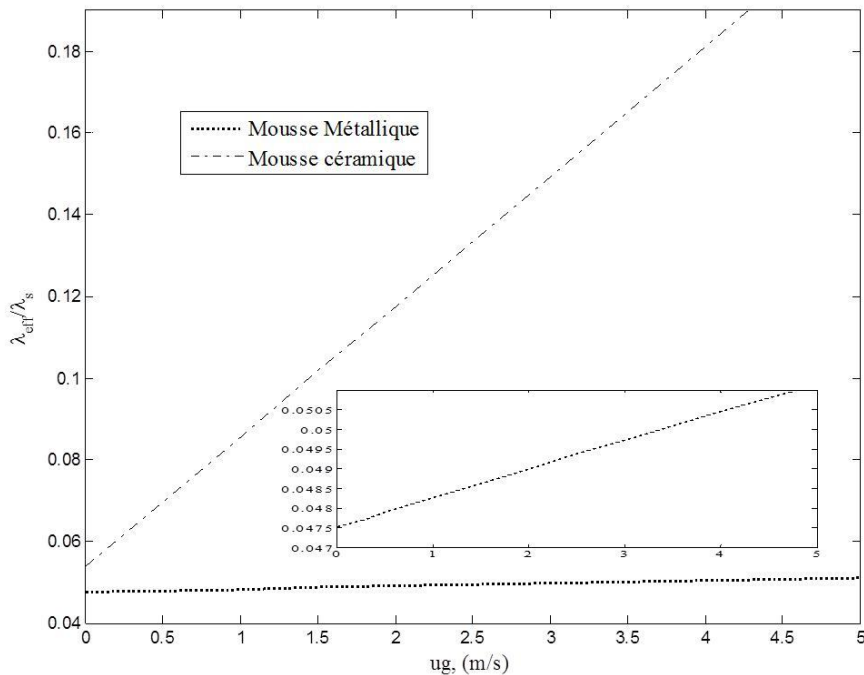


Figure 4 : Ratio de la conductivité global effective par la conductivité intrinsèque de la phase solide en fonction de la vitesse du fluide.

Dans le cas des mousses céramique présentant des conductivités thermiques intrinsèques généralement faibles, le phénomène de dispersion devient rapidement prépondérant et ne pourra donc pas être négligé dans les futurs calculs de dimensionnement des procédés industriels. Par contre, pour les mousses métallique, en première approximation la conductivité thermique effective dynamique pourra être négligée.

5. Conclusions

Dans ce travail, nous avons étudié les propriétés thermiques des mousses cellulaires. En négligeant le phénomène de radiation, nous avons utilisé un modèle analytique robuste pour calculer la conductivité statique et des relations empiriques pour estimer la partie dynamique.

Les résultats de simulations indiquent deux points importants :

- Une mousse cellulaire dont la matière solide est distribuée de manière homogène le long du squelette (absence de dépôt préférentiel aux nœuds du réseau solide) présente une conductivité thermique globale plus importante qu'une mousse présentant des volumes de nœuds élevés.

- Contrairement aux mousses métalliques, pour les mousses en céramique dont la phase solide présente une faible conductivité thermique intrinsèque, les phénomènes de dispersion ne peuvent pas être négligés, en d'autres mots, la conductivité thermique effective dynamique devra être prise en considération.

Références

- [1] Tianjian. L, Ultraligh porous metal: from fundamentals to application, *Acta Mechanica Sinica, Chinese J.Mech.* 18 (5), 2002, p. 457-479.
- [2] Edouard D, Lacroix M, Pham Huu C, Luck F. Pressure drop modelling on solid foam: State-of-the art correlation. *Chemical Engineering Journal* vol. 144 : 299–311, 2008.
- [3] M. Kaviany, *Principles of heat transfer in porous media*, Springer, New-York, 1991.
- [4] A.D. Sullins, K. Daryabeigi, Effective thermal conductivity of high porosity open cell nickel foam, in : 35th AIAA Thermo-physics Conference, 2001-2819 Anaheim, CA, 2001.
- [5] Tri Truong Huu, M. Lacroix, C. Pham Huu, D. Schweich, D. Edouard, Towards a more realistic modeling of solid foam: use of the pentagonal dodecahedron geometry, *Chemical Engineering Science*, 2009, 64, pp 5131-5142.
- [6] D. Edouard, T.T. Huu, C. Pham-Huu, F. Luck., D. Schweich (2010), ‘The effective thermal properties of solid foam beds : Experimental and estimated temperature profiles.’ *International Journal of Heat and Mass Transfer* 53, pp 3807–3816
- [7] Zehner. P, Schlünder. E.U, *Chem. Ing. Tech.* 42, 1970, 333.
- [8] Hunt, M.L and Tien, C.L, Effect of thermal dispersion on forced convection in fibrous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 1988. 31: p. 301-309Gh
- [9] V.V. Calmidi, R.L. Mahajan, Forced convection in high porosity metal foams, *ASME J. Heat Transfer* (2000), 122, 557-565
- [10] K. Boomsma, D. Poulikakos, On the effective thermal conductivity of a three dimensionally structured fluid saturated metal foams. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2001. 44, 827-836.
- [11] Edouard, D (2011), ‘The effective thermal conductivity for ‘slim’ and ‘fat’ foams. *AICHE Journal*. Volume 57, Issue 6, 1646-1651.
- [12] Dul’nev G.N. *Inzhenerno-Fizicheskii Zhurnal*. 1965; 9: 399-404. Gdg
- [13] Truong- Huu, T.; Philipe, R.; Nguyen, P.; Edouard, D.; Schweich, D. Radial Dispersion in Liquid Upflow Through Solid SiC Foams. *Industrial & Engineering Chemistry Research*. 2011, 50, 4329-4334.
- [14] Saber, Meryem.; Pham-Huu, C.; Edouard, D. Axial dispersion based on the residence time distribution curves in a milli-reactor filled with SiC foam catalyst. *Industrial & Engineering Chemistry Research*. DOI: 10.1021/ie3017829
- [15] Paek J.W, Kang B.H, Kim S.Y, Hyun J.M. Effective thermal conductivity and permeability of aluminum foam materials. *Int Journal of thermophysics*. 2000; 21: 453-464
- [16] Takegoshi E, Hirasawa Y, Matsuo J, Okui K. *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng.* 1992; 58: 879-890.
- [17] Bhattacharya A, Calmidi V.V, Mahajan R.L. Thermophysical properties of high porosity metal foams. *Int. Journal of Heat and Mass Transfer*. 2002; 45:1017-1031.
- [18] Singh R, Kasana H.S. Computational aspects of effective thermal conductivity of highly porous metal foams. *Applied Thermal Engineering*. 2004; 24: 1841-1849.

Remerciements

Les auteurs souhaitent remercier l'ANR pour son financement : Projet ANR JCJC 904 01 SIMI9 ‘Millimatrix’, 2010.