

Résistance thermique de contact dans des empilements granulaires – Application aux aérogels de silice

Sandra SPAGNOL^{1,2*}, Bérangère LARTIGUE¹, Alain TROMBE^{1,2}

¹Université Paul Sabatier, Laboratoire PHASE

Bâtiment 3R1, 118 route de Narbonne – 31062 Toulouse Cedex 9

²Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse

135 avenue de Ranguel – 31077 Toulouse Cedex 4

* (auteur correspondant : spagnol@cict.fr)

Résumé - Notre travail s'intéresse aux transferts conductifs dans des empilements granulaires d'aérogels de silice qui sont des superisolants thermiques. Les milieux granulaires étudiés sont diphasiques : la phase solide est constituée d'un matériau considéré comme homogène et les pores intergranulaires sont remplis d'air. L'objectif principal est d'apporter une nouvelle méthode de prise en compte de la résistance thermique de contact entre des billes sphériques empilées régulièrement et représentant les grains d'aérogel, dans un modèle numérique de transfert thermique.

Nomenclature

e	épaisseur d'un pixel, m	Y	dimension dans la direction y , m
E	module de Young, Pa	<i>Symboles grecs</i>	
F	force externe, N	δ	dimension d'une aspérité, m
k	conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$	ν	coefficient de Poisson
n	nombre de contacts	<i>Indices</i>	
q	flux thermique, W	b	bille
r	rayon, m	cf	couche fluide
R	résistance thermique, $K.W^{-1}$	eq	équivalent
S	surface, m^2	i	phase
T	température, K	mc	micro-contact
X	dimension dans la direction x , m	Mc	macro-contact

1. Introduction

Les aérogels de silice sont des matériaux nanoporeux ayant une structure interne remarquable : faible masse volumique, grande porosité et squelette solide tortueux et fractal. Leurs propriétés physiques intéressantes leur offrent de nombreuses applications industrielles [1, 2, 3]. Une future application comme superisolants dans le secteur du bâtiment doit être considérée avec grand intérêt. En effet, les conductivités thermiques des aérogels de silice sont plus faibles que celle de l'air libre (i.e. $0.025 W.m^{-1}.K^{-1}$ à température ambiante).

Notre travail s'intéresse aux transferts conductifs dans des aérogels de silice granulaires. Des études basées sur des modèles analytiques existent déjà dans la littérature et permettent de calculer la conductivité thermique équivalente pour des empilements granulaires [4]. De nombreux modèles ne prennent cependant pas en compte la résistance thermique de contact entre les grains ; ils sont, pour la plupart, basés sur une analogie électrique. Les plus connus sont les modèles en série et en parallèle et ont déjà été appliqués aux aérogels de silice [5]. Les modèles analytiques faisant intervenir une résistance de contact s'appliquent le plus souvent à une cellule limitée et composée de deux demi-billes. Le contact entre les deux demi-billes est considéré ponctuel [6, 7] ou surfacique [8]. Cette zone de contact est

directement située à l'interface entre les grains et constitue une couche hétérogène où les phénomènes de transfert sont complexes. Il est donc essentiel de considérer son effet sur le transfert thermique total.

Notre approche est basée sur un modèle numérique permettant de représenter l'empilement granulaire avec un plus grand volume où les zones de contact entre les grains sont définies par une méthode originale. Cette modélisation requiert plusieurs étapes décrites de manière détaillée dans [9].

Premièrement, il est nécessaire de connaître la conductivité thermique des grains d'aérogel de silice. Ces grains sont considérés comme des matériaux homogènes ayant les mêmes propriétés qu'un aérogel monolithique. Une précédente étude [10] a mis en évidence les géométries les mieux adaptées à la représentation structurale d'aérogel monolithique. Un modèle numérique a ensuite été réalisé afin de déterminer la conductivité thermique de telles structures. Les résultats montrent que les géométries périodiques créées à partir de flocons de Von Koch sont particulièrement adaptées pour représenter la structure interne des aérogels de silice monolithiques. En effet, ces géométries permettent d'avoir une grande tortuosité du squelette solide et de maîtriser la distribution des tailles des pores. A partir de ces résultats, les conductivités thermiques équivalentes trouvées à l'échelle du nanopore sont appliquées aux grains d'aérogel considérés à l'échelle macroscopique.

La deuxième étape de ce travail consiste alors à créer les représentations géométriques. Nous avons opté pour des empilements réguliers bidimensionnels carrés ou triangulaires, comportant une ou deux tailles de billes (voir Figure 1). La plus grosse bille a un diamètre de 3 mm. Pour pouvoir créer ces géométries, la zone de contact doit être déterminée au préalable. La résistance de contact est ensuite obtenue grâce à un modèle analytique. Enfin, un modèle numérique permet de déterminer la conductivité thermique équivalente de l'empilement.

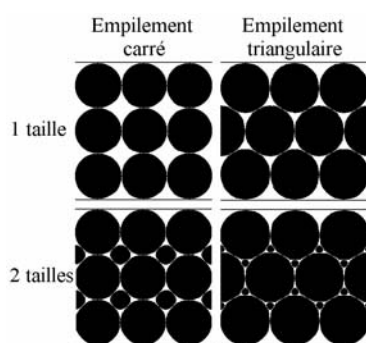


Figure 1 : Empilements granulaires carrés ou triangulaires, avec une ou deux tailles de billes

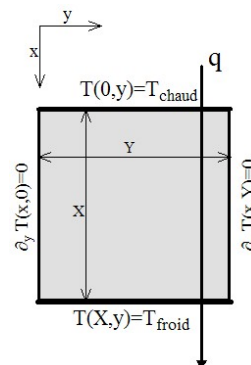


Figure 2 : Conditions aux limites imposées sur les surfaces des géométries

2. Modélisation du transfert conductif

A l'échelle macroscopique des empilements granulaires, trois transferts thermiques sont couplés : conduction dans les grains considérés comme des matériaux homogènes ayant la même conductivité thermique équivalente que le matériau monolithique, conduction dans la phase gazeuse dans les pores intergranulaires et rayonnement, non étudié dans ce travail.

Un modèle numérique en deux dimensions a été développé pour obtenir le champ des températures dans les géométries représentatives des empilements granulaires (voir Figure 1). Ce modèle est basé sur l'équation de diffusion thermique en régime stationnaire et en deux dimensions :

$$\nabla(-k_i \times \nabla T_i) = 0. \quad (1)$$

Le principe de notre modèle est basé sur un découpage de la géométrie en pixels de telle manière que chaque pixel représente une maille au centre de laquelle la température est recherchée. Avant simulation et à chaque pixel, sont attribuées les conductivités thermiques, soit de la phase solide pour les pixels noirs (k_{grain}), soit de la phase gazeuse pour les pixels blancs ($k_{air} = 0.025 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ à pression atmosphérique et $k_{air} = 0 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ sous vide).

Des conditions de température imposée sont appliquées sur deux faces opposées de la géométrie (T_{chaud} et T_{froid}). Sur les deux autres faces, sont appliquées des conditions de flux nul (voir Figure 2). A partir du champ thermique obtenu, le tenseur de conductivités thermiques équivalentes est calculé. Dans la direction perpendiculaire aux surfaces limites avec températures imposées, le calcul est effectué à l'aide de la formulation suivante :

$$k_{empilement} = \frac{X}{Y(T_{chaud} - T_{froid})} \int_0^Y \left(-k_i \frac{\partial T_i}{\partial x} \right) dy. \quad (2)$$

3. Résistance de contact

La zone de contact entre grains a été prise en compte de manière originale. Elle est représentée par une ligne de pixel d'épaisseur e allant de 1 à 5 nm et de demi-longueur le rayon de macro-contact r_{Mc} compris entre 0.01 et 0.5 mm (voir Figure 3). La première étape pour créer les géométries consiste à déterminer le rayon de macro-contact entre les grains. La théorie de Hertz [4] a été appliquée aux différents cas rencontrés : avec ou sans force externe, avec une ou deux tailles de billes. De manière générale, la formulation de cette théorie est :

$$r_{Mc} = \left(\frac{3(1-\nu^2)}{4E} F r_b \right)^{1/3}. \quad (3)$$

Une conductivité thermique de contact est ensuite attribuée aux pixels constituant la zone de contact. Cette conductivité est calculée à partir de la résistance thermique de contact obtenue grâce à un modèle analytique. La résistance thermique de contact est la somme de deux résistances en série : la résistance de macro-constriction et la résistance à l'interface. Concernant la résistance de macro-constriction, elle est donnée par la théorie de Batchelor [11] et est déjà implicitement comprise dans notre modèle numérique en deux dimensions.

Quant à la résistance à l'interface, elle est due à la rugosité des surfaces en contact et est la somme de deux résistances en parallèle : la résistance de micro-constriction à travers les zones solides et la résistance de la couche fluide dans les aspérités. Pour évaluer cette résistance à l'interface, il est nécessaire de choisir un modèle géométrique à l'interface [12]. L'interface est représentée à l'échelle nanoscopique par un agencement périodique de flocons de Von Koch qui permet d'obtenir des aspérités du même ordre de grandeur que les nanopores dans la structure interne et des micro-contacts entre les pointes des flocons (voir Figure 4).

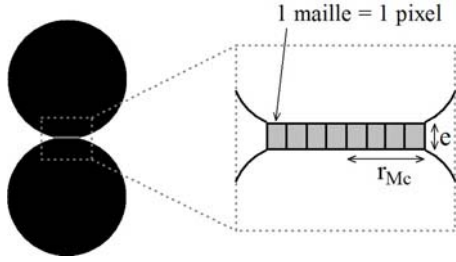


Figure 3 : Représentation de la zone de macro-contact entre deux grains

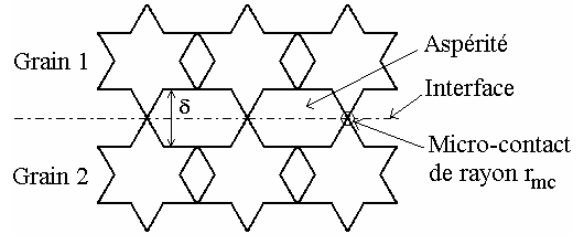


Figure 4 : Représentation schématique de l'interface entre deux grains

La résistance de micro-contact et la résistance de la couche fluide sont respectivement égales à :

$$R_{mc} = \frac{1}{2n_{mc} r_{mc} k_{grain}} \text{ et } R_{cf} = \frac{\delta}{k_{air_confiné} S_{Mc}} \quad [9]. \quad (4)$$

Pour toutes les géométries étudiées, la résistance à l'interface est faible à pression atmosphérique et est quasiment égale à la résistance de la couche fluide ($\approx 10 \text{ K.W}^{-1}$). Par contre, sous vide, elle est très élevée à cause de la forte influence de la résistance de micro-constriction ($\approx 10^6 \text{ K.W}^{-1}$).

4. Résultats et discussion

4.1. Influence de la résistance de contact

La figure 5 montre l'influence de la résistance de contact sur la conductivité thermique équivalente d'un empilement carré. Les comportements obtenus sont différents selon la pression de l'air.

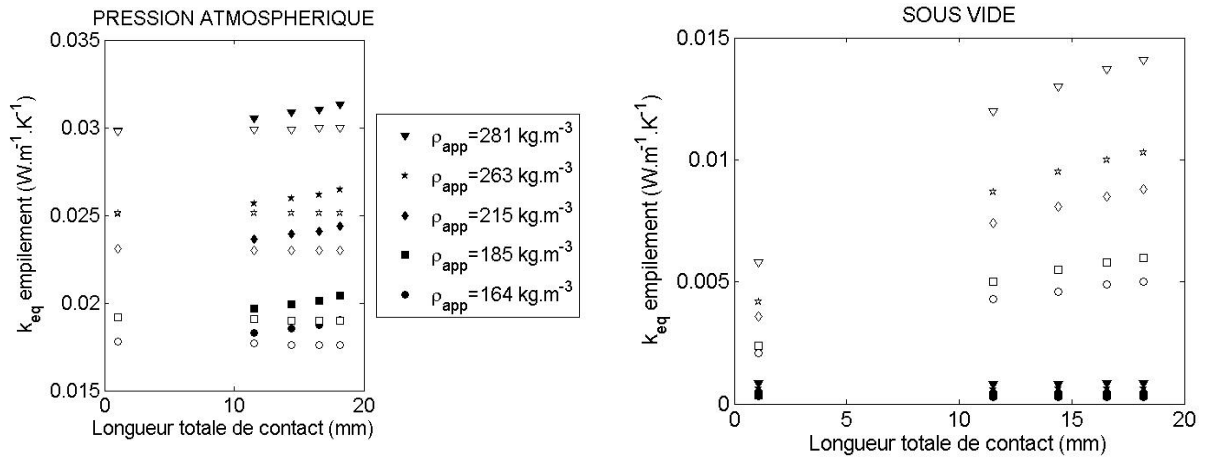


Figure 5 : Conductivité thermique équivalente en fonction de la longueur totale de contact pour un empilement carré, avec résistance de contact pour les symboles pleins et sans résistance de contact pour les symboles vides

A pression atmosphérique, la conductivité thermique équivalente est quasiment constante lorsque la résistance de contact n'est pas prise en compte. Par contre, elle augmente avec la longueur de contact lorsque la résistance de contact est prise en compte. La valeur de la conductivité thermique de la zone de contact (voir Figure 3) est supérieure à celle des grains d'aérogel qui est comprise entre 16 et 31 $\text{mW.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, ce qui augmente la conductivité thermique équivalente de l'empilement.

Sous vide, la totalité du flux thermique passe à travers la phase solide. Lorsque la longueur totale de contact augmente, le flux traverse l'empilement plus facilement. La conductivité thermique équivalente augmente donc lorsque la résistance de contact n'est pas prise en compte. Quand la résistance de contact est appliquée, le passage du flux est inhibé car les valeurs de résistance sont très élevées. Les conductivités thermiques équivalentes sont alors très faibles et quasiment constantes.

4.2. Influence du type d'empilement et du nombre de tailles de billes

Des empilements carrés et triangulaires ont été étudiés avec une ou deux tailles de billes (voir Figure 6). A pression atmosphérique, les empilements triangulaires ont des conductivités thermiques équivalentes plus grandes que celles des empilements carrés. Les empilements avec deux tailles de billes ont aussi des conductivités thermiques équivalentes plus élevées qu'avec une seule taille. De manière générale, les empilements triangulaires ou avec deux tailles de billes ont des densités plus élevées, des porosités plus faibles mais aussi des longueurs totales de contact plus grandes, ce qui facilite le passage du flux thermique.

Sous vide, la même tendance est observée. Cependant, il est intéressant de noter que les valeurs de conductivités thermiques équivalentes sont beaucoup plus faibles qu'à pression atmosphérique. L'évacuation de ces matériaux est très utile puisque la conduction dans la phase gazeuse est éliminée aussi bien dans les pores intergranulaires que dans les nanopores de la structure interne des grains.

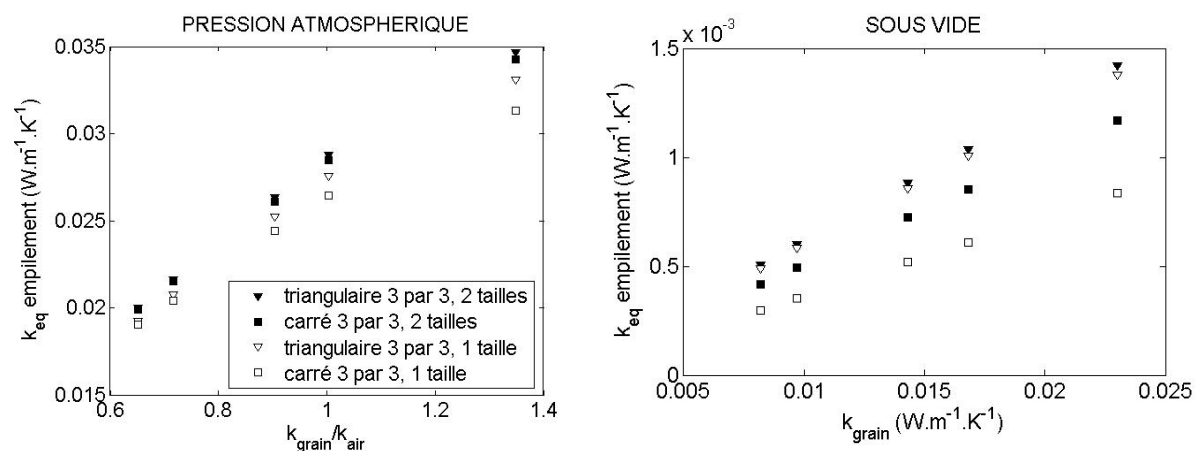


Figure 6 : Conductivité thermique équivalente en fonction du rapport entre la conductivité thermique des grains et de l'air à pression atmosphérique, et en fonction de la conductivité thermique des grains sous vide, pour des empilements carrés et triangulaires, avec une ou deux tailles de billes

4.3. Influence de la force externe

La force externe de compression rentre en jeu dans la théorie de Hertz pour calculer le rayon de contact. Les conductivités thermiques équivalentes des empilements sont donc influencées par ce paramètre rentrant en jeu dans le modèle numérique (voir Figure 7). Pour une masse volumique apparente, la force externe a une légère influence sur les conductivités thermiques équivalentes. Lorsque la force augmente, le passage du flux thermique est amélioré grâce à des zones de contact plus larges. La masse volumique apparente des grains est par contre un important paramètre. Elle intervient dans le calcul de la conductivité

thermique des grains à l'échelle du nanopore. La figure 7 montre que cette masse volumique doit être la plus faible possible pour obtenir une faible conductivité thermique équivalente de l'empilement. Ainsi, pour des masses volumiques inférieures à 215 kg.m^{-3} , il est possible d'avoir des conductivités thermiques équivalentes inférieures à $0.025 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, c'est-à-dire des valeurs correspondant à des superisolants.

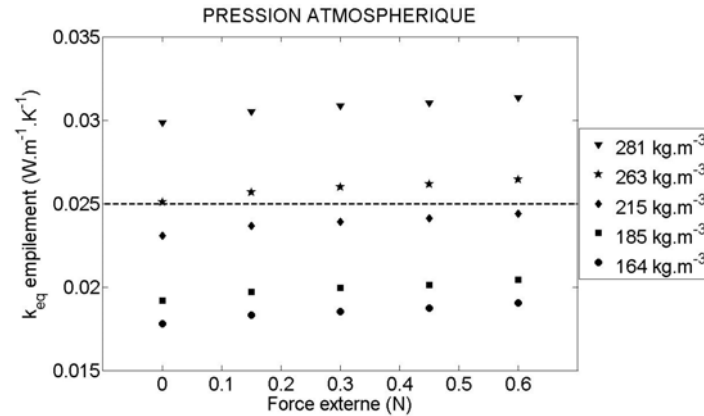


Figure 7 : Conductivité thermique équivalente en fonction de la force exercée sur un contact pour différentes masses volumiques apparentes de la phase solide et pour un empilement carré

5. Conclusion

Une nouvelle méthode de calcul de la conductivité thermique équivalente d'empilements granulaires avec prise en compte de la résistance de contact a été présentée dans cet article et appliquée aux aérogels de silice. Nous avons montré que la résistance de contact joue un rôle important et que les conductivités thermiques équivalentes des empilements sont fortement influencées par la masse volumique de la phase solide ainsi que par la pression de l'air.

Références

- [1] J. Fricke, A. Emmerling, Aerogels-recent progress in production techniques and novel applications, *J. Sol-Gel Sci. Tech.*, 13 (1998), 299-303.
- [2] L.W. Hrubesh, Aerogel applications, *J. Non-Cryst. Sol.*, 225 (1998), 335-342.
- [3] D. Brownlee *et al.*, Comet 81p/wild2 under a microscope, *Science*, 314 (2006), 1711-1716.
- [4] M. Kaviani, *Principles of heat transfer in porous media*, Springer-Verlag (1995).
- [5] A. Bisson, A. Rigacci, D. Lecomte, P. Achard, Effective thermal conductivity of divided silica xerogel beds, *J. Non-Cryst. Sol.*, 350 (2004), 379-384.
- [6] S. Yagi, D. Kunii, Studies on effective thermal conductivities in packed beds, *AIChE. Journal*, 3-3 (1957), 373-381.
- [7] D. Kunii, J.M. Smith, Heat transfer characteristics of porous rocks, *AIChE. Journal*, 6-1 (1960), 71-78.
- [8] S. Hayashi, A theoretical model for the estimation of the effective thermal conductivity of packed of fine particles, *J. Chem. Eng.*, 35 (1987), 51-60.
- [9] S. Spagnol, *Transferts conductifs dans des aérogels de silice, du milieu nanoporeux autosimilaire aux empilements granulaires*, Doctorat de l'Université de Toulouse (2007).
- [10] S. Spagnol, B. Lartigue, A. Trombe, V. Gibiat, Thermal modeling of two-dimensional periodic fractal patterns, an application to nanoporous media, *EPL*, 78 (2007), 46005.
- [11] G.K. Batchelor, R.W. O'Brien, Thermal or electrical conduction through a granular material, *Proc. Roy. Soc. Lond. A*, 355 (1977), 313-333.
- [12] J.P. Bardon, Heat transfer at solid-solid interface : basic phenomenons. Recent works, *Proc. Heat Transfer in Composite Materials and at the Interfaces* (Nancy, 1988), 40-79.