

Étude expérimentale de l'effet magnétocalorique d'un régénérateur magnétique actif fonctionnant à température ambiante

Georges EL ACHKAR^{1*}, Bertrand BICHAT¹, Stéphane COLASSON¹, Alexys DIANOUX², Thomas MAZET², Denis MAILLET³, Michel FEIDT³, Abdelhamid KHEIRI³

¹Commissariat à l'Énergie Atomique et aux énergies alternatives (CEA) – LS2T – 17, rue des Martyrs – 38054 Grenoble Cedex 9.

²Université de Lorraine – IJL, UMR CNRS 7198 – BP 70239 – rue du Jardin Botanique – 54506 Vandoeuvre-lès-Nancy Cedex.

³Université de Lorraine – LEMTA, UMR CNRS 7563 – 2, avenue de la Forêt de Haye – TSA 60604 – 54518 Vandoeuvre-lès-Nancy Cedex.

(*auteur correspondant : georges.elachkar@cea.fr)

Résumé - L'augmentation progressive du besoin de la réfrigération en industrie et de la climatisation nécessite l'utilisation croissante des systèmes diphasiques à compression mécanique de vapeur. Néanmoins, ces systèmes présentent l'inconvénient de fonctionner avec des fluides frigorigènes qui ont souvent un impact direct sur la couche d'ozone et/ou une contribution significative à l'effet de serre. La qualité environnementale des nouveaux fluides sera assurée probablement au détriment de la performance énergétique ou de la stabilité de ces systèmes thermiques. Il est donc pertinent de chercher de nouvelles solutions de production de froid assurant une haute efficacité énergétique et un faible impact environnemental. La réfrigération magnétique à base de matériaux à effet magnétocalorique apparaît de plus en plus comme une solution potentiellement viable [1]. Le coefficient de performance (COP) optimal théorique des systèmes magnétocaloriques étant du même ordre que celui des systèmes diphasiques à compression mécanique de vapeur et leur fonctionnement se faisant avec des matériaux solides couplés à de l'eau, les possibilités semblent donc coller aux exigences actuelles. De plus, cette nouvelle technologie utilise de faibles pressions et tourne à faibles fréquences (entre 1 et 10 Hz au lieu de 50 Hz pour la technologie classique), ce qui est positif pour la durée de vie, les nuisances sonores, le coût d'entretien et la sécurité. Dans ce contexte, une étude expérimentale réalisée sur un régénérateur magnétique actif de forme parallélépipédique, constitué de 47 plaques métalliques horizontales de dimensions 70x17x1.2 mm³ avec un espacement choisi entre ces plaques de 0.2 mm, est présentée dans ce papier. Ce régénérateur est placé entre les noyaux polaires d'un électro-aimant dont le champ magnétique est réglable en intensité et en fréquence. Le matériau magnétocalorique utilisé est le Gadolinium (Gd), qui est le matériau de référence largement utilisé dans la littérature [2]. Son choix est principalement motivé par son effet magnétocalorique important et par sa facilité de mise en oeuvre. Le fluide caloporteur choisi est l'eau distillée mélangée avec une faible concentration d'anticorrosif. Afin de comprendre le comportement de ce régénérateur magnétique actif fonctionnant à température ambiante, une caractérisation thermomagnétique préliminaire de celui-ci a été réalisée en absence de fluide caloporteur. Les effets de plusieurs paramètres (e.g. l'intensité du champ magnétique et la fréquence d'aimantation/désaimantation) ont ainsi été étudiés, et des premiers résultats sont présentés dans ce papier. Au-delà de l'application pour la réfrigération, la magnétocalorie ouvre des perspectives pour la conversion chaleur/électricité via deux orientations possibles : la génération de courant induit sous l'effet de la variation du flux magnétique et la conversion mécanique de la chaleur [3].

Nomenclature

| | | |
|-----------------------|---|-----------------------------|
| B | champ magnétique, T | <i>Indices et exposants</i> |
| I | intensité d'alimentation de l'électro-aimant, A | ad adiabatique |
| Q | débit du fluide caloporteur, $m^3 \cdot s^{-1}$ | C Curie |
| S | entropie, $J \cdot K^{-1}$ | m magnétique |
| t | temps, s | moy moyen |
| T | température, $^{\circ}C$ | nom nominal |
| U | tension, V | p plaque de Gd |
| <i>Symboles grecs</i> | | r réseau |
| Δ | différence | t totale |
| | | 0 ambiante |

1. Introduction

L'effet magnétocalorique (noté EMC par la suite) est une propriété physique du matériau magnétique consistant en un réchauffement ou un refroidissement (tous deux réversibles) du matériau autour de sa température de Curie sous l'action d'un champ magnétique externe. Sous l'action d'un champ magnétique externe, les moments magnétiques des atomes constituant le matériau s'alignent sur les lignes de champ, ce qui réduit l'entropie magnétique à cause de la diminution du désordre entre l'orientation des moments magnétiques. En conditions adiabatique et réversible, l'entropie totale $S_t = S_m + S_r$ étant constante, la réduction de l'entropie magnétique S_m est compensée par l'augmentation de l'entropie de réseau S_r (i.e. l'augmentation du désordre dans l'arrangement atomique), ce qui conduit à l'augmentation de la température du matériau magnétocalorique (noté MMC par la suite) [4]. Cet effet est maximal autour de la température de Curie qui marque le changement entre l'état ferromagnétique et l'état paramagnétique du MMC. Cette transition est la plus fréquemment étudiée jusqu'à présent.

La première mise en oeuvre de l'EMC pour des applications à des températures ambiantes (ou proches) a été réalisée dans les années 70 par Brown [5]. La découverte de l'EMC géant en 1997 par Pecharsky et Geschneidner [6] permet l'ouverture de ces recherches à des possibilités d'applications pratiques dans le froid domestique ou commercial. Les perspectives théoriques d'un système frigorifique (ou calorifique) basé sur l'EMC sont prometteuses. Cependant, son exploitation optimale et son intégration dans un procédé efficace est encore fortement à démontrer. Aujourd'hui, le principe le plus largement retenu pour la mise en oeuvre de l'EMC repose sur un cycle à régénérateur magnétique actif tel que la figure 1 le représente. Du fait de la variation de température encore faible obtenue au coeur du MMC (e.g. environ $2^{\circ}C$ à 1 T pour le Gadolinium), l'utilisation d'un régénérateur magnétique actif permet d'amplifier cette variation de température pour atteindre un écart significatif tel qu'on peut obtenir sur une machine frigorifique usuelle (i.e. plusieurs dizaines de $^{\circ}C$). Le principe de fonctionnement du cycle est le suivant :

- **Aimantation adiabatique (t1) :** Au temps initial du cycle, le MMC en équilibre thermique est mis sous champ magnétique, provoquant une augmentation uniforme de sa température relative à son changement de température adiabatique ΔT_{ad} sous l'effet de l'alignement des moments magnétiques atomiques.
- **Transfert isomagnétique d'entropie (t2) :** Le second temps du cycle est constitué de la mise en circulation du fluide caloporteur et du transfert de chaleur entre celui-ci et le MMC toujours sous champ magnétique, donnant naissance à un gradient de température dans le régénérateur magnétique actif.

- **Désaimantation adiabatique (t3)** : La troisième phase correspond à la désaimantation adiabatique du MMC (i.e. disparition du champ magnétique et arrêt des transferts de chaleur avec le fluide caloporteur). La désorganisation des moments magnétiques se traduit par une diminution uniforme de la température du MMC, le gradient créé précédemment étant conservé mais à un niveau de température plus bas.
- **Transfert isomagnétique d'entropie (t4)** : Finalement, la quatrième période du cycle se compose d'une nouvelle phase de transfert thermique entre le MMC et le fluide caloporteur, cette fois-ci du fluide chaud vers le MMC plus froid.

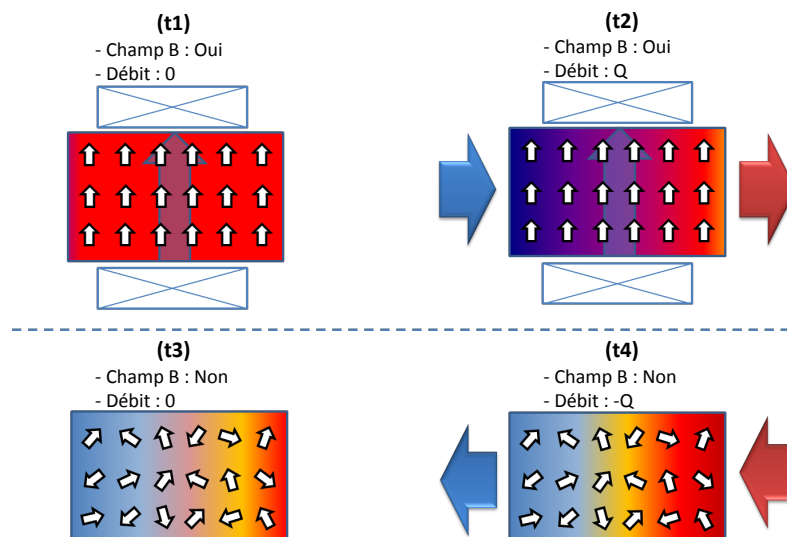


Figure 1 : Principe d'un cycle à régénérateur magnétique actif.

La répétition successive de ces quatre phases permet d'amplifier l'écart de température jusqu'à atteindre un plateau, du fait de l'effacement de l'EMC lorsque la température est éloignée de la température de Curie du MMC.

2. Expériences

2.1. Installation expérimentale

De manière organique, une pompe à chaleur magnéto-calorique est constituée principalement d'un ou de plusieurs régénérateurs magnétiques actifs, d'un système d'aimantation, des échangeurs de chaleur, d'un circuit permettant un écoulement hydraulique et de tout le système électronique de commande et d'acquisition. Dans cette étude, l'installation expérimentale a été conçue pour permettre la caractérisation du couplage magnétique/thermique se déroulant au coeur du régénérateur magnétique actif. Le système réalisé est schématisé sur la figure 2.

Pour simplifier l'installation expérimentale vis-à-vis du phénomène à mettre en évidence, le choix des phases d'aimantation et de désaimantation s'est fait en évitant tout mouvement du régénérateur ou du système d'aimantation, via l'utilisation d'un électro-aimant. Le modèle retenu est le TE2M 100 de la société TE2M, avec des pièces polaires cylindriques pleines de diamètre 100 mm, capable de produire un champ magnétique maximal d'environ 0.93 T pour un entrefer considéré dans cette étude de 25.5 mm. Le modèle TE2M 100 permet en outre de s'affranchir d'un système de refroidissement spécifique, la convection naturelle avec l'air ambiant étant suffisante. L'alimentation électrique de l'électro-aimant est faite via une source de tension continue, en l'occurrence le modèle PS 8080-40 2U de chez Elektro-Automatik GmbH

pilotable par ordinateur. Des mesures de champ magnétique ont été préalablement réalisées à différentes positions centrales entre les pièces polaires, avec un Gaussmètre couplé à une sonde à effet Hall plane, afin d'établir l'hystérésis de l'électro-aimant (Fig. 3). La déviation maximale des champs magnétiques mesurés par rapport à la moyenne est estimée à $\pm 2.2 \%$, la variation du champ magnétique selon le rayon des pièces polaires étant négligeable. D'après la figure 3, l'influence de l'intensité d'alimentation de l'électro-aimant sur le champ magnétique généré est significative pour les faibles intensités et décroît fortement quand on atteint les limites asymptotiques du système ($I_{nom} = 18 \text{ A}$, $U_{nom} = 43.8 \text{ V}$). Finalement, l'hystérésis constatée est très faible, ce qui est positif pour la reproduction des futurs résultats.

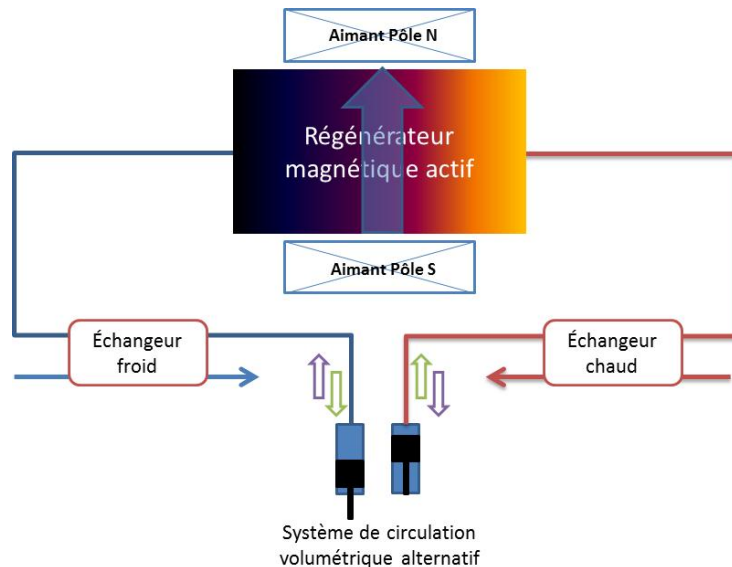


Figure 2 : Schéma de principe de l'installation expérimentale pour l'étude de l'effet magnéto-calorique.

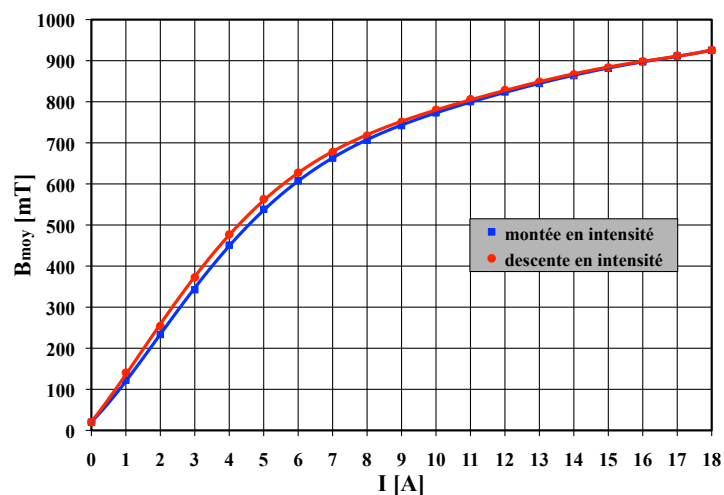


Figure 3 : Évolution du champ magnétique moyen appliqué sur le régénérateur magnétique actif en fonction de l'intensité d'alimentation de l'électro-aimant pour un entrefer de 2.55 cm.

Les dimensions des pièces polaires cylindriques de l'électro-aimant ont imposé une géométrie parallélépipédique du régénérateur magnétique actif dont la partie centrale est de dimensions $70 \times 70 \times 19 \text{ mm}^3$ (Fig. 4). En premier lieu, une faible porosité (moins de 20 %) du régénérateur couplée à une faible épaisseur des plaques de Gd a été établie, afin d'avoir de bons transferts thermiques tout en maximisant l'EMC du Gd dans un petit volume. En effet, 47 plaques de Gd

de dimensions $70 \times 17 \times 1.2 \text{ mm}^3$ ont été placées horizontalement à l'intérieur du régénérateur, avec un espacement choisi entre ces plaques de 0.2 mm. L'ensemble est intégré dans un sarcophage en polymère (POMc), thermiquement isolant et perméable au champ magnétique, assurant l'étanchéité de l'ensemble et le maintien des plaques les unes par rapport aux autres. Au total, le régénérateur magnétique actif contient 442 g de Gd.

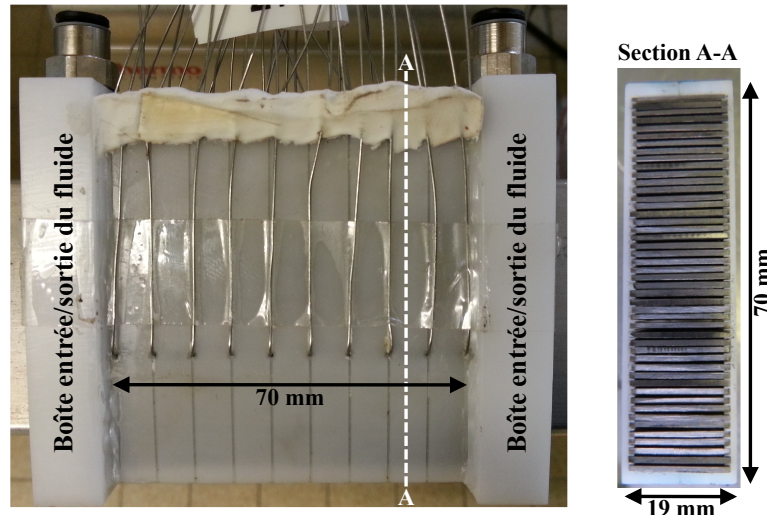


Figure 4 : Photographie du régénérateur magnétique actif avec les dimensions de sa partie centrale.

Dans cette installation, l'eau distillée mélangée avec une faible concentration d'anticorrosif ECO 10 a été choisie comme fluide caloporteur. Afin de contrôler les transferts thermiques dans le régénérateur entre le MMC et le fluide caloporteur tout en minimisant les pertes de charges, à partir de calculs préliminaires, nous avons conclu que le régime laminaire doit être appliqué dans tout le circuit hydraulique. Ainsi, en raison des faibles débits volumiques (inférieurs à 6 ml.s^{-1}) mis en oeuvre, le système de mise en circulation du fluide caloporteur est constitué d'un pousse-seringue de type LEGATO 270P de chez Kd Scientific, programmable et autorisant des cycles aspiration/refoulement, et de deux paires de seringues utilisées en opposition de phase, comme indiqué sur le schéma de principe. Les pertes de charges maximales correspondantes dans le régénérateur ont été estimées à 10 mbar.

Pour simuler les sources froide et chaude du cycle pompe à chaleur, deux bains thermostatés de type ARCTIC A10 de chez Thermo Scientific sont employés. Leur but est aussi d'imposer une température de départ au MMC et d'imposer la température de la source à laquelle le système va transmettre les puissances chaude et froide produites.

D'un point de vue métrologique, le régénérateur est équipé de 40 thermocouples de type T (constitués de matériaux non magnéto-caloriques), intégrés régulièrement et similairement dans 4 plaques de Gd n° 2, 16, 32 et 46 en partant du haut. Il est ainsi possible d'avoir une mesure de température locale du MMC et d'estimer un gradient dans le régénérateur, et ce à plusieurs endroits. Les thermocouples ont un diamètre de 0.5 mm et sont insérés sur une profondeur de 10 mm dans des trous usinés à un diamètre de 0.6 mm dans les tranches des plaques de Gd.

Finalement, l'installation expérimentale est pilotée à partir d'un ordinateur permettant à la fois la synchronisation de l'électro-aimant et du pousse-seringue via le logiciel ARCALE (i.e. réglages de l'intensité du champ magnétique et de la fréquence d'aimantation/désaimantation, du débit et de la fréquence de variation du sens de circulation du fluide caloporteur, et de la latence entre les étapes du cycle) et l'acquisition des mesures via le logiciel LabVIEW, afin de

générer les cycles souhaités. Les incertitudes de mesures sont rapportées dans le tableau 1.

| Composant/Grandeur | Incertitude |
|------------------------|--------------|
| thermocouple de type T | ± 0.2 °C |
| longueur plaque Gd | ± 1 mm |
| largeur plaque Gd | ± 1 mm |
| épaisseur plaque Gd | ± 0.1 mm |
| Gaussmètre | ± 0.1 mT |

Tableau 1 : *Incertitudes de mesures.*

2.2. Campagne d'essais

À la date d'écriture de ce papier, le banc d'essais a tout juste démarré, ne permettant pas de consolider des résultats dans les conditions nominales de fonctionnement. Ainsi, la caractérisation thermomagnétique présentée concerne uniquement l'étude des effets de plusieurs paramètres sur l'EMC dans le régénérateur fonctionnant avec l'air ambiant (i.e. sans circulation de fluide caloporteur). Pour cela, des essais ont été réalisés pour trois intensités d'alimentation de l'électro-aimant de 3, 6 et 18 A correspondant à trois intensités de champ magnétique moyen appliqué sur le régénérateur de 342, 608 et 925 mT, respectivement, et deux fréquences d'aimantation/désaimantation de 0.025 et 0.05 Hz. Le choix de fonctionnement du régénérateur à température ambiante est justifié par l'EMC maximal du Gd aux alentours de sa température de Curie ($T_C \approx 20$ °C).

3. Résultats et discussion

Les résultats obtenus pour les quatre plaques de Gd étant similaires, nous nous contentons dans ce paragraphe de présenter uniquement les résultats correspondant à la plaque n°2 du régénérateur. Les figures 5 et 6 montrent les évolutions du champ magnétique moyen appliqué sur le régénérateur et de la température relative moyenne de la plaque de Gd calculée par rapport à la température ambiante à partir des mesures quasi uniformes des 10 thermocouples en fonction du temps, pour les intensités d'alimentation de l'électro-aimant et les fréquences d'aimantation/désaimantation mentionnées précédemment. Nous constatons tout d'abord que la température relative moyenne de la plaque de Gd varie quasi linéairement avec la variation du champ magnétique moyen, indépendamment de la fréquence d'aimantation/désaimantation, ce qui met en évidence la présence de l'EMC dans le régénérateur. Une augmentation de la température relative moyenne de la plaque de Gd d'environ 2 °C est trouvée pour un champ magnétique moyen de 925 mT, ce qui est en très bon accord avec la littérature.

De plus, au moment de l'application du champ magnétique moyen, la température relative moyenne de la plaque de Gd augmente brutalement et atteint son maximum. Cette plaque devenant ainsi plus chaude que le boîtier du régénérateur initialement à température ambiante, un transfert thermique s'effectue de la plaque de Gd vers le boîtier du régénérateur durant la phase d'aimantation, ce qui explique la diminution progressive de la température relative moyenne de la plaque de Gd durant cette phase. Le même aspect est mis en évidence durant la phase de désaimantation. En effet, quand le champ magnétique moyen est coupé, la diminution de la température relative moyenne de la plaque de Gd étant égale à son augmentation au moment de l'application du champ magnétique moyen, la température moyenne de cette plaque passe en dessous de la température ambiante. Un transfert thermique du même ordre que celui de la

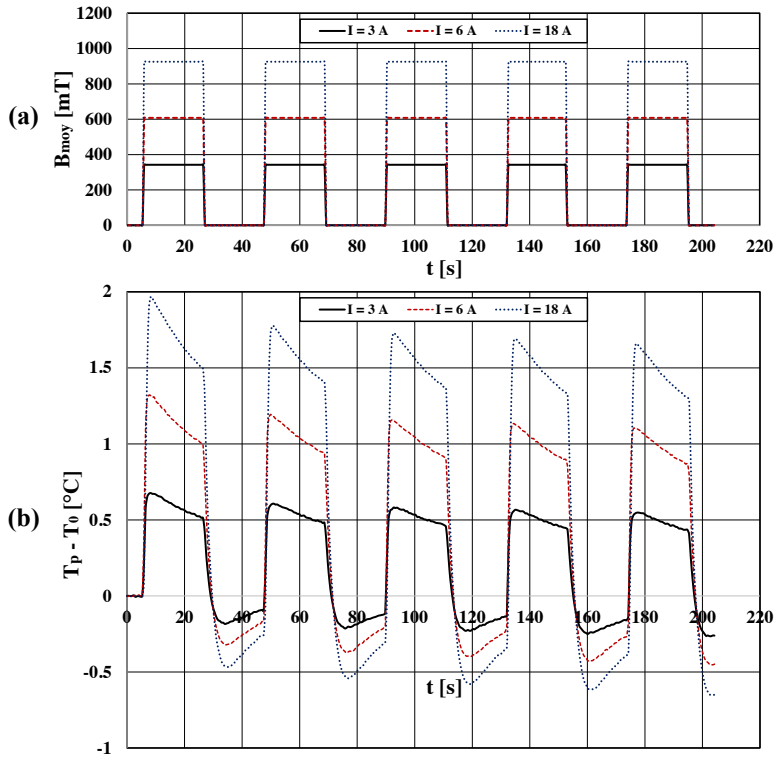


Figure 5 : Évolutions (a) du champ magnétique moyen appliqué sur le régénérateur et (b) de la température relative moyenne de la plaque de Gd en fonction du temps pour trois intensités d'alimentation de l'électro-aimant de 3, 6 et 18 A, et une fréquence d'aimantation/désaimantation de 0.025 Hz.

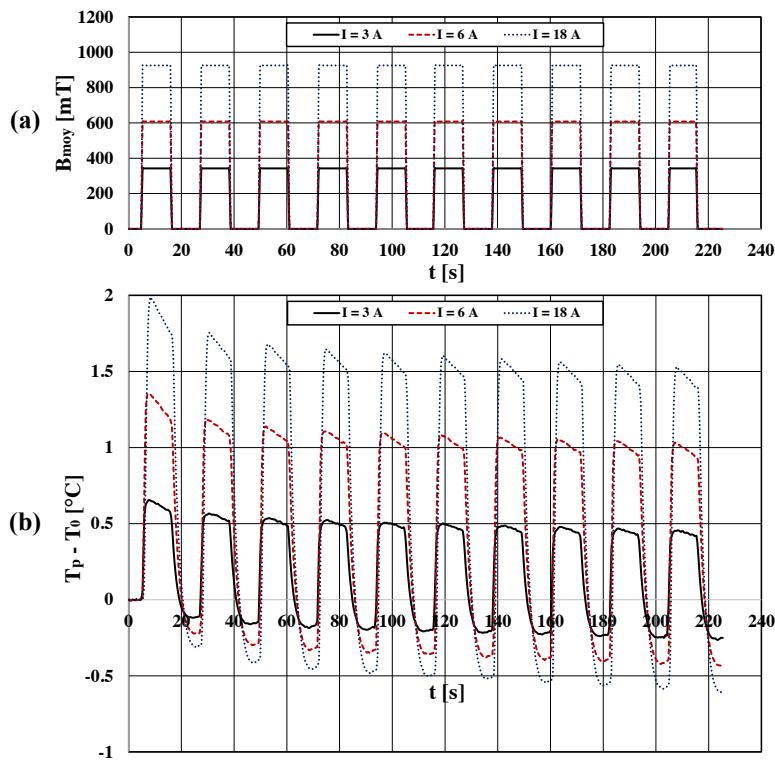


Figure 6 : Évolutions (a) du champ magnétique moyen appliqué sur le régénérateur et (b) de la température relative moyenne de la plaque de Gd en fonction du temps pour trois intensités d'alimentation de l'électro-aimant de 3, 6 et 18 A, et une fréquence d'aimantation/désaimantation de 0.05 Hz.

phase d'aimantation s'effectue ainsi dans le sens inverse (i.e. du boîtier du régénérateur vers la plaque de Gd) durant la phase de désaimantation, ce qui explique l'augmentation progressive de la température relative moyenne de cette plaque durant cette phase. À noter que l'augmentation de la température relative moyenne de la plaque de Gd suite à une aimantation est nettement plus rapide que sa diminution suite à une désaimantation. Cela est dû à l'alimentation de l'électro-aimant qui réagit plus rapidement en montée d'intensité qu'en descente. Par conséquent, à la fin du premier cycle, la température relative moyenne de la plaque de Gd reste en dessous du zéro, d'où la diminution de la valeur maximale de la température relative moyenne de la plaque de Gd d'un cycle à un autre.

Finalemment, en diminuant la fréquence d'aimantation/désaimantation, les phases d'aimantation et de désaimantation deviennent évidemment plus longues, ce qui entraîne des échanges thermiques plus importants entre la plaque de Gd et le boîtier du régénérateur durant les phases d'aimantation et de désaimantation.

4. Conclusions et perspectives

Le travail présenté dans ce papier vise à étudier expérimentalement le comportement thermomagnétique d'un régénérateur magnétique actif, constitué de 47 plaques de Gd horizontales de dimensions $70 \times 17 \times 1.2 \text{ mm}^3$ avec un espacement choisi entre ces plaques de 0.2 mm, fonctionnant à température ambiante en absence de fluide caloporteur. Ce régénérateur est placé entre les noyaux polaires d'un électro-aimant contrôlé en intensité d'alimentation et en fréquence d'aimantation/désaimantation. Les effets du champ magnétique moyen appliqué sur le régénérateur et de la fréquence d'aimantation/désaimantation sur l'EMC dans le régénérateur ont été étudiés. Une relation quasi linéaire entre la température relative moyenne des plaques de Gd et le champ magnétique moyen appliqué sur le régénérateur a été trouvée, indépendamment de la fréquence d'aimantation/désaimantation. Des échanges thermiques entre les plaques de Gd et le boîtier du régénérateur ont été mis en évidence durant les phases d'aimantation et de désaimantation. Ces échanges thermiques sont d'autant plus importants que la fréquence d'aimantation/désaimantation est faible. Les effets du débit et de la fréquence de variation du sens de circulation du fluide caloporteur sur l'EMC dans le régénérateur restent à étudier pour les mêmes gammes de champ magnétique moyen et de fréquence d'aimantation/désaimantation.

Références

- [1] A. Smith, Who discovered the magnetocaloric effect ?, *European Physical Journal H*, 38 (2013), 507-517.
- [2] C. Mayer, Nouveaux matériaux magnétocaloriques pour la réfrigération magnétique, *Thèse de doctorat, Université de Bordeaux I, Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux*, (2011).
- [3] D. Vuarnoz, A. Kitanovski, C. Gonin, Y. Borgeaud, M. Delessert, M. Meinen, P. W. Egolf, Quantitative feasibility study of magnetocaloric energy conversion utilizing industrial waste heat, *Applied Energy*, 100 (2012), 229-237.
- [4] A. Tura, Active Magnetic Regenerator Experimental Optimization, *Master of Applied Science, University of Victoria*, (2005).
- [5] G. V. Brown, Magnetic heat pumping near room temperature, *Journal of Applied Physics*, 47 (1976), 3673-3680.
- [6] V. K. Pecharsky, K. A. Geschneidner Jr., Giant Magnetocaloric Effect in $Gd_5(Si_2Ge_2)$, *Physical Review Letters*, 78 (1997), 4494-4497.