

# Etude expérimentale de l'intensification du transfert de chaleur dans un matériau à changement de phase

Kevin MERLIN<sup>1,2\*</sup>, Didier DELAUNAY<sup>1</sup>, Jérôme SOTO<sup>2</sup>, Luc TRAONVOUEZ<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire de Thermocinétique de Nantes, Polytech<sup>2</sup>Nantes – UMR 6607

La Chantrerie, rue Christian Pauc – 44306 Nantes Cedex 3

<sup>2</sup>Institut Catholique d'Arts et Métiers de Nantes

35 avenue du Champ de Manœuvres, 44470 Carquefou

<sup>3</sup>Insula France

57 rue des Vignerons, 44220 Couëron

\*(auteur correspondant : kevin.merlin@icam.fr)

**Résumé** - Cette communication se propose de présenter un exemple d'intensification de transfert de chaleur dans les matériaux à changement de phase par des structures conductrices. Cette étude a été menée grâce à une approche expérimentale. Un banc d'essais a été réalisé dans lequel un fluide caloporteur circule dans un échangeur concentrique. La partie annulaire extérieure de l'échangeur est remplie de paraffine RT60 associée à plusieurs configurations de structures conductrices. Dans chacune des configurations le coefficient d'échange est mesuré. Les puissances obtenues permettent d'envisager des applications de récupération de chaleur fatale sur des cycles thermiques industriels.

## Nomenclature

$L$	longueur de l'échangeur, $m$	$T$	température, $K$
$d$	diamètre, $m$	$t$	variable de temps, $s$
$S$	surface d'échange du côté fluide, $m^2$	$\lambda$	conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$
$m$	masse, $kg$	$\phi$	puissance, $W$
$C_p$	capacité thermique massique, $kJ.kg^{-1}.K^{-1}$	$\Delta T$	écart de température, $K$
$h$	coefficient de transfert, $W.m^{-2}.K^{-1}$	$\tau$	temps total de fusion, $s$
$\Delta Q$	énergie transférée, $J$		

## 1. Introduction

L'objectif de cette étude est de dimensionner un système de stockage d'énergie thermique par chaleur latente en vue de l'intégrer à des stérilisateurs industriels fabriqués par la société STERIFLOW. Ce nouveau module a pour ambition de réduire de 50% la consommation énergétique utilisée lors du procédé de stérilisation. Sachant que le temps de cycle est assez court sur les stérilisateurs de type STERIFLOW, le nombre de cycles par jour important (jusqu'à 20) devrait permettre un retour sur investissement rapide. En revanche, la rapidité du procédé STERIFLOW et la contrainte d'intégration du module de stockage dans un équipement industriel imposent d'avoir un stock avec une densité énergétique importante, une puissance élevée (jusqu'à 1.5MW) et un coût modéré.

L'intérêt du stockage par chaleur latente en utilisant des matériaux à changement de phase (MCP) a été démontré de nombreuses fois en raison de sa très grande densité de stockage. Cependant, compte tenu de leur faible conductivité thermique, la puissance de stockage et de déstockage est limitée. Différentes méthodes pour améliorer le transfert thermique au sein des MCP existent, comme par exemple l'ajout de particules métalliques ou de graphite, l'imprégnation dans une matrice conductrice, ou encore l'amélioration de la géométrie de l'échangeur [1-2]. Dans le cadre du projet européen DISTOR, Pincemin et *al.* [3] ont utilisé du graphite pour améliorer la conductivité thermique de sels inorganiques. Les travaux de Mehling et *al.* [4] ont montré que la mise au point d'un composite formé de paraffine et de

graphite expansé permet d'obtenir une conductivité thermique près de 100 fois supérieur à la conductivité de la paraffine seule. Medrano et *al.* [5] ont également mis en évidence les performances résultant de l'utilisation de matériaux composites (graphite/MCP) dans un échangeur thermique en les comparants à différents types d'échangeurs commerciaux.

Compte tenu de la disparité des résultats disponibles dans les différentes publications, il nous semblait important de mener à nouveau une étude comparative de performance de transfert thermique des MCP dans différents types d'échangeur. Dans cette étude, le choix du MCP se porte sur des composés organiques de types paraffines, compte tenu de leur bonne stabilité chimique, surfusion quasi-inexistante, faible coût et d'un large choix de températures de fusion disponibles dans notre domaine d'application [20°C - 120°C].

## 2. Dispositifs expérimentaux

### 2.1. Echangeurs testés

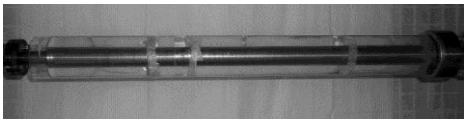
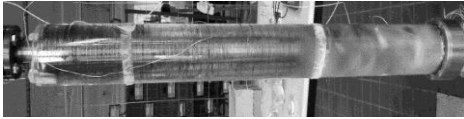
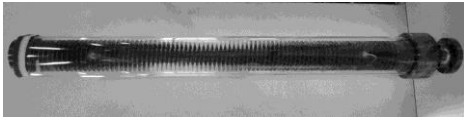
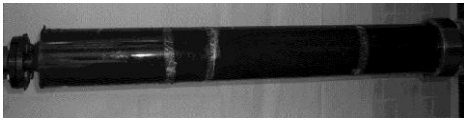

Type d'échangeur	Photo de l'échangeur	Caractéristiques
Tube lisse en cuivre		$d_{ext}=22$ mm, $d_{int}=19$ mm, $L=1$ m, $S=0.055$ m <sup>2</sup> – Tube PMMA : $d_{int}=74$ mm – Quantité de MCP = 3.4 kg
Tube en acier à ailettes en aluminium		Ailettes : $d=57$ mm, $e=0.2$ mm, $\lambda=210$ W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> – $S=0.073$ m <sup>2</sup> – Tube PMMA : $d_{int}=74$ mm – Quantité de MCP = 3.2 kg
Tube en cuivre à ailettes en cuivre		Ailettes : $d=80$ mm, $e=0.1$ mm, $\lambda=300$ W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> – $S=0.096$ m <sup>2</sup> – Tube PMMA : $d_{int}=114$ mm – Quantité de MCP = 3.2 kg
Tube lisse en cuivre + poudre de graphite dispersée/MCP		Poudre : Timrex C-THERM 012 (TIMCAL), 10-81 μm – $S=0.055$ m <sup>2</sup> – Tube PMMA : $d_{int}=74$ mm – Quantité de MCP = 2.6 kg
Tube lisse en cuivre + composite graphite/MCP		Composite : $d_{ext}=64$ mm, fraction massique MCP ≈ 75%, $S = 0.055$ m <sup>2</sup> – Quantité de MCP = 2.1 kg

Tableau 1 : Récapitulatif des différents échangeurs

Cinq types d'échangeurs de longueur 1 mètre sont testés. Le premier échangeur est un échangeur à tube en cuivre présentant une surface d'échange (côté fluide) de 0.055 m<sup>2</sup>, qu'on définira comme échangeur de référence. Un tube transparent en PMMA est placé autour de l'échangeur, dans lequel est contenue la paraffine. Le second type est composé d'un tube en acier à ailettes en aluminium, le même dispositif que précédemment est réalisé pour mettre en place la paraffine autour du tube. Un second échangeur à ailettes composé uniquement de cuivre est également testé. Le quatrième type est identique à l'échangeur de référence, avec un ajout de poudre de graphite dans la paraffine. Enfin, le dernier type intègre un matériau

composite réalisé à base de graphite naturel expansé (GNE) imprégné par de la paraffine à environ 75% en fraction massique. Les composites sont réalisés sous forme de disques de 80mm de diamètre, percés au centre. Ils sont directement montés serrés autour du tube de cuivre. Ce montage ne nécessite pas de tube de PMMA supplémentaire, en effet la capillarité du graphite expansé suffit à retenir le MCP dans le composite en phase liquide.

## 2.2. Boucle de régulation et MCP

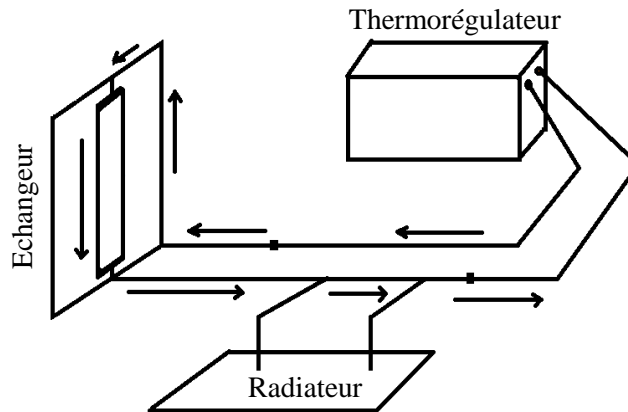


Figure 1 : Schéma du dispositif

Le montage est équipé d'un thermorégulateur TOOL TEMP TT180, ainsi que d'un radiateur permettant le refroidissement du fluide. Le système est muni d'un by-pass qui peut être utilisé pour faire circuler le fluide sans le faire passer par l'échangeur. Cela permet ainsi de chauffer le fluide avant de le faire passer dans l'échangeur contenant le matériau à changement de phase encore froid (stockage d'énergie), ou inversement (déstockage).

Le choix du matériau à changement de phase s'est porté sur une paraffine de type RT60 (RUBITHERM), sa température de fusion/solidification se situe autour de 60°C (55-61°C). En effet, elle ne présente pas de surfusion, contrairement aux sucres alcools et aux sels hydratés. Elle a une chaleur latente de fusion de 144 kJ/kg. Les principaux inconvénients de ce MCP sont sa faible conductivité thermique ( $\lambda \approx 0.2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) ainsi qu'une augmentation volumique d'environ 14% durant le changement de phase.

## 2.3. Instrumentation

Pour les échangeurs à ailettes, la répartition des thermocouples est indiquée en figure 2. Trois thermocouples de type K sont placés à l'extrémité des ailettes, à différentes hauteurs du tube, notées « 1 », « 2 » et « 3 », respectivement à 0.25m, 0.50m et 0.75m de l'entrée de l'échangeur. Un quatrième thermocouple est placé dans le MCP, à la périphérie extérieure (au contact du tube de PMMA), en bas de l'échangeur, noté « 4 ». Enfin, deux sondes de type Pt100 sont ajoutés respectivement à l'entrée et à la sortie de l'échangeur, mesurant la température du fluide caloporteur, permettant ainsi de calculer la puissance fournie au MCP par le fluide lors de la phase de chauffage, ou inversement pendant le refroidissement. Pour l'échangeur avec le matériau composite, les positions des thermocouples sont indiqués en figure 3. Les différents thermocouples disposés dans la mélange de paraffine/graphite, notés de A à G sont positionnés au contact du tube en cuivre, placés à intervalles de 10 cm. Enfin, la mesure du débit est réalisée par un débitmètre massique à effet Coriolis Micro Motion.

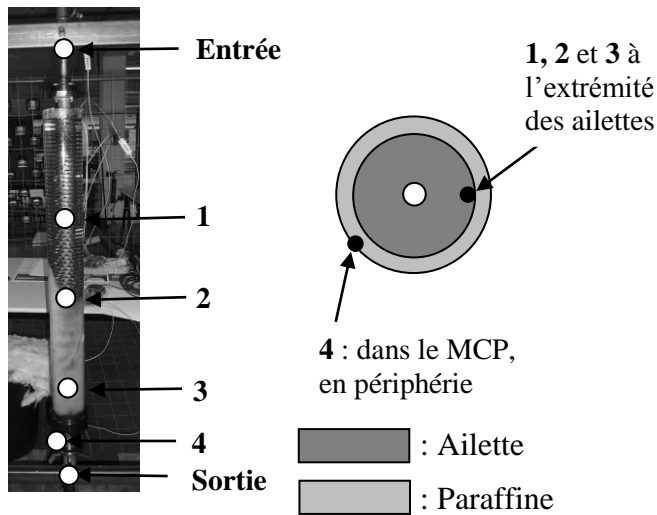


Figure 2 : Position des thermocouples dans les échangeurs à ailettes

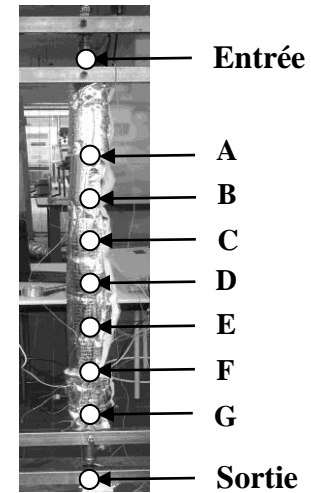


Figure 3 : Position des thermocouples dans l'échangeur avec composite MCP/GNE

## 2.4. Méthode de calcul du transfert thermique

Le coefficient d'échange thermique global  $h$  entre le fluide caloporteur et le MCP est calculé dans chaque dispositif afin de comparer les différentes configurations. Il peut être calculé par deux méthodes : la première en fonction de la masse de MCP fondue au cours du transfert. Cette quantité de MCP fondue est mesurée par pesée, le système expérimental permettant de vidanger la paraffine fondue. Cependant, cette méthode par pesée n'a pas pu être réalisée dans les cas avec graphite et tous les essais en solidification. La seconde méthode consiste à calculer la puissance délivrée par le fluide caloporteur au MCP, pouvant être déterminée à l'aide de l'écart de température entre l'entrée et la sortie de l'échangeur par la relation :

$$\Phi = \dot{m}_{\text{fluide}} \cdot C_p_{\text{fluide}} \cdot \Delta T_{\text{entrée/sortie}} \quad (1)$$

Un coefficient de transfert moyen est ainsi défini sur la période d'essai  $\tau$  par la relation :

$$h(\tau) = \frac{\Delta Q(\tau)}{S \cdot \tau \cdot \overline{\Delta T}_{\text{fluide/MCP}}(\tau)} \quad (2)$$

$$\text{avec : } \Delta Q(\tau) = \int_0^{\tau} \Phi(t) dt$$

$$\text{et : } \overline{\Delta T}_{\text{fluide/MCP}}(\tau) = \frac{1}{\tau} \int_0^{\tau} (T_{\text{fluide}}(t) - T_{\text{MCP}}(t)) dt$$

Où  $T_{\text{fluide}}$  est la température du fluide caloporteur à l'entrée de l'échangeur et  $T_{\text{MCP}}$  est la température moyenne du matériau à changement de phase.

## 3. Résultats et discussions

### 3.1. Essais en régime laminaire

Lors des premiers essais présentés, le fluide caloporteur est de l'huile, possédant un nombre de Prandtl de 280 et un nombre de Reynolds de 1000. Ainsi l'écoulement est en

régime laminaire. L'évolution en fonction du temps du front de fusion de la paraffine dans l'échangeur à ailettes en cuivre est représentée en figure 4, de gauche à droite. Le profil de fusion de la paraffine est toujours identique (du haut vers le bas), quel que soit le sens de circulation du fluide caloporteur à cause de la densité de la paraffine plus faible à l'état liquide, qui se dirige vers le haut dès qu'elle est fondue.

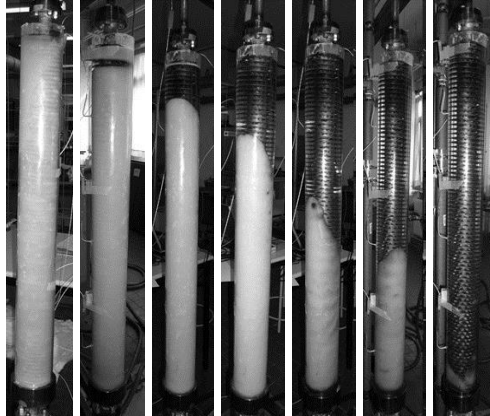


Figure 4 : Fusion de la paraffine avec échangeur à ailettes en cuivre

La figure 5 montre l'évolution des températures des différents thermocouples lors de la fusion de la paraffine, dans l'échangeur à ailettes en cuivre, pour un écoulement du haut vers le bas. La température du fluide caloporteur est dans un premier temps imposée à 55 °C (lue sur le régulateur TOOL TEMP) pendant plusieurs minutes afin de permettre à la paraffine et à l'ensemble du dispositif d'atteindre une température légèrement inférieure à la température de fusion de la paraffine. Puis, un échelon de température de +35 K est imposé au fluide caloporteur. Un écart de température est observé entre les températures du fluide à l'entrée et la sortie de l'échangeur, dû à l'énergie fournie au MCP. Pour les configurations sans dopage par graphite, l'évolution des températures au sein du MCP est très différente suivant la position des thermocouples. Par exemple dans le cas de l'échangeur avec ailettes en cuivres, il faut environ 12 minutes pour que la paraffine soit totalement fondue en haut d'échangeur au contact d'une ailette, contre près de 50 minutes pour la paraffine à la position « 4 » en bas de l'échangeur, correspondant à un thermocouple n'étant pas en contact avec une ailette. Cette différence est conséquente d'une part à la stratification de la paraffine au fur et à mesure du changement de phase et d'autre part à la différence de transfert pour un point situé en bout d'ailette et un autre « hors ailette » où l'intensification ne joue plus.

Cette disparité se retrouve dans toutes les autres configurations d'échangeurs. Par exemple, la fusion complète dans le cas de l'échangeur à tube lisse en cuivre nécessite plus de 3 heures et on constate également de fortes différences entre les différentes positions des thermocouples. L'échangeur en acier à ailettes en aluminium nécessite quant à lui 2 heures environ, ce qui est deux fois plus rapide que l'échangeur de référence mais moins rapide que l'échangeur à ailettes en cuivre pour une quantité de paraffine équivalente. Concernant les deux derniers types d'échangeurs utilisant du graphite, le premier utilisant de la poudre de graphite dispersée dans le MCP ne nécessite plus que 40 minutes environ pour que le MCP soit totalement fondu. Quant à l'échangeur avec le composite GNE/MCP, en figure 6, la fusion complète du MCP ne prend qu'une vingtaine de minutes environ, cependant ce résultat est difficilement comparable aux autres, étant donné que la masse de MCP n'est plus la même dans l'échangeur. Le calcul des puissances cédées par le fluide au MCP, ainsi que des coefficients de transfert thermique sont ainsi nécessaires.

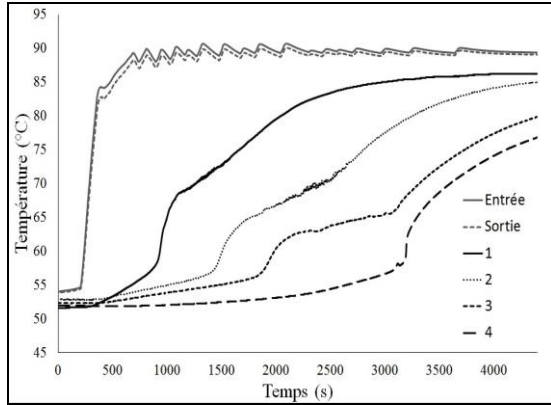


Figure 5 : Evolution des températures pendant la fusion dans la configuration de l'échangeur avec ailettes en cuivre

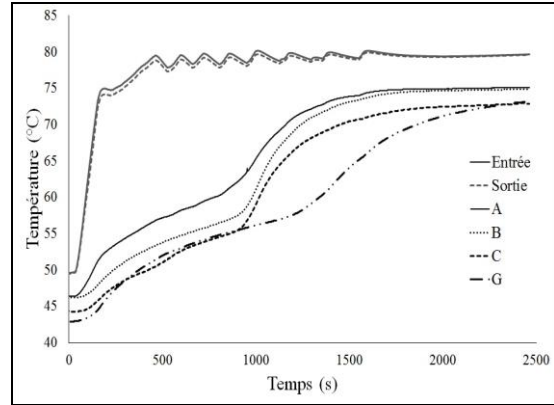


Figure 6 : Evolution des températures pendant la fusion dans la configuration de l'échangeur avec composite GNE/MCP

Sur la figure 7, est représenté le calcul de la puissance instantanée (1) délivrée par le fluide caloporteur au MCP, en fonction du temps, correspondant à l'essai en figure 5 de l'échangeur à ailettes en cuivre. Un pic de puissance atteignant 1200W est observé lorsque l'échelon de température est imposé, puis décroît progressivement jusqu'à 0, correspondant au moment où la température du MCP atteint la température imposée au fluide. L'équation (2) est alors utilisée pour calculer le coefficient d'échange thermique  $h$  obtenu entre le fluide et le MCP. Plusieurs valeurs du coefficient d'échange sont calculées pour un même essai en prenant une température de MCP à différents endroits. Une valeur moyenne est ensuite calculée. La puissance moyenne est également calculée à partir de pesées de paraffine fondue en fonction du temps. Cette méthode par pesée vient confirmer les valeurs obtenues par la méthode sur la puissance transmise par le fluide caloporteur. Cette technique n'est bien entendu plus applicable pour les configurations avec du graphite et dans les essais en solidification.

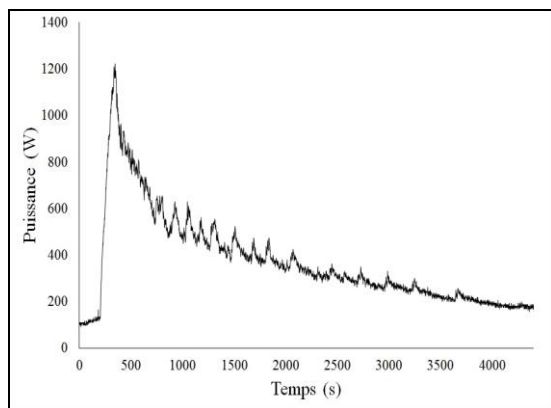


Figure 7 : Evolution de la puissance pendant la fusion (ailettes cuivre)

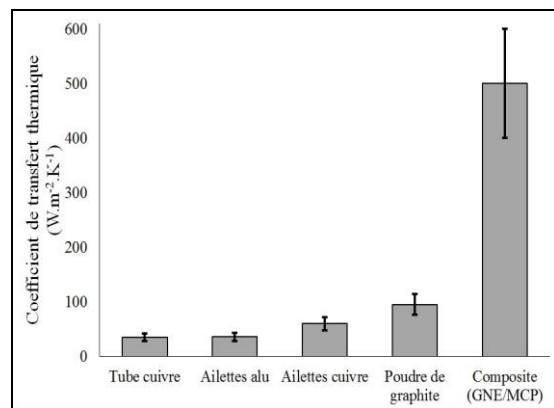


Figure 8 : Coefficients de transferts pour chaque configuration

La figure 8 représente ces coefficients de transferts thermiques moyens obtenus pour chaque configuration. La barre d'erreur indique l'incertitude de la mesure et du calcul notamment dans le choix de la température du MCP retenue (en haut ou en bas de l'échangeur). Les valeurs très proches pour le tube de cuivre simple et le tube en acier à ailettes en aluminium, malgré un temps de fusion plus rapide pour ce dernier, s'expliquent par la différence des surfaces d'échanges de ces deux configurations, respectivement  $0.055 \text{ m}^2$  et

0.073 m<sup>2</sup>. Ce résultat montre la faible influence des ailettes dans le transfert de chaleur dans le MCP dès lors que les ailettes sont trop fines. Les performances sont doublées pour le tube à ailettes en cuivre, triplées pour l'échangeur avec la poudre de graphite dispersée dans la paraffine et décuplées pour l'échangeur avec le matériau composite GNE/MCP.

Des essais similaires ont été réalisés pour la phase de solidification du MCP. Les différences observées entre les configurations sont du même ordre de grandeur que celles obtenues lors des essais de fusion.

### 3.2. Essais en régime turbulent

Dans le but d'obtenir un écoulement turbulent, l'huile est remplacée par de l'eau. Le nombre de Prandtl calculé est alors de l'ordre de 7 et le nombre de Reynolds supérieur à 46 000.

La figure 9 représente l'évolution des températures des différents thermocouples, placés dans le fluide caloporteur à l'entrée et la sortie de l'échangeur GNE/MCP et dans le composite à différentes positions. Par rapport à la configuration en régime laminaire, la différence de températures au sein du MCP en fonction de la position est nettement atténuée. De plus, le temps nécessaire pour obtenir une fusion complète du MCP est inférieur à trois minutes, ce qui est environ dix fois plus rapide que pour le même échangeur dans le cas d'un écoulement laminaire. Concernant les coefficients de transfert thermique, les valeurs dépassent les 4000 W.m<sup>-2</sup>.K<sup>-1</sup>, ce qui est dix fois supérieur au cas laminaire.

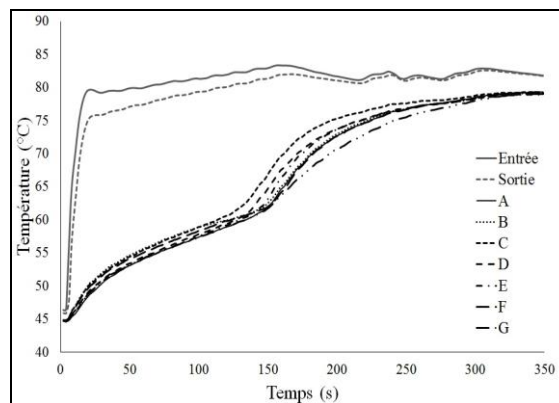


Figure 9 : Evolution des températures pendant la fusion dans la configuration composite GNE/paraffine

### 3.3. Discussions

Ces valeurs confirment le résultat mis en évidence par Medrano *et al.* [5] qui montrent que, la solution intégrant un composite réalisé à partir de graphite naturel expansé et de matériau à changement de phase, permet un coefficient de transfert thermique entre le fluide caloporteur et le MCP bien supérieur aux autres géométries à ailettes.

Aussi, on retrouve les résultats concernant l'impact de la nature de l'écoulement du fluide caloporteur sur l'efficacité du transfert thermique. Cependant, alors que Medrano *et al.* [5] notent une puissance au mieux doublée lorsque le nombre de Nusselt est multiplié par 40. Dans la présente étude, le transfert est multiplié par 10 avec une augmentation du nombre de Nusselt de 65. Le nombre de Nusselt étant calculé par la relation de Colburn pour le régime turbulent. Qualitativement, on retrouve la tendance mise en évidence par Medrano *et al.* [5], cependant quantitativement une différence significative apparaît. Cette différence peut

subvenir de plusieurs sources. La première est le montage expérimental et plus précisément la résistance thermique de contact entre le GNE et la conduite. La deuxième provient de la densité du GNE qui peut être différente dans les deux expériences. Concernant la valeur du coefficient d'échange, les essais montrent des résultats similaires aux travaux de Mehling *et al.* [4]. Ils sont par contre assez éloignés de ceux de Medrano *et al.* [5]. Une différence de méthode apparaît dans le choix de la température du fluide dans le calcul du coefficient d'échange. Elle est prise ici comme la température d'entrée de l'échangeur, alors que Medrano *et al.* [5] ont choisi de manière plus réaliste une température moyenne du fluide entre l'entrée et la sortie de l'échangeur. Dans cette étude, la résistance thermique du fluide représente environ 80% de la résistance globale en régime laminaire, la résistance thermique du tube en cuivre étant négligeable. Ainsi, la résistance thermique du composite contribue à seulement 20% de la résistance thermique globale. En régime turbulent, la contribution de la résistance du fluide est de 40% environ, soit 60% pour le MCP.

## 4. Conclusion

Différents dispositifs d'échangeurs de chaleur intégrant un matériau à changement de phase ont été testés expérimentalement en vue d'une intégration à un procédé industriel. Les valeurs de puissances obtenues dans cette étude permettent d'envisager une intégration d'un tel système de stockage sur les stérilisateurs STERIFLOW. Les comparaisons des différents échangeurs ont mis en évidence une hiérarchie déjà établie par Medrano *et al.* [5] dans la performance de chacun. Cependant des disparités quantitatives sont apparues avec l'étude de Medrano *et al.* [5] notamment sur la valeur du coefficient d'échange dans un composite GNE/paraffine, celles-ci probablement dues à des paramètres expérimentaux légèrement différents. Ceci dit, les ordres de grandeurs sont respectés et sont en accord avec les résultats de Mehling *et al.* [4].

## Références

- [1] M.M. Farid, A.M. Khudhair, S.A.K. Razack, S. Al-Hallaj, A review on phase change energy storage: materials and applications, *Energy Conversion and Management* 45, 1597–1615, 2004
- [2] F. Agyenim, N. Hewitt, P. Eames, M. Smyth, A review of materials, heat transfer and phase change problem formulation for latent heat thermal energy storage systems (LHTESS), *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 14, 615–628, 2010
- [3] S. Pincemin, X. Py, R. Olivès, Evolution de la conductivité thermique de composites PCM/graphite en fonction de la température, *Congrès Français de thermique*, 3-6 juin 2006, Toulouse
- [4] H. Mehling, S. Hiebler, F. Ziegler, Latent heat storage using a PCM-graphite composite material, *TERRASTOCK*, 2000
- [5] M. Medrano, M.O. Yilmaz, M. Nogués, I. Martorell, J. Roca, L.F. Cabeza, Experimental evaluation of commercial heat exchangers for use as PCM thermal storage systems, *Applied Energy* 86, 2047-2055, 2009

## Remerciements

Cette étude fut réalisée pour le compte de la société STERIFLOW dans le cadre du projet MOSCA II. Ce projet est cofinancé par l'ADEME et TOTAL, il est labellisé par le pôle de compétitivité EMC2.

Les résultats présentés sont pour partie issus des travaux en PFE de Pauline Guillonnet, Jérémy Charrier, Pierre Godet et Camille Guillory.