

## Mesure de la conductivité thermique de liquide à haute température

Vincent SCHICK<sup>1</sup>, Alain DEGIOVANNI<sup>1</sup>, Benjamin REMY<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Énergétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (LEMETA/CNRS)  
2, avenue de la Forêt de Haye – TSA 60604 – 54504 Vandœuvre-lès-Nancy Cedex, France  
[vincent.schick@univ-lorraine.fr](mailto:vincent.schick@univ-lorraine.fr)

**Résumé :** Une méthode pulsée est utilisée pour estimer la conductivité thermique « phonique » du liquide de 1100°C à 1500°C. Un laser délivre une excitation crête de quelques secondes en face avant d'un échantillon. L'augmentation de température résultant en face arrière est mesurée via une caméra infrarouge. L'échantillon liquide est versé dans une cellule de mesure creuse parallélépipédique placée dans un four tubulaire. Le modèle utilisé est numérique et tridimensionnel. Le liquide à haute température étudié est un matériau semi-transparent, on doit donc prendre en compte le transfert couplé radiatif au sein du matériau. Les transferts thermiques par convection au sein de ce milieu peuvent cependant être négligés. L'identification de la conductivité thermique est réalisée à partir d'un modèle implémenté sous FlexPDE et couplé à Matlab. Des mesures de validation ont tout d'abord été effectuées sur l'eau à température ambiante, suivies d'essais à haute température pour des matériaux liquides ayant différents coefficients d'absorption optique.

**Mots clés :** Haute température, liquide, matériau semi-transparent, conductivité thermique.

### 1. Introduction

L'objectif de cette étude est de réaliser la mesure de la conductivité thermique « phonique » de liquide à haute température. Cette étude se base sur de précédentes études réalisées au LEMETA sur l'estimation des propriétés thermophysiques des fluides [1]. La méthode de mesure est basée sur une méthode pulsée (méthode Flash). Une cellule contenant le liquide est éclairée en face avant. L'élévation de température générée par cette excitation est ensuite mesurée en face arrière. L'estimation des propriétés se fait, quant à elle, par méthode inverse. La principale difficulté de cette étude repose sur la modélisation des transferts thermiques au sein de l'échantillon. En effet, une faible viscosité, un faible allongement de la cellule de mesure ou un fort gradient de température peuvent rendre la convection naturelle non négligeable. De plus, à haute température pour un matériau semi-transparent, les transferts de chaleur se font par conduction et par rayonnement. C'est en particulier le cas des liquides à haute température. Aussi, sur ce thème, la littérature fait principalement état d'études utilisant la mesure de conductivité thermique « apparente » [2,3]. Cette dernière n'est pas une grandeur intrinsèque à l'échantillon et dépend fortement de la configuration expérimentale (géométrie de cellule notamment) et des propriétés optiques du matériau analysé. Notre étude présente ainsi une méthode de mesure adaptée à la caractérisation thermique de liquide à haute température de 1100°C à 1500°C. Dans un premier temps, on réalise des estimations de conductivité thermique apparente, puis on calcule la composante phonique en utilisant des solutions asymptotiques adaptées aux fortes et aux faibles épaisseurs optiques,  $\tau = \beta * e$  avec  $\tau$  l'épaisseur optique,  $\beta$  le coefficient d'absorption et  $e$  l'épaisseur de l'échantillon.

### 2. Dispositif expérimental

Une cellule de mesure creuse (voir figure 1) contenant l'échantillon liquide est placée au centre d'un four tubulaire Carbolite TZF18/600 pouvant atteindre une température de 1800°C sous vide, sous gaz neutre ou air ambiant. Un laser CO<sub>2</sub> de 130 W délivre une excitation crête d'une durée variant de 0,1s à 7s. Le profil du faisceau laser est gaussien et son rayon est d'environ 2mm. La mesure se fait sur la face opposée à la face éclairée à l'aide d'une caméra infrarouge FLIR à capteur InSb large bande [1,5µm-5,1µm] (voir figure 2). Cette dernière est munie d'un filtre monochromatique centré à 4µm pour des mesures au delà de 200°C et d'un filtre centré à 2,35 µm pour les mesures au delà de 1000°C.

La cellule de mesure est un creuset parallélépipédique de 40\*40\*6mm (voir figure 1), ouvert sur le dessus, l'épaisseur des parois est de 1mm, ce qui laisse un espace interne de 4mm d'épaisseur pour le liquide. Ces dimensions sont choisies, d'une part pour l'épaisseur  $e$  afin d'avoir la meilleure estimation possible des propriétés thermiques et d'autre part pour la longueur  $L$  qui est limitée par le diamètre du four ( $\varnothing$  75mm). L'idéal étant d'avoir le rapport  $L/e$  le plus important possible pour éviter les phénomènes de convection naturelle (voir partie 3). La cellule doit être stable chimiquement vis-à-vis du liquide et de l'atmosphère et ne doit pas se

déformer à haute température, c'est pourquoi elle est constituée de plaques de Platine Rhodié à 10%, assemblées par soudure laser afin d'assurer un bon contact thermique. A noter, la présence sur le pourtour supérieur de la cellule d'un fil de 1,5mm de diamètre afin d'éviter le débordement du fluide par capillarité à haute température. Enfin, du fait de la faible émissivité du Platine Rhodié à haute température [4] et pour maximiser l'absorption du faisceau laser, cette cellule est recouverte d'une couche de titane de 0,5 à 1  $\mu\text{m}$  d'épaisseur passivée par traitement thermique.

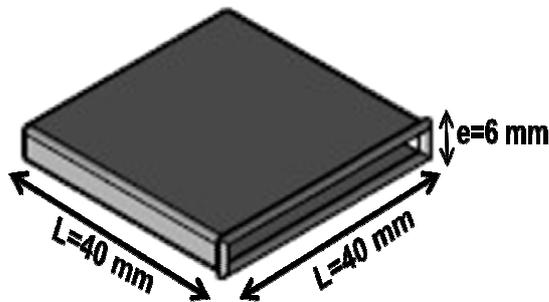


Figure 1 : Cellule de mesure en Platine Rhodié (10%) pour les liquides à haute température

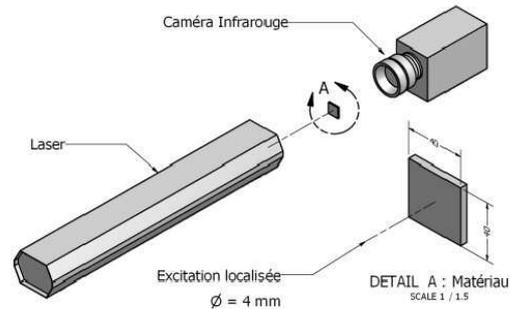


Figure 2 : Représentation simplifiée du dispositif expérimental de mesure des liquides à haute température

### 3. Modélisation des phénomènes de transfert

Le choix de la géométrie de la cellule a été réalisé à partir d'une précédente étude [1] sur un fluide confiné entre deux parois. Une étude de sensibilité basée sur un modèle purement conductif unidimensionnel, montre que l'on peut estimer de manière décorrélée la conductivité thermique, la diffusivité thermique, les pertes et le flux surfacique reçu en face avant. Cette étude montre aussi que pour minimiser la variance sur les paramètres à identifier, l'épaisseur optimale de paroi/fluide/paroi doit être aux alentours de 1/4/1mm, quel que soit le fluide ou le métal constituant le creuset.

Cependant, comme le montre la figure 3, la géométrie de la cellule entraîne un court-circuit thermique du fluide par les parois latérales. De plus, la cellule est ouverte sur le dessus, on peut donc difficilement envisager une modélisation analytique des transferts de chaleur par conduction. C'est pourquoi ces transferts seront simulés numériquement avec une géométrie 3D. Une précédente étude de sensibilité réalisée au LEMTA [5] sur un modèle numérique 3D implémenté sous FlexPDE®, montre cependant que l'on peut identifier indépendamment la conductivité thermique, la diffusivité thermique, les pertes et le flux surfacique reçu en face avant. C'est ce modèle numérique qui est utilisé ici pour simuler les transferts de chaleur par conduction au sein de la cellule de mesure.



Figure 3 : Visualisation du court circuit thermique (vecteur du flux de chaleur) au sein de la cellule (40\*40\*6mm) de mesure sans parois latérales (1mm) et avec parois latérales - Simulations sous FlexPDE® avec une géométrie cartésienne 2D

Concernant la prise en compte de la convection naturelle dans le modèle, il convient de noter que le rapport  $L/e$  est d'environ 10. Cette valeur est suffisamment faible pour ne pas négliger la convection naturelle a priori. Cependant nos matériaux fondus dans la cellule (voir tableau 1) sont visqueux et possèdent des nombres de Rayleigh faibles ( $Ra < 200$ ) au cours de l'expérience (on considère ici  $e=4\text{mm}$  et  $\Delta T=10^\circ\text{C}$ ). La convection naturelle peut donc être négligée pour nos matériaux mais pas pour l'eau ou l'huile [6].

$\Delta T=10^\circ\text{C}$ , $e=4\text{mm}$	$Ra$	$Pr$
Eau ( $25^\circ\text{C}$ )	9000	7
Huile (Alcatel 100) ( $25^\circ\text{C}$ )	1000	720
matériau fondu ( $1200\text{-}1600^\circ\text{C}$ )	0,04-0,18	8000-2000

Tableau 1 : Nombre de Prandtl et de Rayleigh pour différents fluides types

Le liquide étudié ici est un matériau semi-transparent dans le proche et moyen infrarouge. A haute température, le rayonnement thermique joue un rôle prépondérant dans les transferts de chaleur au sein de l'échantillon liquide. Le principal phénomène de couplage intervenant au cours de l'expérience est donc le couplage conducto-radiatif. Pour modéliser les transferts couplés conducto-radiatifs, l'idéal serait d'implémenter numériquement la méthode PN [7]. Cependant les matériaux étudiés ici sont des milieux de faible ou de forte épaisseur optique, on peut utiliser des modèles simplifiés. Concernant les milieux à fortes épaisseurs optiques ( $\tau \gg 1$ ), on peut utiliser une approximation de Rosseland modifiée dans laquelle on assimile les transferts radiatifs à un phénomène de diffusion pure. La conductivité thermique « apparente »  $k_{app}$  est identifiée via un modèle purement conductif 3D sous FlexPDE. Cette grandeur est la somme de la conductivité thermique phonique  $k_{ph}$  et de la conductivité radiative  $k_r$ , pour extraire cette dernière du terme identifié on utilise l'approximation de Rosseland-Deissler [8]:

$$k_r = \frac{4n^2\sigma T_{ext}^3 e}{\frac{1}{\varepsilon_1} + \frac{1}{\varepsilon_2} - 1 + \frac{3}{4}\beta e} \quad k_{app} = k_r + k_{ph} \quad (1)$$

Ce modèle nécessite cependant de bien connaître l'émissivité  $\varepsilon$  des parois et ne prend pas en compte le saut de température aux parois. Mais malgré cela, il permet de calculer  $k_r$ , car l'épaisseur de fluide est suffisante.

Concernant les milieux de faibles épaisseurs optiques ( $\tau \ll 1$ ). On peut considérer qu'ils sont suffisamment peu absorbants pour découpler le transfert conductif du transfert radiatif, ce dernier se faisant sur des échelles de temps beaucoup plus courtes. On peut utiliser un modèle avec échange direct du flux radiatif entre la face avant et la face arrière en parallèle du flux conductif [9] (voir figure 4). Ce modèle n'est cependant valable que pour de très faibles épaisseurs optiques, et pour certaines géométries, notamment celle-ci, avec face avant et face arrière réfléchissantes.

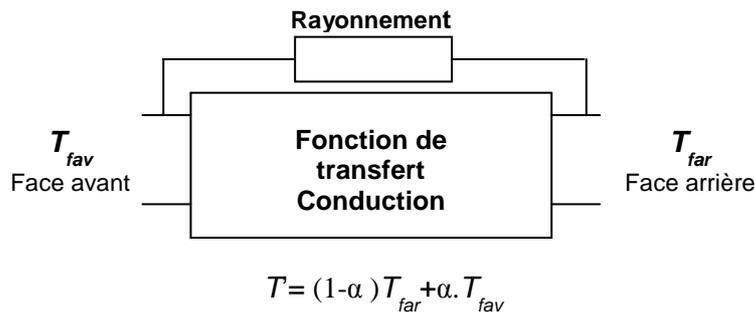


Figure 4 : Schématisation du modèle de couplage conducto-radiatif pour des milieux optiquement minces avec  $\alpha$  le coefficient de couplage conducto-radiatif.

#### 4. Résultats et discussion

Afin de valider le modèle conductif 3D et la géométrie de la cellule de mesure, des essais préliminaires sont réalisés à température ambiante sur un fluide de référence et sur un banc de mesure simplifié. L'excitation est un projecteur halogène qui couvre toute la surface de la face éclairée de la cellule en Pt/Rh10. La caméra InSb, ici, est sensible à la plage spectrale 3,5-5,5 $\mu$ m. Le fluide de référence est l'eau gélifiée (ajout de 0,15% de Carbopol® en masse), car ce fluide présente une forte viscosité (ce qui a pour conséquence un fort Ra) tout en conservant les propriétés thermiques de l'eau pure. Enfin, l'eau étant opaque au rayonnement infrarouge, le transfert radiatif au sein de l'échantillon est négligeable durant la mesure. La cellule de mesure est peinte en noir pour maximiser le rapport signal sur bruit. L'excitation est un créneau de 0,9s. Deux paramètres sont estimés : la conductivité thermique  $k_{ph}$  et les pertes  $h$ . Quatre essais sont réalisés. La valeur de  $\rho.C_p$  est ici fixée pour améliorer la précision de l'estimation. On note une élévation moyenne de température de 0,5°C en face arrière, les propriétés thermiques peuvent donc être considérées constantes au cours de la mesure. Pour réaliser l'inversion, le modèle implémenté sous FlexPDE est couplé avec un algorithme de Levenberg-Marquardt sous Matlab. Les résultats ainsi obtenus sont conformes à ceux donnés par la littérature [10]. La mesure donne 0,615 W/m/K contre 0,607 W/m/K à 25°C, soit un écart de 1,3%.

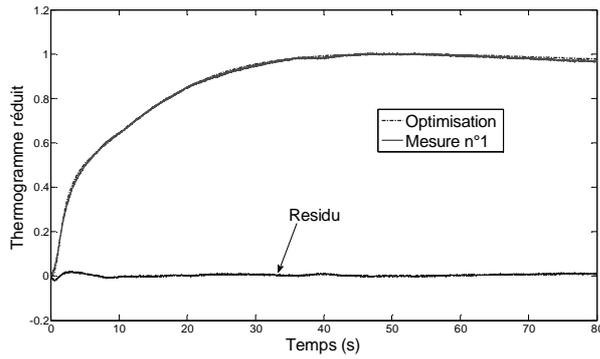


Figure 5 : Identification de  $k_{ph}$  et de  $h$  pour l'eau gélifiée – Thermogramme expérimental.

$k_{ph}$ ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ )	$h$ ( $W.m^{-2}.K^{-1}$ )
0,629	9,862
0,613	12,642
0,623	8,215
0,596	8,541
<b>Moyenne (<math>\pm</math> écart-type)</b>	
0,615 ( $\pm 0,015$ )	9,815 ( $\pm 2,015$ )

Tableau 2 : Estimation de  $k_{ph}$  et de  $h$  pour l'eau gélifiée à température ambiante (4 essais)

Des essais sont par la suite menés à haute température (de 1100°C à 1500°C) avec le dispositif présenté en partie 2 et une excitation créneau de 6,8s. Pour des milieux optiquement épais ( $\tau > 5$ ), en appliquant un modèle numérique 3D purement diffusif, on parvient à un résultat (voir figure 6) en identifiant  $k_{app}$  et  $h$ . Le bruit de mesure ici est lié au refroidissement du capteur de la caméra par le moteur Stirling.

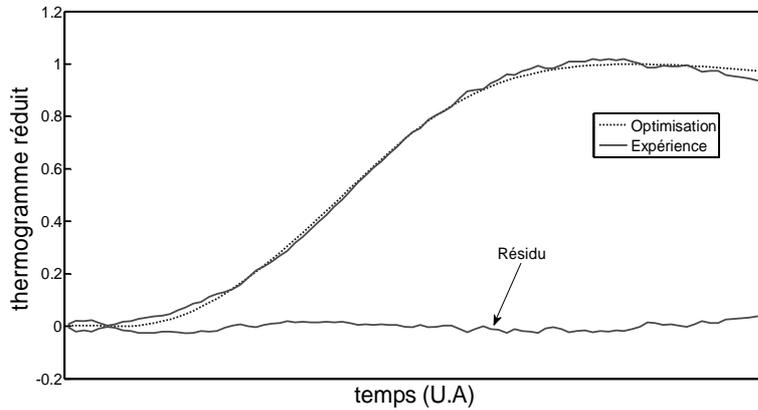


Figure 6 : Identification de  $k_{app}$  et de  $h$  pour un milieu à forte épaisseur optique à 1300°C

A partir de la conductivité thermique apparente identifiée, du modèle de Deissler, et en connaissant le coefficient d'absorption du matériau et son indice de réfraction ainsi que l'émissivité du platine, on peut donner une estimation de la conductivité thermique phonique de ce type de matériau fondu. Des estimations de conductivité thermique phonique sont aussi réalisées sur des milieux optiquement minces ( $\tau \ll 1$ ) à partir du modèle présenté en figure 4 et implémenté sous FlexPDE (voir figure 7).

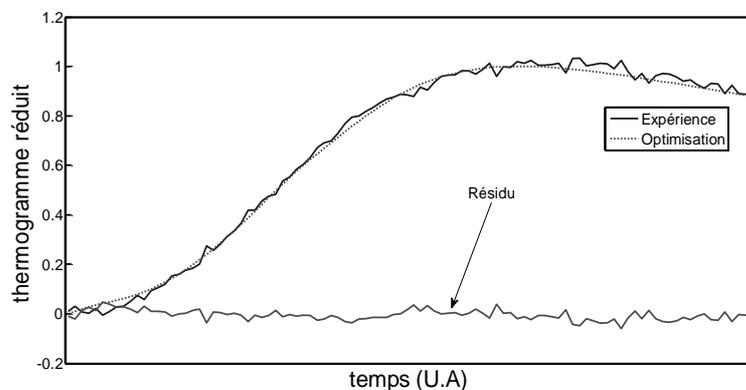


Figure 7 : Identification de  $k_{app}$ , de  $h$  et de  $\alpha$  pour un milieu à forte épaisseur optique à 1300°C

On identifie 3 paramètres : la conductivité thermique phonique  $k_{ph}$ , les pertes  $h$  et le coefficient de pondération du couplage conducto-radiatif  $\alpha$ .

Les identifications de la conductivité thermique sur des fluides de fortes et de faibles épaisseurs optiques, fournissent des valeurs intéressantes au vu des résidus d'identification, sur une plage de température de 1100 à 1500°C. Mais pour des impératifs de confidentialité ces résultats ne peuvent être présentés ici.

## Conclusion

Ces travaux ont permis de mettre au point un dispositif expérimental de mesure de la conductivité thermique phonique du matériau liquide à haute température, notamment via la conception d'une cellule de mesure adaptée à la problématique. Des modèles simples adaptés à des cas assez particuliers fournissent des résultats permettant de valider la méthode à haute température sur des liquides semi-transparents.

Cependant, pour que l'étude soit complète, il faut encore réaliser l'implémentation numérique d'un modèle réalisant le couplage conducto radiatif utilisant la méthode P1 implémenté sous FLEXPDE<sup>®</sup> afin de pouvoir identifier la conductivité thermique phonique d'un matériau d'épaisseur optique de l'ordre de  $\tau \approx 1$ . L'objectif final de ce travail est de parvenir à un modèle numérique pour estimer la conductivité thermique phonique quelles que soient les propriétés optiques de l'échantillon.

## Nomenclature

$a$	Diffusivité thermique, $m^2 s^{-1}$
$C_p$	Chaleur massique, $J kg^{-1} K^{-1}$
$e$	Épaisseur, $m$
$k$	Conductivité thermique, $W m^{-1} K^{-1}$
$h$	Coefficient d'échange, $W m^{-2} K^{-1}$
$n$	Indice de réfraction
$T$	Température, $K$
<i>Indices et exposants</i>	
$ph$	phonique
$r$	radiative
$fav$	face avant

### *Symboles grecs*

$\alpha$	Coefficient de couplage radiatif
$\beta$	Coefficient d'absorption, $m^{-1}$
$\varepsilon$	Emissivité
$\rho$	masse volumique, $kg m^{-3}$
$\tau$	Épaisseur optique
$\emptyset$	Diamètre du four, $m$
<i>Indices et exposants</i>	
$app$	apparente
$far$	face arrière

## Références

- [1] B Remy, A Degiovanni, Parameters estimation and measurement of thermophysical Properties of liquids, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 48, 4103-4120, 2005
- [2] J Endrys, A Blazek, J Ederova, Experimental determination of the effective thermal conductivity of glass by steady-state method, *Glastechnische Berichte*, 66-6-7, 151-157, 1993
- [3] J. Van den Brink, M. Rongen, Thermal conductivity of glasses at high temperatures, *Thermal Conduction* 22, 70-79, 1994
- [4] G Neuer, G Jaroma-Weiland, Spectral and Total Emissivity of High-Temperature Materials, *International Journal of Thermophysics*, 19-3, 917-929, 1998
- [5] V Schick, B Remy, A Degiovanni, F Demeurie, J Meulemans, P Lombard, Measurement of Thermal Conductivity of Liquids at High Temperature', *Journal of Physics: Conference Series* 395-1, 012078, 2012
- [6] B Remy, A Degiovanni, Measurements of the Thermal Conductivity and Thermal Diffusivity of Liquids. Part II: Convective and Radiative Effects, *International Journal of Thermophysics*, 27-3 949-969, 2006
- [7] HQ N'Guyen, B Remy, A Degiovanni, Fast and accurate simplified radiative model for modeling coupled heat transfers in glass forming process, *Advanced Materials Research*, 39-40, 575-578, 2008
- [8] J R Howell, R Siegel, M P Menguc, *Thermal Radiation Heat Transfer*, CRC Press, Inc., Boca Raton, FL, 2010
- [9] S André, B Remy, D Maillet et A Degiovanni; Public Modulated photothermal radiometry applied to semitransparent samples: Models and experiments, *Journal of Applied Physics*, 96-5, 2566-2575, 2004
- [10] P Liley, Thermophysical properties of ice/water/steam from -20°C to 50°C, *International Journal of Mechanical Engineering Education*, 32-4, 45-50.