

# Modélisation du transfert thermique dans un isolant microporeux

Jérôme Gilles, Jean-Marc Goyheneche, Franck Enguehard

► **To cite this version:**

Jérôme Gilles, Jean-Marc Goyheneche, Franck Enguehard. Modélisation du transfert thermique dans un isolant microporeux. Congrès Français de Thermique SFT 2000, May 2000, Lyon, France. 2000. <hal-01289015>

HAL Id: hal-01289015

<https://hal-centralesupelec.archives-ouvertes.fr/hal-01289015>

Submitted on 15 Mar 2016

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Modélisation du transfert thermique dans un isolant microporeux

Jérôme GILLES, Jean-Marc GOYHENECHÉ, Franck ENGUEHARD

CEA, Centre d'Etudes du Ripault, BP 16, 37260 MONTS, FRANCE.

**Résumé** - On s'intéresse dans cette étude aux isolants microporeux et, à titre d'exemple, à un matériau référencé WDS produit par la société allemande WACKER. La caractérisation thermique et microstructurale de ce matériau a été réalisée lors d'une précédente étude. Un modèle de conductivité thermique effective du WDS en fonction de ses caractéristiques géométriques, des fractions volumiques et des propriétés thermiques de ses constituants est proposé ici. La comparaison des conductivités effectives mesurées et calculées en fonction de la pression est satisfaisante. Une étude de sensibilité aux paramètres conduit à définir des règles de comportement pour ces matériaux.

## Nomenclature

|           |   |            |                         |
|-----------|---|------------|-------------------------|
| a         | diffusivité thermique, $m^2.s^{-1}$             | indices :  |                         |
| Cp        | capacité thermique massique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$ | a          | apparent                |
| d         | dimension caractéristique des pores, m          | e          | effectif                |
| M         | masse molaire, $kg.mol^{-1}$                    | g          | gaz                     |
| p         | pression, Pa                                    | op         | particules d'opacifiant |
| P         | porosité, sans unité                            | m          | matrice                 |
| T         | température, K                                  | si         | particules de silice    |
| $\alpha$  | fraction volumique, sans unité                  | exposant : |                         |
| $\lambda$ | conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$       | °          | libre (non confiné)     |
| $\rho$    | masse volumique, $kg.m^{-3}$                    |            |                         |

## 1 - Introduction

Le choix d'un isolant thermique pour le dimensionnement de véhicules hypersoniques passe inmanquablement par une étape de compréhension de la façon dont le transfert thermique s'effectue dans l'isolant thermique du corps de rentrée. Par ailleurs, lorsqu'il s'agit d'élaborer de nouveaux matériaux, il est souhaitable de savoir prédire les propriétés thermiques d'un produit en fonction de celles de ses constituants, de sa morphologie, etc ... afin d'en orienter la conception. C'est pourquoi nous nous intéressons à la modélisation du transfert thermique dans les isolants microporeux.

Le travail présenté concerne en particulier le matériau WDS produit par la société allemande WACKER. Ce matériau a pour référence : WDS - MARRON - 1000°C, indiqué simplement par WDS dans le texte. Une première étude [1] a consisté à caractériser ce matériau d'un point de vue microscopique et thermique. L'objectif de ce travail est d'évaluer la conductivité thermique effective du WDS en fonction de ses caractéristiques géométriques, des fractions volumiques et des propriétés thermiques de ses constituants, pour ensuite étudier l'impact de ces différents paramètres sur son pouvoir isolant.

## 2 – Caractérisation microstructurale et thermique [1]

Le WDS est composé de particules de dimensions nanométriques :  $\text{SiO}_2$  (silice amorphe),  $\approx 10$  nm, 70% en masse, 9% en volume ; de particules de dimensions micrométriques :  $\text{TiO}_2$  (rutile), oxydes mixtes  $\text{FeTiO}_3$  (ilménite) et  $\text{Fe}_2\text{Ti}_3\text{O}_9$ ,  $\approx 1$   $\mu\text{m}$ , 30% en masse, 2% en volume ; et de fibres en faible proportion. Le matériau a une porosité ouverte de  $P=89\%$ , la dimension des pores variant de quelques nanomètres entre les particules les plus petites à plusieurs centaines de nanomètres entre les agglomérats de particules. La masse volumique apparente  $\rho_a$  est comprise entre 300 et 315  $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ , tandis que la masse volumique de la phase solide est estimée à 2820  $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ .

La conductivité thermique apparente  $\lambda_a$  du matériau a été déterminée par la relation simple :  $\lambda_a = a_a \rho_a C_p$  à partir de mesures de capacité thermique massique  $C_p$  et de diffusivité thermique apparente  $a_a$ , de  $-50^\circ\text{C}$  à  $800^\circ\text{C}$ , sous différentes pression d'air de 0.04 mb à 1 b (*figure 8 de la référence [1]*). Typiquement, on obtient, à température ambiante, sous air :  $\lambda_a \approx 0.032 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  et sous vide  $\lambda_a \approx 0.0075 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ .

La caractérisation du WDS a permis de mettre en évidence la phénoménologie du transfert de chaleur dans les microporeux. Ce dernier se déroule à la fois par conduction à travers les particules et la phase gazeuse contenue dans les pores et, lorsque le matériau est porté à haute température, par rayonnement entre les parois des pores. Les excellentes qualités d'isolation thermique du matériau sont issues d'une part de la dimension nanométrique des pores qui limite la conduction gazeuse et d'autre part de la présence des grosses particules opaques au rayonnement thermique qui limitent les échanges radiatifs. A température ambiante, on suppose que la composante radiative  $\lambda_r(T)$  de la conductivité apparente  $\lambda_a(p,T)$  est négligeable par rapport à sa composante conductive  $\lambda_e(p,T)$  appelée conductivité effective :  $\lambda_a(p,T) = \lambda_e(p,T) + \lambda_r(T) \approx \lambda_e(p,T)$ . Enfin, on suppose que les phénomènes thermiques se déroulent à deux échelles distinctes, celle (nanométrique) des particules de silice et celle (micrométrique) des particules d'opacifiant. Le modèle de conductivité effective est basé sur ces deux hypothèses fondamentales.

## 3 – Modèle de conductivité thermique effective

Suite à la description microstructurale qui vient d'être faite du matériau constituant l'isolant microporeux, il apparaît clairement que la modélisation du transfert thermique par conduction au sein de ce matériau doit être abordée aux deux échelles caractéristiques précédemment évoquées : (i) d'une part, l'échelle micrométrique, c'est-à-dire l'échelle des particules d'opacifiant, à laquelle le matériau apparaît comme étant une suspension de billes dans une matrice homogène, et (ii) d'autre part, l'échelle nanométrique, c'est-à-dire l'échelle des particules de silice, à laquelle la matrice révèle son hétérogénéité et s'avère être un squelette de ces petites particules agglomérées.

La fraction volumique des particules d'opacifiant  $\alpha_{op}$  étant très faible, on peut faire appel à différentes formulations empiriques simples pour évaluer la conductivité thermique effective  $\lambda_e$  de l'isolant (une revue de ces différentes formules est proposée en [1]). Parmi toutes ces formules, nous avons retenu la relation de Maxwell qui exprime la conductivité effective  $\lambda_e$  en fonction de la fraction volumique des particules d'opacifiant  $\alpha_{op}$  et des conductivités thermiques des deux constituants apparents à l'échelle micrométrique, c'est-à-dire les

particules d'opacifiant (de conductivité  $\lambda_{op}$ ) et la matrice (de conductivité effective  $\lambda_m$ ) :

$$\lambda_e = \lambda_m \frac{2\lambda_m + \lambda_{op} - 2\alpha_{op}(\lambda_m - \lambda_{op})}{2\lambda_m + \lambda_{op} + \alpha_{op}(\lambda_m - \lambda_{op})} \quad (1)$$

Dès lors, toute la difficulté du problème réside dans l'évaluation de la conductivité thermique effective de la matrice  $\lambda_m$ . En effet cette matrice, d'apparence homogène à l'échelle micrométrique, est en fait un empilement aléatoire mais néanmoins structuré et très poreux de particules nanométriques de silice confinant l'air dans des volumes de taille de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de nm. La modélisation du transfert thermique par conduction dans la matrice doit donc prendre en compte (i) la morphologie complexe de cette matrice et (ii) le fait que le gaz devient un isolant thermique très puissant lorsqu'il se trouve confiné dans d'aussi faibles volumes. Enfin, l'observation au microscope électronique à transmission (MET) du squelette constitué par les particules de silice a révélé que ces particules s'interpénétraient de manière non négligeable, et on pressent aisément que cette surface de contact non nulle entre deux particules de silice voisines influence notablement sur la valeur de la conductivité thermique effective de la matrice  $\lambda_m$  ; par conséquent, ce paramètre doit également intervenir dans la modélisation.

Dans le cadre de ce travail, nous avons limité la morphologie de la matrice à des structures périodiques, la période spatiale étant néanmoins choisie suffisamment complexe pour imposer au flux conductif des chemins compliqués et des intersections nombreuses à l'image de ce qui se produit dans la matrice réelle. A titre d'illustration, la *figure 1* présente le type de structure bidimensionnelle périodique qui a été retenu pour les calculs présentés dans cet article (les cases blanches étant occupées par du gaz et les cases noires par des particules de silice), la taille de le motif élémentaire de cette structure (*figure 1*) étant variable pour pouvoir s'accorder à la porosité de la matrice réelle  $P_m = P / (P + \alpha_{si})$  ( $P$  désignant la porosité de l'isolant microporeux et  $\alpha_{si}$  la fraction volumique des particules de silice).

La conductivité thermique du gaz à l'état confiné  $\lambda_g$  a été évaluée à l'aide de la formule proposée par Bourret [2] :

$$\lambda_g = \frac{\lambda_g^o}{I + \frac{\lambda_g^o}{pd} \sqrt{\frac{\pi MT}{2R}}} \quad (2)$$

$\lambda_g^o$  désignant la conductivité thermique du gaz à l'état libre (quantifiée à l'aide des formules de la théorie cinétique des gaz [3]),  $p$  la pression du gaz,  $d$  la taille caractéristique des pores de la matrice,  $M$  la masse molaire du gaz,  $T$  la température du gaz et  $R=8.31451 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$  la constante des gaz parfaits.

Dès lors, la morphologie de la matrice ainsi que les valeurs des conductivités thermiques de ses deux constituants (particules de silice et gaz confiné) étant précisées, nous avons calculé la conductivité thermique effective  $\lambda_m$  de cette matrice. Pour cela, nous avons réalisé une expérience de type "conductivimétrie numérique" : on impose une température chaude  $T_c$  sur une des faces de l'isolant d'épaisseur  $e$  et une température froide  $T_f$  sur sa face opposée, puis on calcule par différences finies le champ de température s'établissant dans la matrice pour en déduire la densité de flux de chaleur  $\varphi$  la traversant (*figure 2*). On obtient alors :

$$\lambda_m = \frac{\varphi e}{(T_c - T_f)} \quad (3)$$

La discrétisation du problème par différences finies faisant apparaître les notions de conductances thermiques de contact, cette étape a été l'occasion de faire intervenir dans notre modélisation le phénomène d'interpénétration des particules de silice évoqué plus haut. Ce dernier a été traduit par un paramètre sans dimension  $\eta$  ( $0 \leq \eta \leq 1$ ) défini par :

$$\eta = \frac{\text{aire du disque de contact joignant deux particules de silice voisines}}{\pi R^2} \quad (4)$$

( $R$  désignant le rayon d'une particule de silice) et se retrouvant dans l'expression de la conductance thermique de contact entre deux particules de silice voisines.

#### 4 – Validation du modèle et identification des paramètres numériques

Les mesures de conductivité thermique apparente de l'isolant microporeux [1] ont été confrontées aux prédictions de notre modèle. Conformément à la description microstructurale du matériau, nous avons donné aux fractions volumiques des deux constituants solides  $\alpha_{op}$  et  $\alpha_{si}$  et à la taille caractéristique des pores de la matrice  $d$  respectivement les valeurs 2%, 9% et 500 nm. Les mesures ayant été faites à température ambiante et pression variable, nous avons fixé le paramètre  $T$  à 293 K et fait varier la pression  $p$  entre 1 et  $10^5$  Pa. Les conductivités thermiques des deux constituants solides  $\lambda_{op}$  et  $\lambda_{si}$  ont toutes deux été fixées à  $1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Enfin, le paramètre  $\eta$  caractérisant le taux d'interpénétration des particules de silice dans la matrice étant difficile à quantifier à partir des observations au MET, nous avons fait varier ce paramètre entre 0.2 et 0.6.

La meilleure superposition de la courbe calculée ( $p \rightarrow \lambda_e$ ) sur la courbe expérimentale ( $p \rightarrow \lambda_a$ ) s'est produite pour une valeur de  $\eta$  de 0.43 (*figure 3*). On constate sur ces deux courbes (i) d'une part, leur convergence à très basse pression vers une valeur asymptotique commune : la conductivité thermique effective de la matrice est alors réduite à celle du squelette constitué par les particules de silice ; et (ii) d'autre part, l'augmentation des deux courbes de conductivité à partir de  $p=10^3$  Pa : la conduction thermique gazeuse devient alors dominante par rapport à la conduction thermique "solide" (c'est-à-dire la conduction à travers le squelette constitué par les particules de silice) dans la matrice.

#### 5 – Etude de sensibilité aux paramètres

L'isolant WDS étant le plus efficace sous vide, c'est dans ces conditions qu'est réalisée l'étude de sensibilité aux paramètres.

**Influence de la dimension caractéristique des pores (*figure 4*).** Le matériau étant placé sous vide d'air, la dimension caractéristique des pores a une influence négligeable sur sa conductivité effective. Rappelons toutefois que ce paramètre  $d$  fixe la pression ( $\approx 10$  mb) en deçà de laquelle la conductivité effective a atteint sa valeur minimale [1] (*figure 3*).

**Influence de la surface de contact entre particules nanométriques (*figure 5*).** Le flux de chaleur traversant le matériau étant principalement conduit à travers la surface de contact entre particules de silice, la conductivité effective est très sensible à ce paramètre. Quasiment impossible à mesurer, il devra être identifié en comparant les conductivités effectives mesurées et calculées pour un matériau donné. En première approximation, il pourra en outre être estimé à partir de mesures de porosité et de surface spécifique, en supposant la morphologie des particules.

**Influence de la porosité (figure 6).** L'influence de la porosité a été observée en conservant un rapport sensiblement constant entre les fractions volumiques des particules. Logiquement, plus la porosité augmente et plus le matériau est isolant, une variation d'environ 1% sur P conduisant à une variation d'environ 10% sur  $\lambda_e$ .

**Influence des fractions volumiques des particules (figure 7).** Pour cette série de calculs, la variation des fractions volumique est systématiquement compensée par une variation de la porosité de manière à satisfaire la relation :  $\alpha_{si} + \alpha_{op} + P = 1$ . On remarque que la conductivité effective est aussi sensible à une augmentation de fraction volumique des particules de silice que des particules d'opacifiant.

**Influence de la conductivité des particules (figure 8).** La fraction volumique des particules d'opacifiant étant faible, la conductivité effective est très sensible à la conductivité des particules de silice et peu sensible à la conductivité des particules d'opacifiant. En conséquence, il est possible de changer la nature de l'opacifiant sans pour cela modifier de manière notable la conductivité effective globale du matériau. Par exemple, dans l'optique d'une application à haute température, on peut utiliser des particules d'opacifiant à fort indice d'absorption dans la bande de longueur d'onde concernée.

## 6 – Conclusion

Un modèle pour la conductivité thermique des matériaux microporeux a été présenté. Il permet d'estimer la conductivité thermique effective de ces matériaux en fonction de ses caractéristiques géométriques, ainsi que des fractions volumiques et des propriétés thermiques de ses constituants. L'ajustement d'un paramètre géométrique  $\eta$  caractérisant la surface de contact entre particules conduit à une comparaison satisfaisante des conductivités effectives mesurées et calculées en fonction de la pression.

Pour compléter ce modèle, il convient à présent de prendre en compte les échanges radiatifs internes qui, s'ils sont supposés négligeables à température ambiante, peuvent avoir un rôle important à haute température. En outre, il conviendrait de considérer des structures aléatoires (mais néanmoins structurantes) pour représenter de manière plus réaliste le squelette formé par les particules de silice. Enfin, le transfert de chaleur dans ces dernières devra faire l'objet d'une attention particulière ; leur dimension caractéristique étant de l'ordre de grandeur du libre parcours des phonons. Ces trois axes de recherche seront développés dans de prochains travaux visant en particulier à modéliser le comportement thermique des microporeux à haute température.

## Références

- [1] J.-M. Goyheneche, E. Bruneton, Caractérisation thermique et microstructurale d'un isolant microporeux, Congrès français de Thermique - SFT 99, Elsevier, Arcachon, France, 1999, pp. 509-514.
- [2] P. G. Collishaw, J. R. G. Evans, Review - An assessment of expressions for the apparent thermal conductivity of cellular materials, J. Mater. Sci. 29 (1994) 2261-2273.
- [3] F. Bourret, Mesure de la diffusivité thermique de mousses de carbone par la méthode flash et modélisation de la conductivité thermique radiative, thèse, Université de Bourgogne, 1995.
- [4] J. Gosse, Propriétés de transport des gaz à pression modérée, Techniques de l'ingénieur K2 (K425).

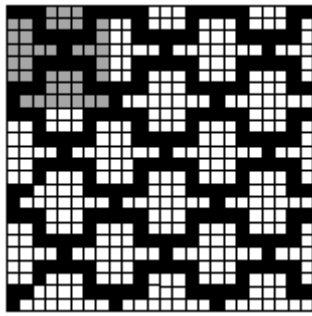


Figure 1 : Modèle pour la morphologie du matériau (motif élémentaire en grisé)

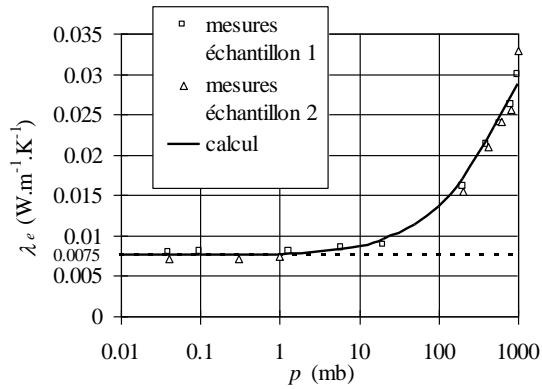


Figure 3 : Comparaison des conductivités apparentes mesurées et calculées

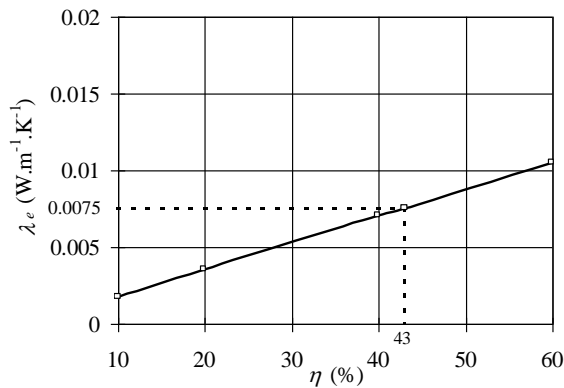


Figure 5 : Influence de la surface de contact entre particules nanométriques

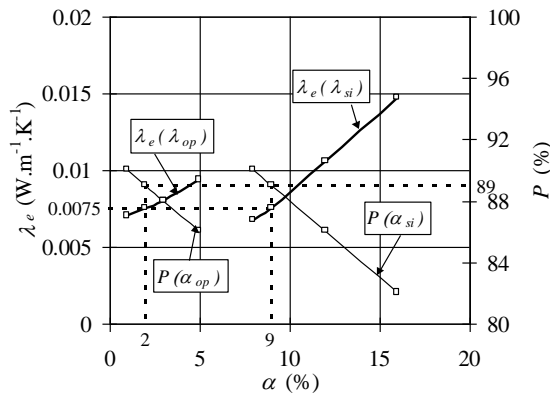


Figure 7 : Influence de la fraction volumique des particules

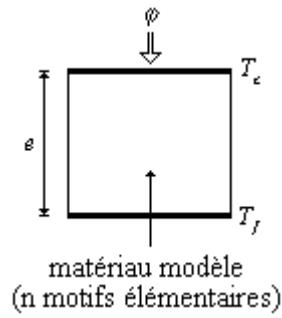


Figure 2 : Calcul numérique de la conductivité effective  $\lambda_m$  de la matrice

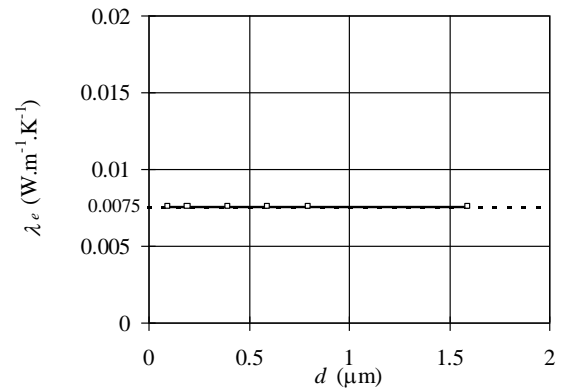


Figure 4 : Influence de la dimension caractéristique des pores

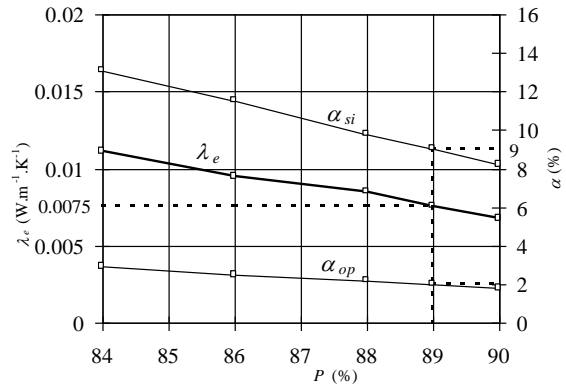


Figure 6 : Influence de la porosité

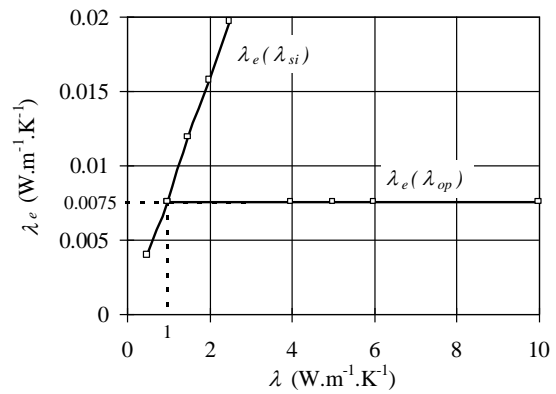


Figure 8 : Influence de la conductivité des particules

