



Caractérisation des propriétés thermo-physiques et d'échanges de chaleur des nanofluides à base de nanotubes de carbone

Salma Halelfadl

► To cite this version:

Salma Halelfadl. Caractérisation des propriétés thermo-physiques et d'échanges de chaleur des nanofluides à base de nanotubes de carbone. Génie mécanique [physics.class-ph]. INSA de Rennes, 2014. Français. NNT : 2014ISAR0008 . tel-01127363

HAL Id: tel-01127363

<https://theses.hal.science/tel-01127363>

Submitted on 7 Mar 2015

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.



THESE INSA Rennes

*sous le sceau de l'Université européenne de Bretagne
pour obtenir le titre de*

DOCTEUR DE L'INSA DE RENNES

Spécialité : Génie Civil (Option : Thermique & Mécanique)

présentée par

Salma HALELFADL

ECOLE DOCTORALE : SDLM

**LABORATOIRE : Laboratoire Génie Civil et Génie Mécanique
LGCGM**

Caractérisation des propriétés thermo-physiques et d'échanges de chaleur des nanofluides à base de nanotubes de carbone

Julien AMADOU

Responsable R&D à la société Nanocyl, Belgique/ membre invité

Thèse soutenue le 23.06.2014

devant le jury composé de :

Christophe MENEZO

Professeur à l'INSA de Lyon, France / président

Stefan VAN VAERENBERGH

Professeur à l'Université Libre de / rapporteur

Cong Tam NGYUEN

Professeur à l'université de Moncton, Canada / rapporteur

Mohammed EI GANAOUI

Professeur à l'université de Lorraine, France / examinateur

Patrice ESTELLE

Maitre de Conférences à l'université de Rennes 1/ Co-directeur de thèse

Thierry MARE

Maitre de Conférences HDR à l'université de Rennes 1/ Directeur de thèse

Remerciement

Je voudrais me plier aux traditionnels remerciements, en espérant n'oublier personne. Sachant la chose perdue d'avance, je commencerai donc par présenter mes excuses à ceux que j'aurais fortuitement oubliés de mentionner ici, et si leur contribution directe ou indirecte ne figure pas dans cette page, qu'ils sachent que je ne manquerais pas de m'en souvenir.

En tout premier lieu, je souhaite remercier mon Directeur de thèse Monsieur Thierry MARE, Maitre de conférences HDR à l'université de Rennes 1 et mon co-Directeur Monsieur Patrice ESTELLE maitre de conférences à l'université de Rennes 1, qui sans ceux, ce travail n'aurait pu être mené à bien. Ils ont su me prodiguer durant ces trois années leur savoir, leur gentillesse, leur humour, leur extrême patience, leur grande disponibilité et surtout leur encadrement sans faille du début à la fin de cette thèse.

Je me plais à dire que j'ai eu le meilleur encadrement qui puisse être pour mener à bien ce dur travail qu'est la thèse. Cette réflexion est tout à fait personnelle et n'engage que moi, bien sûr, mais ce lien d'amitié qui s'est tissée entre nous et cette confiance que vous avez mise en moi ont été de véritables éléments moteurs pour que je me sente à l'aise et en confiance dans mon travail et pour me donner l'envie d'avancer.

Je remercie l'ensemble des membres du jury. Sincères remerciements au Professeur Christophe MENEZO, président de jury et examinateur de cette thèse. Je suis extrêmement reconnaissante envers le Professeur Mohammed ELGANAOUI et Mr Julien AMADOU d'avoir examiné ce travail. Je remercie très chaleureusement le Professeur Stefan van Vaerenbergh et le Professeur Cong Tam Nguyen de me faire bénéficier de leur expertise en acceptant de juger ce travail et de consacrer du temps à l'examen de ce manuscrit.

Je souhaite remercier chaleureusement tout le personnel de l'IUT de St-Malo de m'avoir accueilli pendant ces trois années de thèse et en particulier monsieur Abel KINIE, directeur de l'IUT de Saint-Malo, et Monsieur Franck GUINARD, personnel technique pour sa disponibilité, sa bonne humeur et son aide sur toute la partie expérimentale de mon travail.

Je souhaite également remercier le groupe thermo-rhéologique du Laboratoire Génie Civil et Génie Mécanique de l'INSA de Rennes / Université de Rennes 1 pour m'avoir accueilli. Je remercie particulièrement le Professeur Christophe LANOS, directeur du LGCGM, Paul BYRNE, Maitre de conférences, Pascale SIMON secrétaire à l'IUT de Rennes 1, mes collègues Yacine AITOUMEZIANE et Alexandre PIERRE pour leur bonne humeur, leur gentillesse et leurs encouragements.

Ces trois années de thèse ont aussi été l'occasion pour moi de découvrir et de prendre goût au métier d'enseignant. Cette première expérience fût très bénéfique grâce aux personnes qui m'ont encadrée et je remerciais donc particulièrement Gilles CHOISY, Laurent SERRES, et Paul BYRNE pour leur soutien et le partage de leurs expériences.

Une autre personne que je souhaiterais vivement remercier pour tout le temps que nous avons travaillé ensemble est Julien AMADOU, Responsable R&D Nanocyl. Je te remercie énormément Julien pour tes conseils, tes encouragements, ta disponibilité et surtout ta gentillesse et ta persévérance.

Et qu'auraient été ces années sans le soutien de ma famille et de mes amis ?...

Je souhaite remercier ma famille pour m'avoir soutenue. La distance n'a malheureusement pas permis de nous voir souvent, je remercie mes frères et sœurs d'avoir été toujours là pour me soutenir, d'avoir eu une oreille attentive et compréhensive, et de m'avoir distraite avec leurs histoires. Ah la famille !

Je remercie très chaleureusement mon copain Sébastien qui m'a fait tant rire et voyager durant ces années, merci pour ces innombrables discussions et pour tous les petits et grands moments qui ont contribué à l'aboutissement de ce travail.

Un énorme merci à mes amis les plus proches, qui croient en moi et qui m'aident à avancer et à être celle que je suis. Pour cela et pour tous les moments partagés, je souhaite exprimer mon affection la plus profonde à : Nicolas, Julien, Antoine, Eugenia, Julia, Céline, Pascaline, Loubna, Fatim Zahra, Aurélien, Najib, Anas...

Ces dernières lignes vont me permettre de témoigner de ma plus profonde gratitude et de mon amour à ma chère maman. Merci pour ta dévotion à mon égard et pour tous les sacrifices faits pour que j'arrive jusqu'ici. Merci de m'avoir toujours soutenue...

Résumé

Les transferts de chaleur constituent la base de nombreux processus industriels qui sont présents dans notre vie quotidienne. L'intensification de ces échanges et l'amélioration du rendement sont devenues aujourd'hui une problématique majeure dans le monde industriel, des organismes de réglementation mais aussi de la société dans son ensemble, qui prend conscience de l'épuisement progressif des ressources énergétiques et qui se soucie de l'avenir en matière énergétique.

Face à ces enjeux énergétiques et environnementaux, Le défi technologique réside dans le développement de nouveaux processus pour une meilleure gestion de l'énergie. Ce travail de thèse s'inscrit dans ce cadre, et concerne particulièrement les problèmes liés à l'intensification des échanges thermiques dans les échangeurs de chaleur. Les améliorations des échanges thermiques dites 'passives' sont une voie déjà largement élaborée et atteignent leurs limites. De nouvelles stratégies d'optimisation doivent donc être étudiées. Une de ces stratégies consiste à améliorer les propriétés thermiques des fluides caloporteurs utilisés dans les systèmes thermiques, notamment dans les échangeurs de chaleur.

Des progrès importants en chimie ont permis dès la fin des années 90 de synthétiser des particules de taille nanométrique, qui, dispersées dans un liquide porteur, constituent des nanofluides. Leur synthèse répond au besoin d'améliorer les propriétés thermiques des fluides caloporteurs en y insérant une phase solide de conductivité thermique très élevée.

Le fil directeur de ce travail consiste donc à caractériser de manière approfondie le comportement thermique et rhéologique des nanofluides à base de nanotubes de carbone NTC utilisés tout au long de ce travail afin de quantifier les principaux paramètres influençant leurs propriétés thermo-physiques et les phénomènes physiques régissant l'intensification des transferts thermiques induits par ces nanofluides.

Une analyse des travaux de recherche antérieurs a été menée dans le but de s'affranchir des différents paramètres qui peuvent influencer le comportement thermique et rhéologique des nanofluides dont on citera les paramètres liés à la composition des nanofluides (fraction volumique des NTC, type de surfactant, rapport d'aspect des NTC), la température, le fluide de base...

Suite à cette étude, nous avons mené une étude expérimentale sur les propriétés thermo-physiques des nanofluides testés (conductivité thermique, viscosité dynamique, masse volumique) et sur les performances thermiques dans un échangeur de chaleur. Nous avons présenté également une analyse des résultats de façon à étudier l'influence des paramètres évoqués ci-dessus. Les résultats obtenus sont comparés et discutés vis-à-vis des modèles classiques existants, en proposant des améliorations et des interprétations selon les tendances obtenues.

Les résultats prometteurs de cette étude sont très encourageants et montrent que l'utilisation des nanofluides à base de nanotubes de carbone offre clairement une amélioration des performances thermiques par rapport aux fluides de base classiques. Les nanofluides à base de NTC peuvent constituer ainsi un débouché prometteur des transferts thermiques et présentent de bonnes perspectives et développement.

Abstract

Heat transfer is one of the most important industrial processes in our daily lives. Nowadays, the intensification of the heat transfer and the improving of the energy efficiency have become a major problem in industry, regulatory agencies, and also the society that becomes conscious of the progressive exhaustion of the world's energy resources and cares about the future of energy.

Due to these energy and environmental issues, the technological challenge is to develop new processes for better energy management. This work fits in that context and applies particularly the problems associated to the improvements of heat exchanger's energy efficiency.

The conventional methods for increasing the heat transfer in heat exchangers have already been extensively explored and have reached their objective limits. There is therefore an urgent need for new strategies with improved performances. The novel concept of improving the thermal properties of the working fluids used in thermal system, especially in heat exchangers, has been proposed as a means of meeting these challenges.

The innovative concept of nanofluids heat transfer fluids consisting of suspended of nanoparticles with very high thermal conductivities has been proposed for these challenges.

The aim of this work is therefore to characterize profoundly the thermal and the rheological behavior of nanofluids containing carbon nanotubes CNTs used throughout of this work. This is in order to quantify the main parameters influencing their thermo-physical properties and physical phenomena governing the intensification of heat transfer induced by these nanofluids.

An analysis of previous researches has been conducted for the purpose of establishing various parameters that may influence the thermal and rheological behavior of nanofluids, which including the parameters related to the composition of nanofluids (volume fraction of CNTs, type of surfactant, aspect ratio of CNTs), the temperature, the base fluid...

Following this study, experiments have been carried out on the thermal physical properties of tested nanofluids (thermal conductivity, dynamic viscosity, density) and thermal performances in a heat exchanger. Analyses of the results have been presented in order to study the influence of the above-mentioned parameters. The results obtained are compared and discussed vis-à-vis the existing conventional models, suggesting improvements and interpretations according to the trends obtained.

The promising results of this study are very encouraging and show that the use of nanofluids containing carbon nanotubes clearly improved the thermal performances compared to the conventional base fluids. The CNT-based nanofluids can thus be a promising candidate for heat transfer and presents good perspective and development.

Mots-clés

Economie d'énergie ; Transferts thermiques ; Echangeurs de chaleur ; nanofluides ; nanotubes de carbone ; comportement rhéologique ; conductivité thermique ; performance thermique ;

Keywords

Energy-saving ; Heat transfer ; Heat exchanger; Nanofluid; Carbon Nanotubes; Rheological behavior; Thermal conductivity; Heat performance

TABLE DES MATIERES

Nomenclature.....	9
Introduction Générale.....	11
Chapitre I : Généralités sur les nanofluides à base de nanotubes de carbone.....	13
I.1 Nanofluides	14
I.1.1 Définition	14
I.1.2 Type de nanoparticules	15
I.1.2.1 Structure des nanotubes de carbone	16
I.1.2.2 Voies de synthèse des nanotubes de carbone NTC	17
I.2 Nanofluides à base de NTC : Méthodes de synthèse, composition et stabilité	19
I.2.1 Fabrication des nanofluides à base de NTC	20
I.2.2 Techniques d'évaluation de la stabilité des nanofluides à base de NTC	21
I.2.2.1 Procédés de sédimentation et centrifugation	21
I.2.2.2 Analyse du potentiel Zeta.....	22
I.2.2.3 Absorbance UV-Visible Spectrophotométrie.....	23
I.2.2.4 Microscopie Electronique à Transmission MET ou Electronique à Balayage MEB	23
I.3 Propriétés thermo-physiques des nanofluides à base de NTC : synthèse bibliographique	24
I.3.1 Conductivité thermique.....	24
I.3.1.1 Modèles théoriques	25
I.3.1.2 Résultats expérimentaux antérieurs	27
I.3.2 Viscosité dynamique	33
I.3.2.1 Modèles théoriques	33
I.3.2.2 Résultats expérimentaux antérieurs	37
I.3.3 Chaleur spécifique	42
I.3.4 Masse volumique	43
I.4 Performances thermiques et hydrodynamiques des nanofluides à base de NTC : synthèse bibliographique.....	44
I.4.1 Relation entre les propriétés thermiques et rhéologiques : approches qualitative	45
I.4.2 Caractérisation des propriétés thermiques et hydrodynamiques: Approche quantitative	46
I.4.2.1 Effet de la fraction volumique/massique.....	47
I.4.2.2 Effet de la température	52
I.4.2.3 Effet de la présence de surfactant et action mécanique (mélangeage)	52
I.4.2.4 Effet de la distance axiale	53
I.4.2.5 Influence des autres paramètres	54

Chapitre II : Matériaux et dispositifs expérimentaux	57
II.1 Présentation des nanofluides utilisés	58
II.1.1 Nanotubes de carbone	58
II.1.2 Description des nanofluides à base de NTC utilisés	61
II.1.3 Protocole de dilution et préparation des échantillons	62
II.1.4 Caractérisation par MEB des nanofluides étudiés	63
II.2 Caractérisation du comportement rhéologique : technique de mesure, protocole expérimental et validation	65
II.2.1 Technique de mesure et protocole expérimental	65
II.2.2 Incertitude de mesure et validation du protocole expérimental	67
II.3 Caractérisation de la conductivité thermique : technique de mesure, protocole expérimental et validation	69
II.3.1 Technique de mesure : Méthode du fil chaud	69
II.3.2 Procédure expérimentale	70
II.3.3 Validation du protocole expérimental	71
II.4 Caractérisation de la masse volumique : technique de mesure, protocole expérimental et validation	72
II.4.1 Technique expérimentale	72
II.4.2 principe de fonctionnement	72
II.5 Performances thermiques dans un échangeur : techniques de mesure, protocoles expérimentaux et validation	75
II.5.1 Principe d'analyse et détermination des grandeurs utiles	75
II.5.2 Etude préliminaire : dispositif expérimental et validation	78
II.5.2.1 Dispositif expérimental	78
II.5.2.2 validation du protocole expérimental	81
II.5.3 Etude du comportement thermique dans un échangeur coaxial : dispositif expérimental et validation	85
II.5.3.1 Dispositif expérimental	87
II.5.3.2 Conditions de fonctionnement fixées et validation du protocole expérimental	88
II.5.3.3 Remarques générales et incertitudes de mesure	93
Chapitre III : Caractérisation expérimentale des propriétés thermo physiques des nanofluides à base de NTC : Résultats et discussions	95
III.I Caractérisation du comportement rhéologique des nanofluides à base de NTC : Résultats et analyses	96
III.1.1 Effet de la concentration en nanotubes et de la température : cas du nanofluide N1	96
III.1.1.1 Mesures expérimentales de la viscosité dynamique du fluide de base	97
III.1.1.2 Effet de la fraction volumique	99

III.1.1.3 Effet de la température	100
III.1.1.4 Viscosité relative du nanofluide en fonction de la température à hautes vitesses de cisaillement.....	102
III.1.1.5 Comparaison avec les modèles de la littérature.....	103
III.1.2 Effet du type de surfactant et du rapport d'aspect.....	106
III.1.2.1 Mesures expérimentales de la viscosité dynamique du fluide de base	107
III.1.2.2 Effet du type de surfactant.....	108
III.1.2.3 Effet du rapport d'aspect	111
III.1.3 Bilan sur la caractérisation du comportement rhéologique	116
III.2 Caractérisation de la conductivité thermique : Résultats et analyses	117
III.2.1 Mesures expérimentales de la conductivité thermique des fluides de base.....	117
III.2.2 Effets de la concentration et de la température	119
III.2.3 Conductivité thermique relative et comparaison avec les modèles de la littérature.....	120
III.2.4 Effets du type de surfactant et du rapport d'aspect	127
III.2.4.1 Effet du type de surfactant.....	127
III.2.4.2 Effet du rapport d'aspect	128
III.3 Caractérisation de la masse volumique : Résultats et analyses	130
III.3.1 Mesure de la masse volumique : résultats et discussions	130
III.3.2 Effet de la fraction volumique et de la température	131
III.4 Chaleur spécifique: Résultats et analyses.....	135
III.4.1 Effet de la fraction volumique.....	136
III.4.2 Effet de la température	137
III.5 Bilan et conclusions sur les mesures des propriétés thermo-physiques des nanofluides à base de NTC.....	138
Chapitre IV : Etude du comportement thermique des nanofluides dans un échangeur de chaleur	140
IV.I Etude préliminaire : Comportement thermique dans un échangeur en U : Résultats et analyses	141
IV.1.1 Validation des températures à l'entrée/sortie de l'échangeur	141
IV.1.2 Bilans énergétiques	143
IV.1.3 Coefficient d'échange convectif	144
IV.1.4 Comparaison avec les modèles usuels	147
IV.1.5 Etude de la stabilité des nanofluides	148
IV.2 Performances thermiques des nanofluides dans un échangeur coaxial horizontal: Résultats et discussions.....	149
IV.2.1 Observation des températures au niveau de la surface d'échange	150

IV.2.2 Effet de la distance axiale	153
IV.2.3 Effet du régime d'écoulement.....	158
IV.2.4 Effet de la composition des nanofluides	159
IV.2.4.1 Effet de la concentration en NTC.....	160
IV.2.4.2 Effet du rapport d'aspect	162
IV.2.4.3 Effet du type de surfactant.....	164
IV.2.4.4 Effet de l'ajout de l'antigel.....	164
Conclusion Générale et perspectives	167
Références bibliographiques.....	169
Annexes	180

Nomenclature

Symboles latins

A	Surface d'échange	m^2
$\dot{m}$	Débit massique	kg/s
C_p	Chaleur spécifique	J/kg.K
T	Température	K
R	Résistance thermique	K/W
h	Coefficient d'échange convectif	W/m ² .K
L	Longueur	m
U	Coefficient d'échange global	W/m ² .K
Nu	Le nombre de Nusselt	–
Re	Le nombre de Reynolds	–
ΔT_{lm}	Ecart de température logarithmique moyen (DTLM)	–
q	Flux thermique	W
Pr	Le nombre de Prandtl	–
R_a	Rapport d'aspect des NTC	–
f	Facteur de friction	

Symboles Grecs

λ	Conductivité thermique	W/m.K
κ_B	Constante de Boltzmann	
φ_M	Fraction volumique maximale des NTC dans une suspension	(%)
φ	Fraction volumique	(%)
μ	Viscosité dynamique	Pa.s
ρ	Masse volumique	kg/m ³
φ_a	Fraction volumique des agrégats	(%)

Indices

<i>a</i>	Annulaire
<i>ch</i>	Chaud
<i>fr</i>	Froid
<i>e</i>	Entrée
<i>s</i>	Sortie
<i>cond</i>	Conductif
<i>conv</i>	Convectif
<i>t</i>	Total
<i>np</i>	Nanoparticule
<i>fb</i>	Fluide de base
<i>th</i>	Thermocouple

Introduction générale

Les transferts de chaleur constituent la base de nombreux processus industriels qui sont présents dans notre vie quotidienne. L'intensification de ces échanges et l'amélioration du rendement sont devenues aujourd'hui une problématique majeure dans le monde industriel, des organismes de réglementation mais aussi de la société dans son ensemble, qui prend conscience de l'épuisement progressif des ressources énergétiques et qui se soucie de l'avenir en matière énergétique.

Face à ces enjeux énergétiques et environnementaux, Le défi technologique réside dans le développement de nouveaux processus pour une meilleure gestion de l'énergie. Ce travail de thèse s'inscrit dans ce cadre, et concerne particulièrement les problèmes liés à l'amélioration des échanges thermiques dans les échangeurs de chaleur.

Il existe une réelle demande dans le monde industriel pour développer de nouvelles stratégies permettant d'améliorer le comportement thermique des fluides utilisés dans les échangeurs de chaleur. Des progrès importants en chimie ont permis dès la fin des années 90 de synthétiser des particules de taille nanométrique, qui, dispersées dans un liquide porteur, constituent des nanofluides. Leur synthèse répond au besoin d'améliorer les propriétés thermiques en y insérant une phase solide de conductivité thermique très élevée. Choi et ses collègues furent les premiers à introduire le concept de nanofluide en 1995 au Laboratoire National d'Argonne de l'université de Chicago [CHO/1995]. Même si le concept de nanofluide est en apparence simple, il apparaît au fond d'une grande complexité en raison des mécanismes physiques mis en jeu. De nombreuses recherches ont été menées sur cette nouvelle génération de fluides afin d'apporter une meilleure compréhension de ces mécanismes, et mettre ainsi au point des liquides caloporteurs plus performants.

Les applications potentielles des nanofluides sont multiples et très importantes dans plusieurs domaines : refroidissement électronique, climatisation et froid, aéronautique et spatial, transports, nucléaire... et pourraient constituer, sous certaines conditions, un débouché prometteur des nanosciences dans le domaine de l'énergie.

C'est dans ce contexte, et dans le cadre complémentaire d'une étroite collaboration avec Nanocyl, que ces travaux de doctorat ont été menés en se focalisant sur les nanofluides à base de nanotubes de carbone. Cette collaboration a donné lieu au dépôt d'un Brevet Européen dont les résultats restent confidentiels à ce jour et ne sont pas présentés dans ce manuscrit. Ainsi l'objectif principal de cette thèse est d'étudier le comportement thermique et rhéologique de ce type de nanofluides caloporteurs afin de quantifier les principaux paramètres et phénomènes physiques influençant leurs propriétés thermo-physiques ainsi que l'intensification des transferts thermiques induits par ces nanofluides dans des échangeurs de chaleur. Les actions mises en œuvre pour conduire cette étude, et les résultats principaux qui en sont issus sont décrits et discutés dans quatre grandes parties.

Le premier chapitre du rapport présente une synthèse bibliographique permettant une meilleure appréhension des nanofluides à base de nanotubes de carbone, de leurs propriétés thermo-physiques, thermiques et hydrodynamiques, et de décrire les différents modèles de la littérature souvent utilisés pour l'estimation des propriétés thermo-physiques (conductivité thermique, viscosité dynamique, masse volumique...). L'analyse de ces travaux permet d'identifier les différents paramètres qui peuvent influencer le comportement thermique et rhéologique des nanofluides à base de nanotubes de carbones. D'autre part, elle montre également une grande disparité des résultats antérieurs et l'absence de relations fiables et exploitables pour prédire l'évolution du comportement thermo-physique de ce type de nanofluides et la nécessité de caractériser expérimentalement et rigoureusement ces propriétés.

Ainsi, le second chapitre présente, après une description détaillée des nanofluides utilisés, les systèmes et les dispositifs expérimentaux mis en œuvre pour la caractérisation expérimentale des propriétés thermo-physiques, conductivité thermique, viscosité dynamique et masse volumique, des nanofluides, ainsi que la validation des procédures expérimentales et la détermination des incertitudes de mesures. Selon le même principe, les échangeurs de chaleur utilisés et développés dans cette étude pour quantifier les performances thermiques des nanofluides sont décrits et calibrés. Une présentation approfondie des calculs et formulations mathématiques utilisées et associées à ces dispositifs pour l'évaluation des performances thermiques et également réalisée.

Dans le troisième chapitre, nous présentons les résultats expérimentaux des propriétés thermo-physiques des nanofluides testés (conductivité thermique, viscosité dynamique, masse volumique). Nous présentons également dans ce chapitre, une analyse des résultats de façon à évaluer l'influence de la fraction volumique des NTC, de la température, du type de surfactant et du rapport d'aspect des NTC. Ces résultats sont comparés et discutés vis-à-vis des modèles classiques existants, en proposant des améliorations et des interprétations selon les tendances obtenues.

Enfin, le dernier chapitre propose une étude permettant de caractériser et de comprendre les mécanismes qui semblent conditionner les performances thermiques des nanofluides à faibles concentrations dans deux types d'échangeur. Le premier échangeur de chaleur, à tubes concentrique en U, nous a permis, en s'appuyant sur les tendances observées, de mettre en évidence le potentiel thermique des nanofluides étudiés par rapport aux fluides de base associés. Ensuite, et dans le but de raffiner et consolider les résultats obtenus, l'exploitation d'un échangeur thermique coaxial donne lieu à des nouvelles interprétations reposant sur les effets des différents paramètres qui peuvent influencer le comportement thermique des nanofluides dans un échangeur de chaleur.

Chapitre I :

Généralités sur les nanofluides à base de nanotubes de carbone

INTRODUCTION

Les fluides caloporteurs de base souvent utilisés dans les applications de refroidissement ou de chauffage ont des conductivités thermiques très faibles qui limitent parfois leur capacité de transfert de chaleur [LIY/2009]. L'utilisation des nanofluides, particules de taille nanométrique de conductivité thermique très élevée en suspension dans un fluide caloporteur, est susceptible d'apporter des gains en performances thermiques très importants. De nombreuses recherches ont été menées sur cette nouvelle génération de fluides afin d'apporter une meilleure compréhension des mécanismes physiques mis en jeu lors de l'utilisation des nanofluides, et mettre ainsi au point des liquides caloporteurs plus performants.

Ce chapitre se décompose en deux parties principales. La première partie présente une étude descriptive des nanofluides à base de nanotubes de carbone, leur composition, leurs méthodes de synthèse et leurs propriétés physiques et thermiques. Une seconde partie est axée sur l'analyse de l'état des connaissances des propriétés thermo-physiques et du comportement thermique de ces nanofluides dans les systèmes thermiques.

I.1 NANOFLUIDES

I.1.1 Définition

Les nanofluides sont des solutions colloïdales constituées de particules de taille nanométrique en suspension dans un liquide porteur. Ce type de solution suscite un grand intérêt depuis la découverte de leurs propriétés thermiques particulières. En effet, les fluides de base souvent utilisés dans les applications de refroidissement ou de chauffage ont des conductivités thermiques très faibles (Tableau I.1) qui limitent leur capacité de transfert de chaleur. L'idée est alors d'insérer au sein des liquides de base des nanoparticules de conductivité très élevée, afin d'augmenter la conductivité thermique effective du mélange et ainsi améliorer ces performances thermiques.

Les liquides de base généralement utilisés dans la préparation des nanofluides sont ceux d'usage commun dans les applications de transfert de chaleur tels que l'eau, l'éthylène glycol, l'huile de moteur etc... ; Les nanoparticules peuvent être à base de métaux, d'oxydes, de carbures, de nitrures ou de carbone.

Tableau I. 1 Conductivité thermique de divers fluides de base et matériaux à 20°C [LIY/2009]

Elément	Conductivité thermique λ (W/m.K)
Eau	0,599
50% eau + 50% éthylène glycol	0,41
Ethylène glycol	0,25
huile de moteur	0,14
Nanotube de carbone	3000-6000
Diamant	1000-2600
Cuivre (métal pur)	401
Nickel (métal pur)	237
Silicone (non métallique)	148
Alumine (Al_2O_3)	40

I.1.2 Types de nanoparticules

La production de nouveaux nanomatériaux (nanoparticules) constitue un champ de recherche en pleine expansion, aussi seules les nanoparticules les plus couramment utilisées dans les applications liées aux transferts thermiques sont ici brièvement mentionnées.

D'une manière générale, les nanoparticules peuvent être classées selon leur forme en deux grandes catégories (figure I.1) :

- Les nanoparticules sphériques pour lesquelles plusieurs types de matériaux peuvent être utilisés pour leur fabrication. Ces nanoparticules sphériques peuvent ainsi être à base de métaux (cuivre Cu, fer Fe, or Au, argent Ag...) ou d'oxydes de cuivre (oxyde d'aluminium Al_2O_3 , oxyde de cuivre CuO, oxyde de titane TiO_2 ...).
- Les nanotubes (les nanotubes de carbone NTC, les nanotubes de titane TiO_2 , Nanotube de silicium...)

Dans le cadre de cette synthèse bibliographique, on s'intéressera principalement à l'étude des nanofluides à base de nanotubes de carbone.

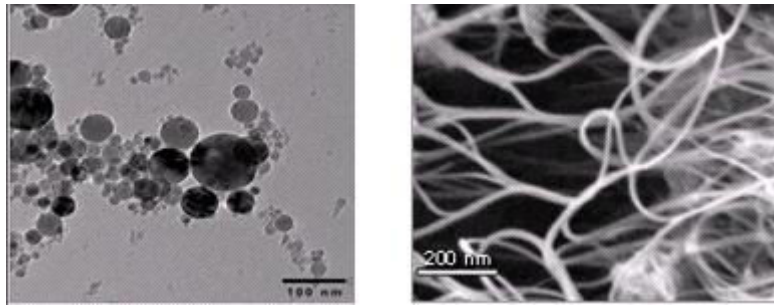


Fig. I. 1. nanoparticules sphériques [BAN/2005] ;Nanotubes de carbone [INT1]

I.1.2.1 Structure des nanotubes de carbone

Depuis leur découverte, les nanotubes de carbone (NTC) suscitent un grand intérêt scientifique autant fondamental qu'appliqué du fait de leurs propriétés thermiques, mécaniques, électriques et optiques remarquables.

Un nanotube de carbone est une structure cristalline de carbone proche des fullerènes. Structurellement, on peut voir le nanotube comme un feuillet de graphène¹ enroulé sur lui-même formant un cylindre creux fermé à ses extrémités par des demi-fullerènes ou des structures plus complexes (figure I.2). Ce matériau est caractérisé par son rapport d'aspect (rapport entre sa longueur et son diamètre) important généré par ses dimensions. En effet, le diamètre d'un nanotube est nanométrique, tandis que sa longueur est micrométrique, voire millimétrique ; il peut être ainsi considéré comme un nanomatériau unidimensionnel.

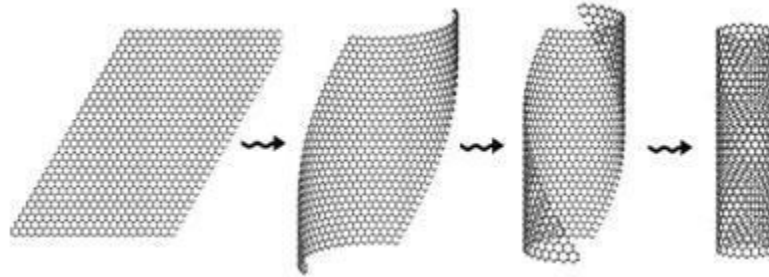


Fig. I. 2. Exemple d'enroulement d'un feuillet de graphène pour former un tube [TEI/2009]

Un nanotube de carbone peut être composé d'une seule couche de graphène repliée sur elle-même dite nanotube mono-paroi (*single-walled*, SWCNT) ou d'un enroulement de plusieurs couches de graphène dites nanotubes multi-parois (*multi-walled*, MWCNT) (figure I.3.b). Les nanotubes double parois ou bi-parois (*double-walled*, DWCNT) (figure I.3.a) sont un cas particulier entre les SWCNT et les MWCNT.

¹ Monocouche d'atomes de carbone disposés selon une structure en nid d'abeille.

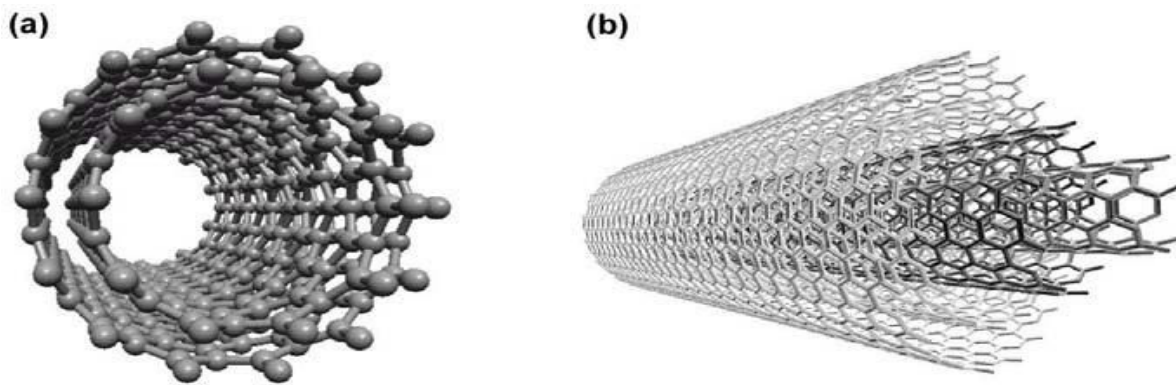


Fig. I. 3 (a) nanotubes bi-parois DWCNT ; (b) nanotubes multi-parois MWCNT [LAN/2008]

En règle générale, les propriétés thermiques exceptionnelles des NTC ont tendance à diminuer lorsque le nombre de parois augmente pour atteindre progressivement celles du graphite. Ainsi, la conductivité thermique des SWCNT peut être comparable à celle du diamant de haute pureté [BER/2000], voire même supérieure et peut atteindre jusqu'à 6000W/m.K. La conductivité thermique des MWCNT est largement inférieure à celle des SWCNT, elle est de l'ordre de 3000W/m.K [DIN/2006].

1.1.2.2 Voies de synthèse des nanotubes de carbone (NTC)

Il existe principalement trois voies de production des NTC, qu'on peut classer en deux grandes catégories, et qui seront détaillées par la suite :

- Synthèse à très hautes températures : par arc électrique (*arc discharge*, AD) ou par ablation laser (*laser ablation*, LA).
- Synthèse à moyennes températures : par dépôt chimique catalytique en phase vapeur (*catalytic chemical vapor deposition*, CCVD).

A) Technique de l'arc électrique (AD)

La technique de l'arc électrique a été initialement utilisée pour la synthèse des fullerènes, puis elle a été modifiée pour produire des NTC [TAY/1995]. Cette méthode consiste en la décharge d'un arc électrique entre deux électrodes de graphite à très hautes températures dans un environnement contenant un gaz inerte (He, Ar...) (figure I.4). Pour la synthèse des MWCNT, les électrodes utilisées sont en graphite pur [EBB/1993], tandis que pour les SWCNT, l'anode en graphite contient en plus un métal jouant le rôle de catalyseur [IJJ/1993]. Ce procédé de fabrication est très peu coûteux. Cependant, le processus est tellement complexe qu'au final les échantillons de NTC obtenus sont contaminés par des impuretés et il n'y a pas de contrôle précis de la longueur et du diamètre des NTC [AJA/1997]. Pour éliminer ces contaminants, des purifications poussées sont nécessaires mais elles endommagent les NTC et les rendements obtenus sont finalement relativement faibles.

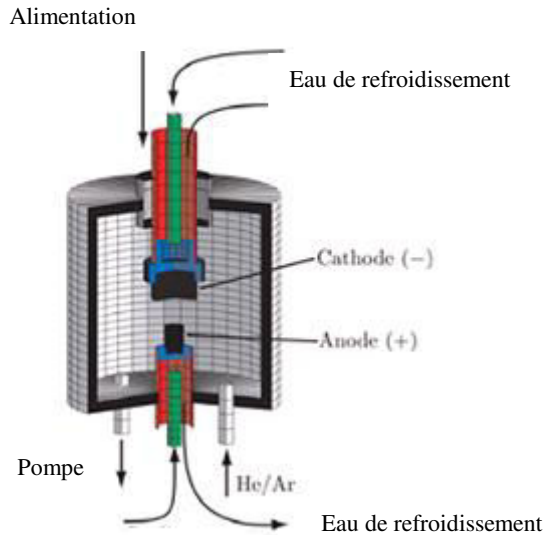


Fig. I. 4 Dispositif type de la technique décharge par arc électrique [BOZ/2009]

B) Technique de l'ablation laser

L'ablation laser constitue une autre voie de synthèse des NTC qui repose sur la vaporisation d'un disque de graphite, source de carbone, par irradiation laser (figure I.5). Tout d'abord, le disque solide de graphite est placé au centre d'un tube en quartz chauffé à 1200 °C. Ensuite, un gaz inerte est injecté dans l'enceinte et simultanément un faisceau laser balaye de manière homogène la surface de la cible graphite. Sous le flux de gaz, les CNT produits sont dirigés des zones chaudes vers des zones plus froides et collectés dans le fond du tube. Comme dans le cas de synthèse par arc électrique, les MWCNT sont synthétisés à partir d'une cible en graphite pur, tandis qu'il est nécessaire d'utiliser un catalyseur métallique mélangé à la cible en graphite pour les SWCNT. Le rendement et la qualité des échantillons obtenus avec ce processus sont meilleurs, comparés au cas de l'arc électrique [LEE/1996]. Cependant, cette technique est assez coûteuse et son rendement reste faible.

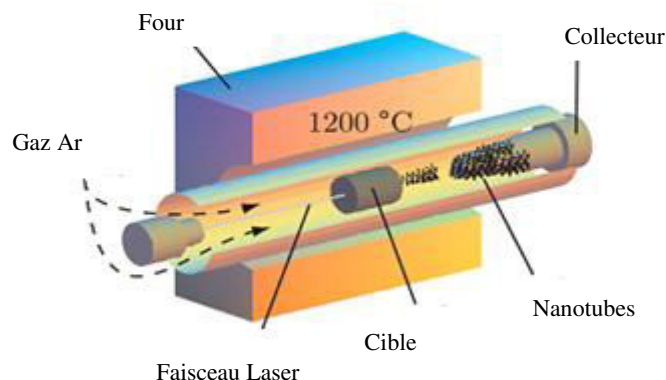


Fig. I. 5 Schéma d'un dispositif ablation laser [MIK/2005]

C) Technique de dépôt chimique en phase vapeur CCVD

La synthèse des NTC par la méthode de dépôt chimique en phase vapeur CCVD a été utilisée pour la première fois par Endo et al. [END/1995]. Cette technique consiste à décomposer un flux gazeux contenant une source de carbone (par exemple l'hydrocarbure ou le monoxyde de carbone) en présence de catalyseurs métalliques dans un four porté à une température supérieure à 700°C. Les nanotubes se forment alors sur les plots de catalyseurs.

De nombreux paramètres (température, durée de traitement, composition du flux gazeux, débit des gaz, nature et composition du catalyseur...) jouent sur la nature NTC formés. Un des avantages de cette méthode est que les nanotubes se forment de façon continue. De plus, la technique de CCVD se distingue par rapport aux deux autres méthodes (dites à hautes températures) par de nombreux avantages, notamment un meilleur contrôle des conditions opératoires et des paramètres expérimentaux, une facilité de mise en œuvre et un faible coût. Cette technique est principalement utilisée pour la synthèse industrielle des NTC.

I.2 NANOFLUIDES A BASE DE NANOTUBES DE CARBONE (NTC) : METHODES DE SYNTHESES, COMPOSITION ET STABILITE

D'un point de vue thermique, les NTC mono-parois ou multi-parois en suspension dans un liquide de base, sont susceptibles d'apporter des gains en performances thermiques très importants grâce à leur conductivité thermique très élevée (tableau I.1). Plusieurs études expérimentales ont confirmé que l'amélioration de la conductivité thermique des nanofluides à base de nanotubes de carbone, sous certaines conditions, est beaucoup plus élevée par rapport aux nanofluides à base de nanoparticules métalliques ou d'oxydes [XIE/2003][LIU/2005][MAR/2011]. Ceci s'explique d'une part par la nature du carbone, mais aussi par la forme des nanoparticules, qui mises en suspensions se comportent comme des nano-ponts thermiques susceptibles de conduire rapidement l'énergie d'un point à l'autre (figure I.6) via le réseau constitué par les nanotubes, ce réseau étant lié à la concentration en nanotube et au nombre de nano-ponts.

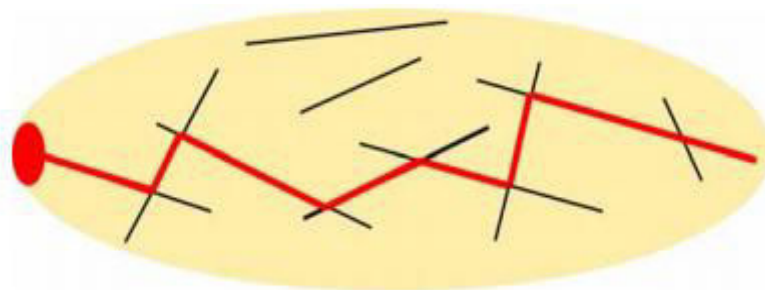


Fig. I. 6 Schéma de la création d'un réseau de ponts thermiques (trait rouge) crée par une dispersion de nano-fibres (trait noir) dans un fluide (Beige) qui permet la propagation d'un point chaud (ovale rouge) [GLA/2010]

I.2.1 Fabrication des nanofluides à base de NTC

D'une manière générale, la dispersion des nanoparticules dans un liquide de base peut être effectuée selon deux méthodes :

- La première méthode (à deux étapes), consiste à produire les nanoparticules sous forme de poudre, puis à les disperser dans le liquide de base dans une seconde étape de traitement.
- Dans la seconde (à une seule étape), la synthèse des nanoparticules se fait directement dans le liquide de base.

La méthode à deux étapes est la méthode la plus largement utilisée pour la préparation des nanofluides, notamment ceux à base de NTC [DAS/2008]. Elle présente des avantages économiques et permet de préparer en grande quantité les nanofluides en raison de la production industrielle élargie des nanoparticules.

Le comportement des NTC en dispersion est régi par deux types d'interaction : des interactions électrostatiques (attractives ou répulsives) entre les particules elles-mêmes, et des interactions hydrodynamiques entre les particules et le liquide de base. Certaines interactions s'opposent alors que d'autres s'accumulent. En outre, les NTC se distinguent par leur rapport d'aspect et leur surface spécifique élevés, ce qui se traduit par de fortes forces attractives de type Van Der Waals [PAR/2002] qui peuvent provoquer le regroupement et l'arrangement de particules en agrégats. La principale difficulté rencontrée alors avec ce type de nanofluides est de disperser d'une manière homogène dans le temps les NTC. D'autre part, les NTC sont hydrophobes et ont tendance à s'agglomérer et à sédimenter dans l'eau et dans certains liquides de base (figure I.7). La stabilité et la dispersion des nanofluides à base de NTC est une caractéristique clé qui influence sensiblement leurs propriétés.

Aussi, la mise en suspension des NTC est généralement accompagnée par des processus mécaniques et/ou chimiques, liés principalement à l'utilisation de surfactant, permettant respectivement d'homogénéiser la répartition des NTC dans le liquide de base et renforcer la stabilité de la suspension [CHE/2008] :

- Les techniques mécaniques consistent à appliquer une forte action mécanique à l'aide d'un agitateur rotatif ou à ultrasons, permettant de briser les agglomérats s'il y'en a et assurer la dispersion des particules dans la solution. Cependant, la durée et l'intensité du mélangeage mécanique peuvent avoir des effets négatifs sur les propriétés des NTC. Une agitation prolongée ou trop forte peut briser les NTC [GAR/2009]. Ainsi, il est important de maîtriser ces actions mécaniques afin d'assurer une bonne dispersion des NTC sans réduire et/ou modifier leurs structures et par conséquent leurs propriétés thermiques.

Les techniques chimiques permettent de limiter les agglomérats dus aux forces d'attraction entre les particules en ajoutant des agents tensioactifs (surfactants ou dispersants) qui modifient les propriétés surfaciques de ces particules. En effet, les molécules des agents tensioactifs sont adsorbées au niveau de la surface des NTC et forment une sorte de barrière

tentaculaire qui limite leur rapprochement à très courte distance et minimise les forces d'attraction de type Van Der Walls. Les agents tensioactifs peuvent être classés, selon leur charge, en quatre grande classe : les cationiques, les anioniques, les amphotères et les non ioniques [KHO/2008]. En ce qui concerne les NTC, les surfactants principalement utilisés sont : le Dodécylbenzènesulfonate de Sodium (SDBS) [WEN/2004][MAR/2011] [WUS/2013], le gomme arabique GA [DIN/2006][PAR/2012], le bromure d'hexadécyltriméthylammonium, bromure de cétrimonium (CTAB) [ASS/2005] ou le sodium dodécyl sulfate (SDS) [TUM/2009].

D'autres types de surfactants sont utilisés et sont détaillés dans les travaux de Vaisman et al. [VAI/2006] ou encore dans ceux de Wang [WAN/2009].

A la suite de leur fabrication, la stabilité des nanofluides et l'état de dispersion des nanotubes dans la suspension sont généralement étudiés. Les principales méthodes mises en œuvre dans ce domaine sont décrites ci-après.

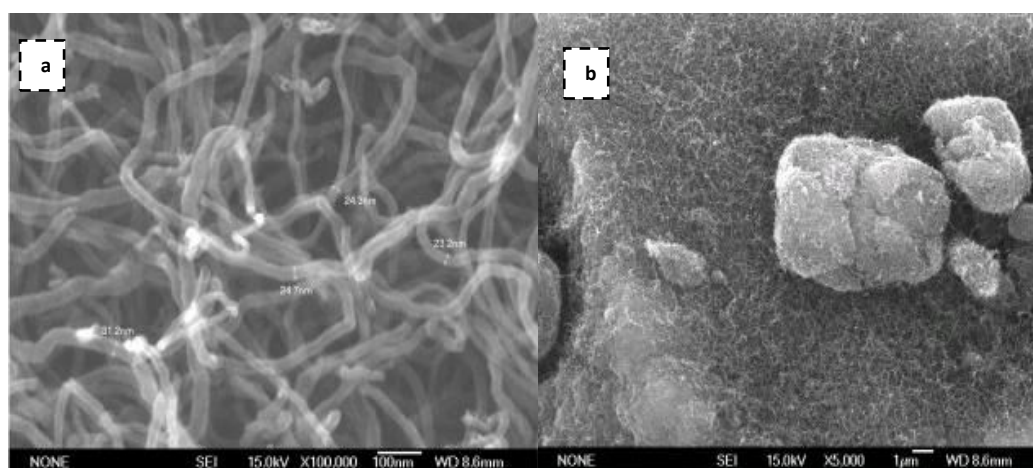


Fig. 1. 7 (a) NTC dispersés [LIU/2005]; (b) NTC agglomérés [ZHU/2003]

I.2.2 Techniques d'évaluation de la stabilité des nanofluides à base de NTC

Plusieurs techniques sont exploitées pour évaluer la stabilité et la dispersion des nanotubes de carbone au sein du liquide de base. Parmi celles les plus utilisées dans la littérature, on peut citer la méthode par sédimentation et centrifugation, l'analyse du potentiel Zeta, la spectrophotométrie UV-visible et la Microscopie Electronique à Transmission (MET) ou à balayage (MEB).

I.2.2.1 Procédés de sédimentation et centrifugation

Dans le procédé de sédimentation et centrifugation, la masse volumique et la taille des sédiments formés sous l'excitation d'une force extérieure peuvent être un bon indicateur de la stabilité du nanofluide [LIX/2007]. La variation de la concentration et de la taille des particules surnageantes est enregistrée en fonction du temps sous une excitation externe. Le nanofluide est considéré stable quand cette variation de la concentration/taille des nanoparticules reste constante au cours du temps. Cette méthode est très simple à mettre en

œuvre mais requiert une longue période d'observation en comparaison aux autres méthodes [WEI/2010].

1.2.2.2 Analyse du potentiel Zeta

Le potentiel Zêta constitue un élément important permettant de contrôler la dispersion électrostatique des NTC. Cette technique permet de mesurer, par conductivité électrique, les charges de surface ou le potentiel zêta des NTC au sein du liquide de base, et de déterminer ainsi l'importance des forces répulsives et attractives inter-particules. Le potentiel électrostatique exercé par la charge de surface varie progressivement au sein d'une zone appelée double couche électrique. Le modèle le plus couramment utilisé pour décrire la structure de la double couche électrique (modèle Gouy–Chapman–Stern–Grahame) [TEI/2009], suggère que cette réorganisation conduit à la formation de deux zones distinctes : la couche compacte (ou couche de Stern) et la couche diffuse (figure I.8). L'épaisseur de cette dernière varie notamment avec la force ionique de la solution et diminue lorsque la force ionique augmente.

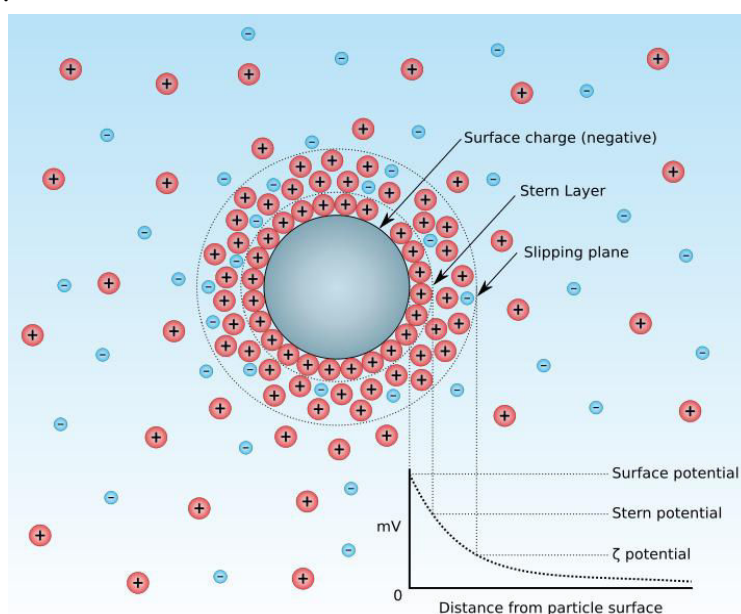


Fig. I. 8 Diagramme du potentiel Zêta [INT3]

Lorsque le potentiel au niveau de la surface des particules est inférieur à une valeur critique - 30mV ou supérieur à +30mV (figure I.9), les forces répulsives inter-particules sont prédominantes et la solution peut être considérée stable [TEI/2009].

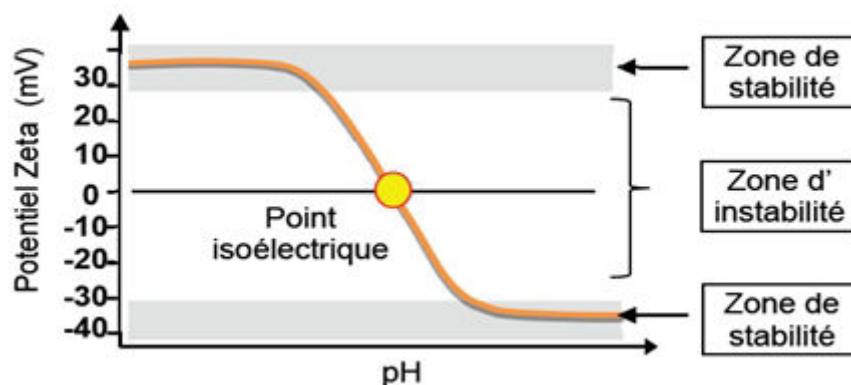


Fig. I. 9 Potentiel Zêta d'une solution [TEI/2009]

L'analyse du potentiel Zêta permet également d'obtenir une mesure granulométrique et ainsi une distribution moyenne de la taille des particules en suspension.

1.2.2.3 Absorbance UV-Visible spectrophotométrie

C'est une technique d'analyse quantitative qui consiste à mesurer l'absorbance d'un milieu en fonction de la longueur d'onde et d'en étudier l'évolution au cours du temps. Plus la solution est concentrée, plus l'intensité du rayonnement absorbé est importante dans la limite de la proportionnalité entre la concentration et l'absorbance annoncée par la loi de Beer-Lambert. Dans le cas des nanoparticules en suspension dans un liquide de base, la spectrophotométrie UV-visible est particulièrement intéressante pour indiquer l'état de dispersion des particules ainsi que la présence ou non des agglomérats en se basant sur l'intensité du faisceau absorbé ou transmis. En effet, la variation de la concentration et la taille des particules surnageantes dans le temps est détectée par la mesure de l'absorbance des suspensions [ETA/2009].

1.2.2.4 Microscopie Electronique à Transmission MET ou Electronique à balayage MEB

La microscopie Electronique à Transmission ou à Balayage permet d'observer des éléments à l'échelle atomique, plus particulièrement leurs tailles, leurs formes et leurs distributions. Les figures I.10 illustrent le schéma de principe de fonctionnement du MEB (a) et du MET (b). Ces procédés ne permettent pas de mesurer sous situation réelle des nanoparticules en suspension dans un liquide de base, car les mesures s'effectuent généralement sur des échantillons préalablement séchés. Néanmoins, ces techniques fournissent des informations pertinentes sur la structure des nanoparticules et du réseau qu'elles peuvent former, à l'image des figures I.1 et I.7. Elles permettent de contrôler la formation et la taille des agrégats au sein du nanofluide [WUD/2009].

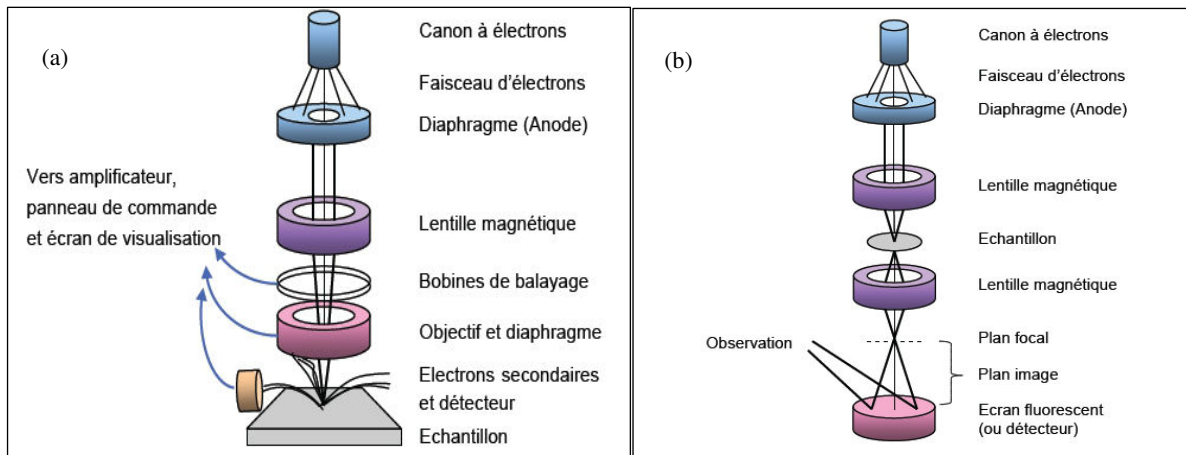


Fig. I. 10 Schéma de principe (a) MEB ; (b) MET [TEI/2009]

On notera finalement que l'efficacité de la spectrophotométrie UV-visible et de la Microscopie Electronique à Transmission (MET) ou à balayage (MEB) dépend de la transparence du milieu étudié. Dans le cas des nanofluides à base de NTC pour lesquels l'opacité augmente progressivement avec la fraction des NTC, il convient parfois de diluer ces suspensions pour pouvoir les étudier. Ceci peut conduire finalement, dans le cas des nanofluides à fortes fractions en NTC, à tester une solution qui n'est pas forcément représentative.

Après une description des nanofluides à base de NTC et des méthodes de caractérisation, on s'intéresse dans la suite de ce chapitre à l'analyse de l'état des connaissances des propriétés thermo-physiques et du comportement thermique de ces nanofluides dans les systèmes thermiques.

I.3 PROPRIETES THERMO PHYSIQUES DES NANOFLUIDES A BASE DE NTC : SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE

Un des objectifs de ce travail est la caractérisation expérimentale des propriétés thermo-physiques des nanofluides à base de NTC en vue de la détermination de leurs performances comme fluide caloporteur dans un échangeur de chaleur. Il paraît ainsi nécessaire de recenser et analyser les principales approches déjà élaborées et existantes dans la littérature tant sur le plan théorique qu'expérimental pour l'évaluation de la conductivité thermique, la viscosité dynamique, la masse volumique et la chaleur spécifique des nanofluides à base de NTC.

I.3.1 Conductivité thermique

La conductivité thermique, notée λ (W/m.K), est la capacité d'un matériau de conduire ou de transmettre de la chaleur. C'est une propriété très importante pour l'amélioration des performances thermiques d'un fluide caloporteur. La synthèse des nanofluides répond au besoin d'améliorer et d'amplifier la conductivité thermique des liquides. Aussi, de nombreux travaux ont été menés pour mesurer mais aussi prédire et expliquer cette amélioration.

1.3.1.1 Modèles théoriques

Il existe plusieurs modèles théoriques permettant d'estimer, sous certaines conditions, la conductivité thermique des suspensions. Nous présenterons dans cette partie les modèles les plus utilisés dans le cas des nanofluides.

a. Modèle de Maxwell

Maxwell fut le premier à dériver un modèle pour estimer la conductivité thermique d'une suspension contenant des particules [MAX/1881]

$$\frac{\lambda_{nf}}{\lambda_{fb}} = \frac{\lambda_{np} + 2\lambda_{fb} - 2\varphi_v(\lambda_{fb} - \lambda_{np})}{\lambda_{np} + 2\lambda_{fb} + 2\varphi_v(\lambda_{fb} - \lambda_{np})} \quad \text{Eq. I. 1}$$

Où λ_{nf} , λ_{fb} et λ_{np} représentent respectivement la conductivité thermique (W/m.K) du nanofluide, du fluide de base et des nanoparticules. φ_v représente la fraction volumique des nanoparticules. Le modèle de Maxwell est satisfaisant pour les suspensions contenant des particules sphériques de concentrations volumiques relativement faibles mais ne tient pas compte de l'effet de la taille ni de la forme des particules. Il est à noter aussi que l'effet des interactions inter-particules est négligé dans ce modèle.

b. Modèle de Bruggeman

Le modèle de Bruggeman (Eq. I.2) [BRU/1935] complète celui de Maxwell (Eq. I.1) pour des concentrations volumiques relativement élevées.

$$\varphi_v \left(\frac{\lambda_{np} - \lambda_{nf}}{\lambda_{np} + 2\lambda_{nf}} \right) + (1 - \varphi_v) \left(\frac{\lambda_{fb} - \lambda_{nf}}{\lambda_{fb} + 2\lambda_{nf}} \right) = 0 \quad \text{Eq. I. 2}$$

Ce modèle ne tient pas compte ni de la taille des particules ni leur forme.

c. Modèle de Hamilton & Crosser

Le modèle de Hamilton-Crosser [HAM/1962] est une extension du modèle de Maxwell, qui tient compte de la forme des particules. En effet, pour prendre en compte la non-sphéricité des particules (cas des NTC), ce modèle intègre un facteur géométrique appelé sphéricité, et noté Ψ , faisant référence à la géométrie sphérique. Ce coefficient est défini comme étant le rapport de l'aire d'une sphère de même volume que la particule sur l'aire de cette même particule.

$$\frac{\lambda_{nf}}{\lambda_{fb}} = \frac{\lambda_{np} + (n-1)\lambda_{fb} - (n-1)(\lambda_{fb} - \lambda_{np})\varphi_v}{\lambda_{np} + (n-1)\lambda_{fb} + (n-1)(\lambda_{fb} - \lambda_{np})\varphi_v} \quad \text{Eq. I. 3}$$

n est un facteur de forme empirique donné par : $n = \frac{3}{\Psi}$

Ce modèle peut être utilisé lorsque la conductivité thermique des particules est au moins 100 fois plus élevée que celle du fluide de base [HAM/1962].

d. Modèles tenant compte du mouvement brownien

Le mouvement brownien est une description mathématique des déplacements aléatoires des nanoparticules au sein du liquide de base. Ce mouvement est causé par les collisions avec les molécules du liquide de base qui se déplacent dans toutes les directions sous l'effet de l'excitation thermique. Les nanoparticules sont suffisamment petites pour être poussées par les chocs reçus et elles peuvent alors parcourir une certaine distance (très petite), avant de repartir dans une autre direction suite à de nouveaux chocs et ainsi de suite. Il en résulte un mouvement d'ensemble chaotique que l'on appelle le mouvement brownien.

Plusieurs modèles basés sur ce concept ont été élaborés afin de prédire l'évolution de la conductivité thermique des nanofluides. Ainsi, Koo et Kleinstreuer [KOO/2004] ont proposé un modèle dans lequel ils ont supposé que la conductivité thermique est composée de deux termes (Eq. I.4). Le premier, dit statique, est relatif au modèle de Maxwell (1881), et le deuxième est lié au mouvement brownien.

$$\lambda_{nf} = \lambda_{statique} + \lambda_{brownien} \quad \text{Eq. I. 4}$$

$$\lambda_{statique} = \lambda_{bf} \frac{\lambda_{np} + 2\lambda_{fb} - 2\varphi_v(\lambda_{fb} - \lambda_{np})}{\lambda_{np} + 2\lambda_{fb} + 2\varphi_v(\lambda_{fb} - \lambda_{np})} \lambda_{brownien} = \frac{\kappa_B T}{3\pi\mu_{fb}d_{np}}$$

κ_B la constante de Boltzmann, μ_{fb} (Pa.s) la viscosité dynamique du fluide de base et d_{np} (m) le diamètre de la nanoparticule

Il est à noter que pour les nanofluides à base de NTC, il existe très peu de modèles théoriques permettant d'estimer l'évolution de la conductivité thermique de ces nanofluides. Le modèle de Hamilton-Crosser (I.3) reste cependant le modèle le plus utilisé pour tenter de modéliser les résultats expérimentaux. Il apparaît néanmoins que ce modèle ne parvient pas à reproduire l'évolution de la conductivité thermique des nanofluides à base de NTC [XIE/2003] [YAN/2006], sous-estimant généralement les valeurs mesurées.

Yu et Choi [YUW/2003] ont proposé un modèle modifié plus complexe que le modèle de Hamilton-Crosser, qui tient compte de l'effet d'interface entre les particules et le fluide de base (équation I.5) mais qui n'est valable que pour les particules de forme sphérique.

$$\frac{\lambda_{nf}}{\lambda_{fb}} = \frac{\lambda_{np} + 2\lambda_{bf} - 2(\lambda_{fb} - \lambda_{np})(1 + \beta)^3 \varphi_v}{\lambda_{np} + 2\lambda_{fb} + 2(\lambda_{fb} - \lambda_{np})(1 + \beta)^3 \varphi_v} \quad \text{Eq. I. 5}$$

β est le rapport de l'épaisseur de la couche nanométrique sur le rayon des particules.

Récemment, Walvekar et al. [WAL/2012] ont proposé un modèle de conductivité thermique pour des nanofluides contenant des NTC qui tient compte de l'effet du diamètre, du rapport d'aspect des NTC ainsi que l'effet du mouvement brownien due à la température. Ce modèle, représenté par l'équation I.6, est le résultat d'une extension d'un modèle initialement introduit par [KUM/2004].

$$\lambda_{nf} = \lambda_{fb} \left[1 + \frac{\lambda_{np} \left(\frac{2\varphi_v (r_{np} + l_{np})}{r_{np} l_{np}} \right)}{\lambda_{fb} \left(\frac{3(1 - \varphi_v)}{r_{fb}} \right)} \right] + \frac{C \varphi_v (T - T_0)}{r_{np}^2 l_{np}^2 \mu_{fb}} \ln \left(\frac{l_{np}}{d_{np}} \right) \quad \text{Eq. I. 6}$$

Dans cette équation, r_{np} et l_{np} sont respectivement le rayon (m) et la longueur (m) des NTC.

r_{fb} le rayon moyen de la molécule du fluide de base (m).

La première partie du modèle est principalement liée à la forme, le rapport d'aspect des NTC et à la conductivité thermique des NTC et celle du fluide de base. La seconde partie de l'équation (I.6) représente la contribution du mouvement brownien des nanoparticules lié à la température et la viscosité du fluide de base. T_0 est prise égale à 273 K, ce qui correspond à la température de référence en dessous de laquelle le mouvement brownien devient négligeable. C est une constante qui dépend de la constante de Boltzmann [WAL/2012].

1.3.1.2 Résultats expérimentaux antérieurs

a. Techniques de mesure

Différentes méthodes de mesure de la conductivité thermique sont généralement employées, la méthode du fil chaud en régime transitoire (*Hot Wire method*) étant la plus couramment utilisée parmi les travaux recensés. A ce titre, elle sera utilisée dans ce travail et présentée dans le deuxième chapitre de ce mémoire. D'autres méthodes de mesure peuvent être utilisées, comme la méthode 3ω [OHD/2009], les méthodes stationnaires utilisant une différence de température entre deux plaques ou deux cylindres (cellule de Bénard) et les méthodes optiques basées sur la variation de l'indice de réfraction en fonction de la température [LEN/2009]. Les méthodes relatives aux mesures de la conductivité des nanofluides sont répertoriées de façon exhaustive dans la publication de Paul et al. [PAU/2010]. Le lecteur pourra librement s'y référer.

b. Revues bibliographiques

La conductivité thermique des nanofluides à base de NTC a fait l'objet de plusieurs études depuis les résultats expérimentaux de Choi et al. [CHO/1995] qui montrent une augmentation de la conductivité thermique pouvant atteindre jusqu'à 160% à faible concentration volumique (1%). Une augmentation significative de la conductivité thermique des nanofluides par rapport à celle prédite par les modèles classiques présentés ci-dessus a souvent été observée. Wang et al. [WAN/2007] ont compilé des résultats expérimentaux de la conductivité thermique de nanofluides à base de NTC issus de plusieurs équipes de recherche (figure I.11).

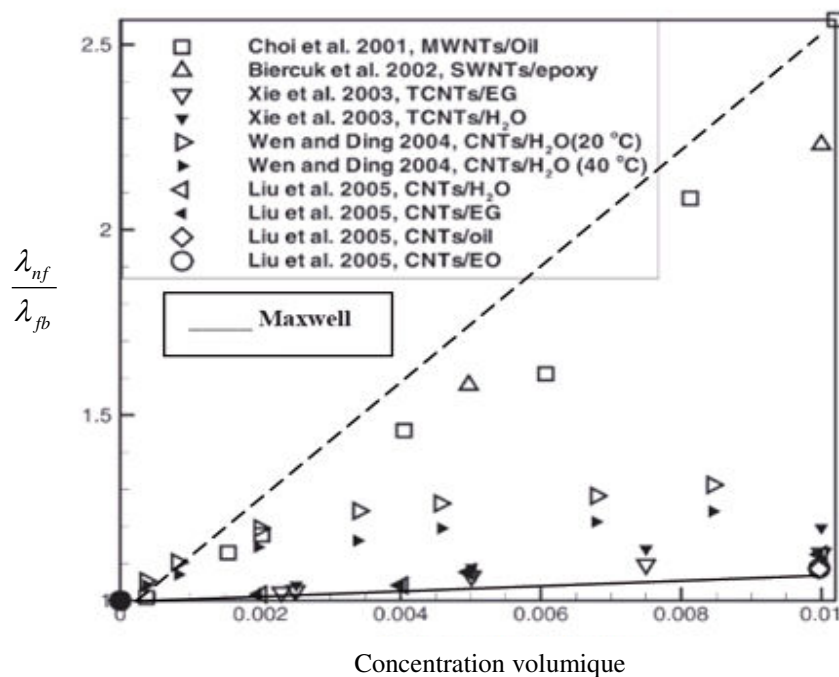


Fig. I. 11 Evolution de la conductivité thermique relative pour des suspensions à base de nanotubes de carbone d'après Wang et al [WAN/2007]

La figure I.11 représente l'évolution de la conductivité thermique relative de nanofluides à base de NTC en fonction de la concentration volumique. Les résultats de cette figure montrent une amélioration de la conductivité thermique des nanofluides par rapport aux fluides de base en fonction de la fraction volumique, mais également une grande dispersion des valeurs expérimentales de la conductivité thermique. Les résultats nous montrent aussi que le modèle de Maxwell représenté par un trait sur la figure I.11 ne permet pas de reproduire les points expérimentaux, les valeurs prédites par ce modèle sont très faibles.

Au-delà des aléas liés à la caractérisation expérimentale, (type d'essai, incertitude, ...) plusieurs facteurs peuvent influencer la conductivité thermique des nanofluides et être à l'origine des disparités constatées entre les résultats expérimentaux. Parmi ces facteurs, dont les effets sont discutés par la suite, on peut citer :

- L'ajout des NTC ou de la fraction volumique des NTC

-
- La température et la nature du fluide de base
 - Le rapport d'aspect et la structure des NTC
 - La présence de surfactant/additif et l'influence du mélangeage à ultrasons
 - La présence des agglomérats
 - ...

○ *Effet de la concentration volumique*

Comme le montre la figure précédente, la plupart des travaux expérimentaux publiés dans la littérature ont révélé que la conductivité thermique des nanofluides augmente d'une manière significative avec la concentration volumique des nanoparticules. Ainsi, Choi et al. [CHO/1995] ont observé une augmentation non linéaire de la conductivité thermique avec la concentration volumique d'un nanofluide à base de MWCNT dispersés dans de l'huile. D'après leurs résultats, l'évolution non linéaire de la conductivité thermique peut être due à la taille, la forme ou l'interface entre les NTC et le fluide de base. Contrairement aux résultats de Choi et al. [CHO/1995], les résultats de Liu et al [LIU/2005] montrent une augmentation modérée de la conductivité thermique en fonction de la concentration volumique (12.4% pour MWCNT/EG à 1% volumique et 30% pour MWCNT/huile à 2% volumique), pour des nanofluides à base de MWCNT dispersés dans de l'huile et dans de l'éthylène glycol (EG). Xie et al. [XIE/2003] et Xie et Chen [XIE/2009] ont mesuré expérimentalement la conductivité d'un nanofluide à base de MWCNT dispersés dans de l'éthylène-glycol pour des concentrations volumiques de 0.2%, 0.6% et 1 %. Leurs résultats montrent une amélioration de la conductivité thermique maximale de l'ordre de 12% à la fraction volumique 1%. Ces résultats sont en accord avec ceux de Liu et al. [LIU/2005]. Ding et al. [DIN/2006] ont présenté une amélioration maximale de la conductivité thermique pour un nanofluide MWCNT/eau à 1% volumique d'environ 79%. Ruan et Jacobi [RUA/2012] ont montré que même à très faibles concentrations volumiques, entre 0.05% et 0.24%, l'ajout des MWCNT conduit à une augmentation de la conductivité thermique de 7.5% (0.05% volumique) à 8.4% (0.24% volumique) pour le nanofluide MWCNT/eau étudié. Leurs résultats montrent aussi que l'ajout d'un surfactant (ici de la gomme arabique, GA) contribue à cette augmentation de la conductivité thermique.

○ *Effet de la température*

Dans la grande majorité des travaux existants, il est établi que la conductivité thermique des nanofluides augmente avec la température [HAL1/2013], que ce soit pour les nanofluides à base de CNT ou contenant d'autres types de nanoparticules. Ding et al. [DIN/2006] ont ainsi trouvé pour une solution aqueuse de MWCNT, stabilisée par de la gomme arabique (GA) comme surfactant, que l'amélioration de la conductivité thermique varie significativement avec la température. D'après leurs résultats, l'augmentation de la conductivité thermique est de l'ordre de 15% à 20°C, 30% à 25°C et peut atteindre jusqu'à 79% à 40°C à une fraction massique de 1% (figure I.12). Pour le même type de nanofluide, Indhuja et al. [IND/2013] ont montré que la conductivité thermique relative croît avec la température dans une gamme de

28 à 60°C, et que le taux d'amélioration de la conductivité thermique augmente significativement pour des températures supérieures à 45°C.

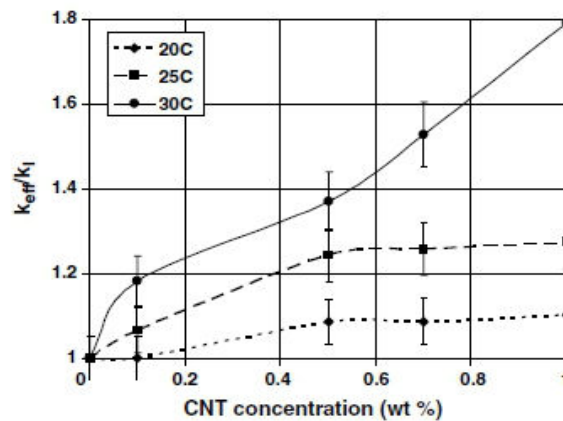


Fig. I. 12 Evolution de la conductivité thermique relative avec la concentration massique [DIN/2006]

Meng et al. [MEN/2012] ont montré que la conductivité thermique des nanofluides à base de NTC augmente avec la température, tandis que la conductivité thermique relative ou l'amélioration de la conductivité thermique reste indépendante de la température. Leur étude est menée entre 15 et 55°C. Ces résultats rejoignent ceux établis par Yu et al. [YUW/2003] et Chen et al. [CHE/2008]. Nassiri et al. [NAS/2012] ont montré que pour des températures comprises entre 15 et 40°C, l'évolution du taux d'amélioration de la conductivité thermique de nanofluides à base de SWCNT, MWCNT ou encore de DWCNT dispersés dans de l'eau croît linéairement avec la température.

○ Effet du rapport d'aspect et la structure des NTC

Le rapport d'aspect (rapport de la longueur moyenne sur le diamètre moyen) et la structure peuvent aussi influencer sensiblement la conductivité thermique des nanofluides à base de NTC [ZHO/2006][GAO/2007]. D'après les résultats de Yang et al. [YAN/2006], pour une suspension contenant des NTC dispersés dans de l'huile à une concentration volumique de 0.35%, l'augmentation de la conductivité thermique en fonction du rapport d'aspect varie de 20 à 200% (figure I.13). Plus le rapport d'aspect est grand, plus l'amélioration de la conductivité thermique est remarquable. Des résultats similaires sur des nanofluides composés de MWCNT et de DWCNT dispersés dans de l'eau ont été présentés par Assael et al. [ASS/2005].

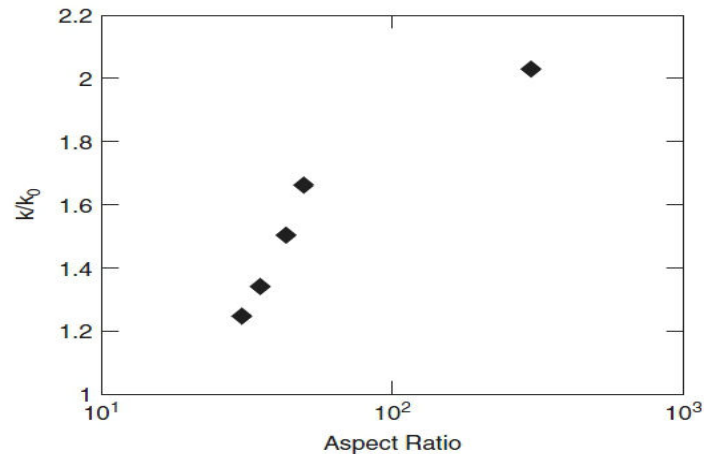


Fig. I. 13 Amélioration de la conductivité thermique relative en fonction du rapport d'aspect [YAN/2006]

Jiang et al. [JIA/2009] ont observé une augmentation de la conductivité thermique d'un nano-réfrigérant contenant des NTC en concentration volumique de 1% de l'ordre de 43, 50 et 104% pour des rapports d'aspect égaux respectivement à 18, 125 et 666. Nassiri et al. [NAS/2012] ont étudié l'effet de la structure des nanotubes de carbone (SWCNT, DWCNT, MWCNT) sur la conductivité thermique de nanofluides à base de NTC dispersés dans de l'eau. Leurs résultats montrent que la conductivité thermique des nanofluides étudiés diminue, quand le nombre de paroi ou couche des NTC augmente. Ainsi, les suspensions à base de SWCNT présentent une meilleure conductivité thermique par rapport aux autres structures.

○ Effet des méthodes de stabilisation (chimiques et mécaniques)

Comme nous l'avons évoqué précédemment, la préparation de suspensions stables à base de NTC requiert généralement l'utilisation de méthodes chimiques (ajout des surfactant ou des groupes fonctionnels hybrides) et/ou physiques (mélangeage à ultrasons). Ces processus peuvent influencer la conductivité thermique des nanofluides, et conduire à une disparité des résultats expérimentaux reportés dans la littérature.

Les molécules de surfactant sont adsorbées au niveau de la surface des NTC, ce qui peut augmenter la résistance thermique entre les NTC et le fluide de base et limite ainsi l'amélioration de la conductivité thermique du nanofluide [CHE1/2010] [CHE2/2010]. Ces résultats ne sont pas en accord avec les conclusions de Ruan et Jacobi [RUA/2012] et ceux d'Asseal et al. [ASS/2005]. En effet, Ruan et Jacobi [RUA/2012] ont trouvé que l'ajout du surfactant GA (*Gum Arabic*) contribue à l'amélioration de la conductivité thermique du nanofluide MWCNT/eau étudié. Asseal et al. [ASS/2005] ont étudié l'effet de deux surfactants CTAB (*Hexadecyltrimethyl Ammonium Bromide*) et un autre surfactant commercial AQ (inconnu) sur la conductivité thermique de nanofluides MWCNT/eau et DWCNT/eau pour une gamme de concentrations volumique qui varie entre 0.1 et 0.6%. D'après leurs résultats, l'ajout des surfactants étudiés (à différentes concentrations) a un effet négligeable sur l'amélioration de la conductivité thermique.

Une étude expérimentale récente de Wusiman et al. [WUS/2013] montre que l'utilisation du surfactant SDBS (Sodium Dodecyl Benzene Sulfonate) peut avoir un effet plutôt négatif sur la conductivité thermique. L'ajout d'une faible fraction massique de l'ordre de 0.25% en surfactant SDBS à une solution aqueuse conduit à une dégradation de la conductivité thermique de l'ordre de 6.4% (figure I.14) ce qui pénalise ainsi l'addition des MWCNT en concentration massique de 0,5%.

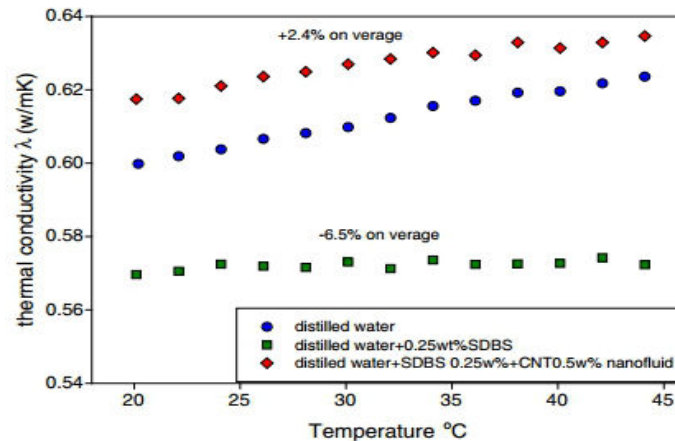


Fig. I. 14 Evolution de la conductivité thermique en fonction de la température [WUS/2013]

Talaei et al. [TAL/2011] ont observé que la fonctionnalisation des MWCNT par traitement acide COOH peut procurer une amélioration de la conductivité thermique à condition que les surfaces des particules ne soient pas endommagées lors du processus de stabilisation. Amrollahi et al. [AMR/2008] ont montré que la conductivité thermique d'un nanofluid à base de NTC dispersés dans de l'éthylène glycol augmente avec le temps de mélangeage à ultrasons. Paritosh et al. [PAR/2009] ont étudié expérimentalement l'effet de l'agitation mécanique à ultrasons sur les performances thermiques d'un nanofluid NTC/eau. Ils ont trouvé qu'il existe une durée optimale de mélangeage au-delà de laquelle le rapport d'aspect diminue, impliquant la diminution de la conductivité thermique du nanofluid. Ces résultats rejoignent les observations d'Asseal et al. [ASS/2006] pour des suspensions de NTC dispersés dans de l'éthylène glycol.

○ Effet du fluide de base

En plus des facteurs évoqués ci-dessus (concentration volumique des particules, température, stabilité, surfactant), les propriétés thermophysiques du fluide de base peuvent aussi influencer l'amélioration de la conductivité thermique des nanofluides. Cependant, cet effet est relativement moins étudié. Les études effectuées à ce sujet ont révélé qu'une faible conductivité thermique du fluide de base se traduit généralement par une augmentation de la conductivité relative (conductivité du nanofluid par rapport à celle du fluide de base) [JOH/2012]. Chen et al. [CHE/2008] ont observé une amélioration de la conductivité thermique pour des NTC, de fraction volumique 1%, de l'ordre de 17.5% dans l'éthylène glycol, de 16% dans le glycérol et de 12% dans l'eau. Liu et al. [LIU/2005] ont présenté une augmentation de la conductivité thermique beaucoup plus importante dans l'huile synthétique par rapport à l'éthylène glycol. Xie et al. [XIE/2003] ont obtenu une augmentation de la

conductivité thermique des MWCNT de l'ordre de 19.6% dans le polydécène, de 12.7% dans l'éthylène glycol et de 7% dans l'eau pour la même concentration volumique en MWCNT.

○ *Effet de la présence des agglomérats*

Comme expliqué précédemment, la stabilité et la dispersion des nanofluides influencent sensiblement leurs propriétés thermophysiques. La présence des agglomérats ainsi que les problèmes de sédimentation des nanoparticules engendrent généralement une dégradation de la conductivité thermique des nanofluides [JAN/2007] [KIM/2010]. Nassiri et al. [NAS/2011] ont observé une baisse de la conductivité thermique avec le temps due à la formation des agrégats. Jana et al. [JAN/2007] ont présenté une dégradation de la conductivité thermique d'une suspension à base de NTC avec le temps. D'après leurs résultats, cette dégradation est essentiellement due à une diminution de la concentration des NTC surnageants (sédimentation) détectée en fonction du temps.

I.3.2 Viscosité dynamique des nanofluides

La viscosité caractérise l'aptitude d'un fluide à s'écouler. Sa connaissance est fondamentale pour toutes les applications impliquant le transport de fluides. L'ajout des nanoparticules permet d'augmenter et d'améliorer la conductivité thermique du nanofluide mais cela peut aussi conduire à une augmentation défavorable de la viscosité dynamique. Ainsi, ces deux propriétés sont étroitement corrélées, et doivent être maîtrisées en vue d'une exploitation de ce type de fluides dans des échangeurs.

De nombreuses études théoriques et expérimentales ont été menées afin d'estimer ou de mesurer la viscosité dynamique des nanofluides et de quantifier l'importance des principaux paramètres qui l'influencent [NGY/2008][ALA/2012] [EST/2013].

Plusieurs modèles théoriques ont été développés pour prédire l'évolution de la viscosité dynamique des suspensions sous certaines conditions. Dans cette partie, nous nous intéresserons aux modèles les plus utilisés dans le cas des nanofluides. Le lecteur pourra se référer aux travaux suivants [LIY/2009][MAH/2012], dans lesquels sont répertoriés un plus grand nombre de modèles, souvent empiriques, et dont l'utilisation reste souvent applicable pour des cas particuliers (nature des nanoparticules, diamètre, gamme de température, ...).

I.3.2.1 Modèles théoriques

D'une manière générale, les formules existantes dérivent du travail fondamental d'Einstein (1906). Basé sur l'hypothèse que l'énergie a une dépendance linéaire avec la viscosité, Einstein a déterminé l'énergie dissipée autour d'une seule particule dans un fluide en associant son énergie au travail réalisé pour la faire avancer relativement au fluide. A partir de ce résultat, il a déterminé l'expression décrivant une dépendance linéaire de la viscosité des suspensions dans un fluide avec la concentration [EIN/1906] :

$$\mu_{nf} = \mu_{fb}(1 + 2.5\phi_v) \quad \text{Eq. I. 7}$$

La formule d'Einstein a depuis été vérifiée expérimentalement et est considérée satisfaisante pour des suspensions très diluées de particules sphériques (browniennes ou non browniennes), typiquement pour des concentrations volumiques inférieures à 1%. Il est à noter que ce modèle ne tient pas compte des effets de la taille des particules et des interactions inter-particules.

La formule de Brinkman [BRI/1952] complète le modèle d'Einstein jusqu'à une concentration volumique inférieure à 4% (Eq. I.8).

$$\mu_{nf} = \mu_{fb} \frac{1}{(1 - \varphi_v)^{2.5}} \quad \text{Eq. I. 8}$$

Cette relation décrit une évolution non linéaire de la viscosité dynamique avec la concentration volumique mais ne tient pas compte de la collision entre les particules. En effet, l'écoulement autour de chaque particule est influencé par la présence éventuelle d'autres particules à proximité et par les collisions entre particules. Ainsi, cela se traduit par la prise en compte d'un terme φ_v^2 dans le modèle de Batchelor [BAT/1977].

$$\mu_{nf} = \mu_{fb} (1 + \eta \varphi_v + k_H \varphi_v^2 + \dots) \quad \text{Eq. I. 9}$$

Où η est la viscosité intrinsèque et k_H est le coefficient de Huggins. La valeur de η et k_H est de 2.5 et 6.5 respectivement pour des particules sphériques.

Graham (1981) a proposé une formule généralisée (Eq.I.10) qui tend vers le modèle d'Einstein pour des concentrations volumiques très faibles :

$$\mu_{nf} = \mu_{fb} (1 + 2.5\varphi_v + 4.5\varphi_v^2) \left[\frac{1}{\left(\frac{h}{d_{np}} \right) \left(2 + \frac{h}{d_{np}} \right) \left(1 + \frac{h}{d_{np}} \right)^2} \right] \quad \text{Eq. I. 10}$$

Où d_{np} et h sont respectivement le rayon de la particule (m) et la distance entre les particules (m).

Pour des fractions volumiques plus élevées, Krieger et Dougherty [KRI/1956 (Eq.I.11)] ont développé un modèle basé sur le taux maximal de compactage (ou la concentration maximale de particules dans une suspension) qui consiste à calculer la viscosité dynamique d'une suspension en supposant qu'on ajoute successivement les particules dans un fluide de base considéré homogène. Chaque particule voit autour d'elle un fluide homogène dont la viscosité ne dépend que de la concentration volumique des particules et de la viscosité du fluide interstitiel. Ce modèle est efficace pour estimer la viscosité dynamique des nanofluides sans présence des agglomérats [HAL/2013]. Au premier et second ordre, il correspond respectivement aux modèles d'Einstein et de Batchelor.

$$\mu_{nf} = \mu_{fb} \left(1 - \frac{\varphi_v}{\varphi_M} \right)^{-\eta \varphi_M} \quad \text{Eq. I. 11}$$

η est le coefficient d'Einstein, i.e. $\eta=2.5$ et $\varphi_M \approx 0.64$ dans le cas de particules sphériques.

D'une manière générale, le modèle de Krieger-Dougherty dérive d'une formule généralisée de l'évolution de la viscosité relative qui dépend de la fraction volumique $\frac{\varphi_v}{\varphi_M}$ et d'un exposant négatif n (Eq.I.12).

$$\mu_{nf} = \mu_{fb} \left(1 - \frac{\varphi_v}{\varphi_M} \right)^n \quad \text{Eq. I. 12}$$

Différentes valeurs de n ont été proposées dans la littérature, de -1 à -4 , selon les auteurs [BOY/2011]. L'exposant $n = -2$ (Eq.I-13), proposé initialement par Maron & Pierce (1956) et basé sur le modèle théorique d'écoulement de Ree-Eyring [MAR//1956][CRO/1975] est le plus couramment rapporté.

$$\mu_{nf} = \mu_{fb} \left(1 - \frac{\varphi_v}{\varphi_M} \right)^{-2} \quad \text{Eq. I. 13}$$

Le modèle de Brenner et Condiff [BRE/1974] (Eq. I.14) intègre l'effet de la forme des nanoparticules et il peut éventuellement être appliqué pour des suspensions à base de NTC. Son domaine d'application est limité à la fraction volumique égale à $1/r_a^2$ (r_a est le rapport d'aspect des NTC) et à des régimes d'écoulement à fort taux de cisaillement.

$$\mu_{nf} = \mu_{fb} (1 + \eta \varphi_v) \quad \text{Eq. I. 14}$$

$$\text{Avec } \eta = \frac{0.312 r_a}{\ln 2 r_a - 1.5} + 2 - \frac{0.5}{\ln 2 r_a - 1.5} - \frac{1.872}{r_a} \quad \text{Eq. I. 15}$$

Les résultats publiés à ce jour, concernant les suspensions de nanoparticules de géométrie sphérique ou non sphérique démontrent, à l'image des travaux de Ngyuen et al. [NGY/2008] par exemple, que les modèles précédents sont souvent insuffisants pour expliquer les fortes augmentations de la viscosité des nanofluides avec la concentration en nanoparticules, et ceci pour des solutions diluées ou plus concentrées. De plus, la différence des résultats expérimentaux et théoriques augmentent avec la concentration des suspensions. Cette disparité peut s'expliquer par la présence des agrégats. En effet, l'agrégation est l'union de particules en suspension qui en forment alors de plus grosses (figure I.15). Ceci provoque une variation de la taille et de la concentration effective des nanoparticules.

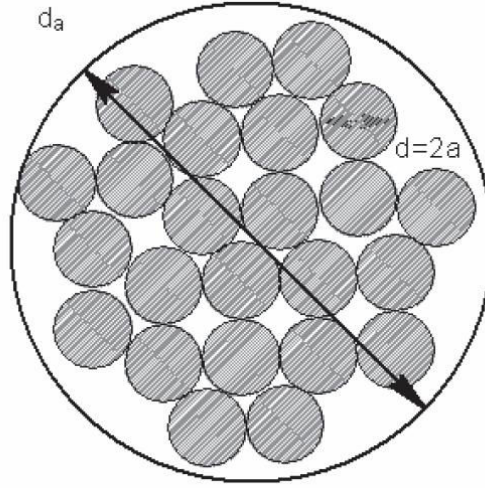


Fig. I. 15 Agrégation de particules [CHV/2008]

Pour tenir compte de la présence des agrégats, certains chercheurs proposent alors de remplacer la concentration volumique réelle φ par une concentration effective ou d'agrégats $\varphi_a > \varphi$ en introduisant la notion de dimension fractale [WOL/1996]. L'introduction de la notion de dimension fractale a permis de développer des modèles décrivant les phénomènes d'aggrégation. En effet, les agrégats sont des amas dont la structure fractale obéit à la loi suivante (équation I.16)

$$\varphi_a = \varphi \left(\frac{d_a}{d} \right)^{3-D} \quad \text{Eq. I. 16}$$

d et d_a représentent respectivement le diamètre moyen des particules et le diamètre des agrégats (m). D est l'indice fractal.

En tenant compte des agrégats, la viscosité relative des suspensions s'exprime alors selon le modèle de Krieger-Dougherty modifié comme suit [KOL/2011] :

$$\mu_r = \left(1 - \frac{\varphi_a}{\varphi_M} \right)^{-\eta \varphi_M} \quad \text{Eq. I. 17}$$

Par conséquent, le modèle de Maron et Pierce modifié devient [CHE1/2009]:

$$\mu_r = \left(1 - \frac{\varphi_a}{\varphi_M} \right)^{-2} \quad \text{Eq. I. 18}$$

L'indice fractal D dépend du type, de la taille des particules aggrégées et de l'état de cisaillement. Il est généralement compris entre 1.5 et 2.5. Pour des suspensions de particules en forme de nanotube, l'index fractal D varie entre 1.5 et 2.45 [CHE2/2009]. Mohraz et al. [MOH/2004] ont montré que l'indice fractal dépend du rapport d'aspect pour les nanotubes. Dans leurs analyse, D augmente de 1.8 à 2.3 pour un rapport d'aspect allant de 1 à 30.6 respectivement.

1.3.2.2 Résultats expérimentaux antérieurs

a. Techniques de mesure

A l'aide de rhéomètres ou viscosimètres, on peut générer des écoulements qui permettent, à partir de considérations géométriques et d'hypothèses sur l'écoulement, de relier les paramètres macroscopiques (couple, vitesse de rotation, débit, différence de pression...) aux paramètres régissant les lois de comportement précédemment décrites dans l'annexe A-1 (contrainte de cisaillement, et taux de cisaillement). Les techniques couramment utilisées pour évaluer ces paramètres sont

- Rhéomètre capillaires : dont le principe est basé sur l'écoulement dans une conduite cylindrique.
- Rhéomètre rotatif : le fluide est cisailé dans ce cas entre deux cylindres coaxiaux, entre deux plans circulaires ou entre un plan circulaire et un cône. Notons que c'est ce type de géométrie qui sera utilisée dans ce travail comme nous le détaillerons au chapitre 2.

b. Etat de l'art

Les études expérimentales effectuées sur le comportement rhéologique et la viscosité dynamique des nanofluides, à base de NTC, sont plus limitées par rapport à celles relatives à la conductivité thermique de ces mêmes suspensions. En outre, la plupart des travaux effectués sur la viscosité dynamique concernent les nanofluides à base de nanoparticules sphériques. Comme pour la conductivité thermique, plusieurs facteurs peuvent influencer le comportement rhéologique et la viscosité dynamique des nanofluides. Parmi ces facteurs, on citera :

- La concentration volumique
- La température
- Les méthodes de stabilisation (chimiques et mécaniques)
- La vitesse/contrainte de cisaillement
- Le fluide de base

Plusieurs travaux expérimentaux ont été menés afin d'étudier l'impact de ces facteurs sur le comportement rhéologique et la viscosité dynamique des nanofluides à base de NTC. Les principaux résultats sont décrits ci-après.

○ Effet de la concentration volumique

Les travaux de recherche concernant l'effet de la concentration volumique sur la viscosité dynamique des nanofluides à base de NTC montrent que la viscosité dynamique augmente avec la concentration volumique. Phuoc et al. [PHU/2011] ont observé que la viscosité dynamique augmente avec la concentration du nanofluide MWCNT/eau pour des fractions massiques comprises entre 0.5% et 3%. D'après leurs résultats, le comportement rhéologique du MWCNT/eau est newtonien à faibles concentrations (0.5%) et devient rhéofluidifiant pour des concentrations supérieures. Des résultats similaires ont été observés par Kinloch et al. [KIN/2002]. Ding et al. [DIN/2006] ont montré expérimentalement que pour des concentrations massiques de 0.1% et 0.5% de MWCNT/eau, le comportement rhéologique du nanofluide est rhéofluidifiant à faibles taux de cisaillement et devient newtonien pour des taux de cisaillement élevés (figure I.16).

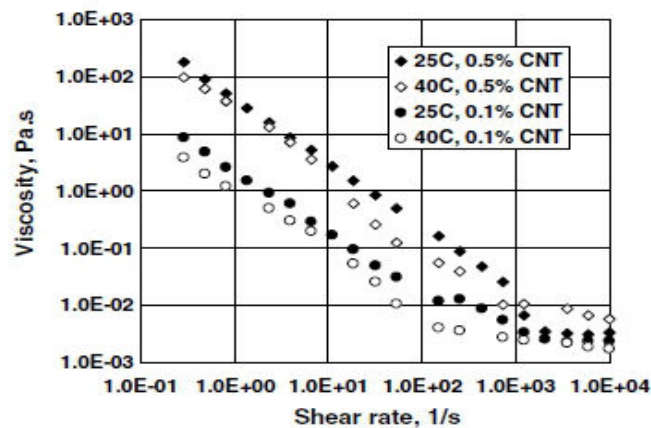


Fig. I. 16 Evolution de la viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement [DIN/2006]

Chen et al. [CHE/2008] ont montré que pour des suspensions à base de NTC, la viscosité dynamique du nanofluide n'augmente qu'au delà d'une concentration massique typique de l'ordre de 0.4%, et que la viscosité du nanofluide est plus faible que celle du fluide de base en raison de l'effet de lubrification. Wang et al. [WAN/2013] ont montré que l'ajout d'une fraction volumique de 1.27% de MWCNT se traduit par une augmentation de la viscosité dynamique du nanofluide de l'ordre de cinq fois par rapport au fluide de base. Indhuja et al. [IND/2013] ont présenté une évolution linéaire de la viscosité dynamique avec la fraction volumique d'une solution aqueuse de MWCNT pour une gamme de concentration volumique de variant de 0.05 à 0.24%.

○ Effet de la température

De nombreux travaux ont montré que la viscosité dynamique des nanofluides diminue quand la température augmente [CHE/2008][ANO/2009][MUR/2008]. Aladag et al. [ALA/2012] ont étudié le comportement rhéologique d'un nanofluide MWCNT/eau à basses températures (de 2 à 10°C) et ils ont observé que la viscosité dynamique du nanofluide diminue quand la température augmente et que le comportement rhéologique du nanofluide à ces températures

est rhéofluidifiant à faibles vitesses de cisaillement et devient newtonien pour des vitesses de cisaillement supérieures à 100s^{-1} . Gholarmeza et Donany [GHO/2012] ont étudié expérimentalement l'effet de la température (de 25°C à 100°C) sur un nanofluide à base de SWCNT dispersés dans de l'huile sans présence de surfactant. D'après leurs résultats, la viscosité dynamique du nanofluide dépend fortement de la température. Autrement dit, quand la température croît, la viscosité dynamique du nanofluide décroît sensiblement. Les résultats d'Indhuja et al. [IND/2013] montrent que l'effet de la température sur la viscosité dynamique d'une solution aqueuse de MWCNT est significatif à faibles concentrations. Quand la concentration des particules augmente, l'influence de la température sur la viscosité dynamique devient moins prononcée. Cependant, Nguyen et al. [NGY/2008] ont observé qu'il existe une température critique à partir de laquelle l'évolution de la viscosité dynamique en fonction de la température est inversée. Meng et al. [MEN/2012] ont confirmé ce résultats sur un nanofluide à base de NTC dispersés dans de l'éthylène glycol à la concentration 4%. Ils ont montré que la viscosité dynamique diminue quand la température augmente de 15 à 50°C et que la viscosité dynamique à 55°C est supérieure à celle à 50°C . Chen et al. [CHE/2008] ont trouvé que la température n'a d'effet significatif sur la viscosité relative qu'à des températures supérieures à 55°C .

○ *Effet des méthodes de stabilisation (chimiques et mécaniques)*

Les processus mis en œuvre lors de la préparation de suspensions stables et bien dispersées de NTC peuvent aussi avoir un impact sur le comportement rhéologique et l'évolution de la viscosité dynamique des suspensions. Plusieurs études ont montré que l'ajout de surfactant engendre généralement une augmentation de la viscosité dynamique [KIM/2010]. Ko et al. [KOG/2007] ont comparé la viscosité dynamique de deux nanofluides à base de MWCNT dispersés dans de l'eau. Le premier est stabilisé par l'ajout d'une faible quantité de SDS (*Sodium dodecyl sulfate*) et le second nanofluide est stabilisé par la fonctionnalisation des MWCNT par traitement acide. La viscosité dynamique du premier nanofluide apparaît ainsi légèrement supérieure à celle du second.

Ruan et Jacobi [RUA/2012] ont montré que l'ajout d'une faible quantité de gomme arabique (GA) de concentration 0.18% se traduit par une augmentation de la viscosité dynamique d'environ 25.4%. Ding et al. [DIN/2006] ont observé que la gomme arabique utilisée dans leur étude n'a d'effet significatif qu'à fort taux de cisaillement. Ces résultats ne sont pas en accord avec ceux de Chen et Xie [CHE2/2009]. En effet, ces auteurs [CHE2/2009] ont observé une forte diminution de la viscosité dynamique d'un nanofluide composé de MWCNT dispersés dans de l'huile de silicone du fait de l'ajout d'Héxaméthylidisiloxane (HMDS) comme surfactant notamment à faibles températures (figure I.17)

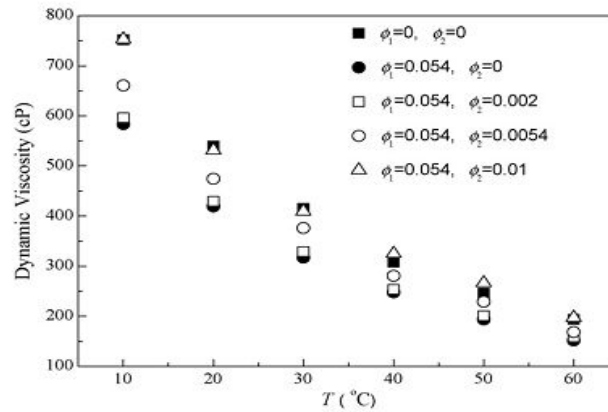


Fig. I. 17 Evolution de la viscosité dynamique avec la température, ϕ_1 concentration de HMDS et ϕ_2 concentration de MWCNT [CHE2/2009]

Garg et al. [GAR/2009] ont montré que l'augmentation du temps de mélangeage à ultrasons permet de briser les agglomérats, voire réduire les rapports d'aspect des NTC, ce qui engendre un comportement rhéofluidifiant du nanofluide moins prononcé. Yang et al. [YAN/2006] ont également étudié l'effet du temps de mélangeage à ultrasons sur la taille des agglomérats et le rapport d'aspect des NTC dispersés dans l'huile. Ils ont observé une diminution de la taille des agglomérats et une réduction du rapport d'aspect des NTC avec l'énergie de dispersion et le temps de mélangeage à ultrasons, ce qui entraîne une diminution de la viscosité dynamique du nanofluide.

○ Effet de la vitesse de cisaillement

Le comportement rhéologique des nanofluides peut également dépendre de la vitesse de cisaillement. Bien qu'un comportement newtonien soit généralement constaté à fortes vitesses de cisaillement, la viscosité des suspensions à base de NTC tend à diminuer lorsque le taux de cisaillement augmente (caractère rhéofluidifiant) notamment à fortes concentrations [KIN/2002] [DIN/2004][ALA/2012][WAN/2013]. Ainsi, Wang et al. [Wan/2013] ont observé un comportement rhéofluidifiant d'un nanofluide à base de MWCNT dispersés dans l'eau, pour des concentrations volumiques de 0.05 à 1.27%, à très faibles vitesses de cisaillement (inférieures à $10s^{-1}$) et newtonien pour des vitesses de cisaillement supérieures à $10s^{-1}$. Des résultats similaires ont été observés pour une suspension à base de MWCNT dispersés dans de l'éthylène glycol à des concentrations volumiques de 0.03 à 0.18% [RUA/2012]. Ces résultats montrent que le nanofluide MWCNT/éthylène glycol est rhéofluidifiant à des vitesses de cisaillement inférieures à $100s^{-1}$. Le comportement rhéofluidifiant observé s'explique par l'alignement de la structure dans la direction du cisaillement, ce qui se traduit par une diminution de la viscosité dynamique en fonction de la force de cisaillement appliquée [CHE/2013]. D'autres études expérimentales ont montré un comportement newtonien même à très faibles vitesses de cisaillement [CHE2/2009][PAK/2012]. Chen et Xie, [CHE2/2009] ont observé un comportement newtonien des MWCNT dispersés dans l'huile de silicone à faibles vitesses de cisaillement

(inférieures à 10s^{-1}) pour des températures de 10 à 60°C . D'après leurs résultats, le comportement newtonien est dû à la viscosité dynamique élevée du fluide de base.

D'autres effets peuvent aussi influencer la viscosité dynamique et le comportement rhéologique des nanofluides à base de NTC, comme par exemple la présence des agglomérats [CHE/2013], le comportement thixotrope de certains nanofluides [ALA/2012], les méthodes de synthèse des NTC. D'un point de vue général, on relève une disparité importante entre les résultats expérimentaux, mais aussi théoriques. Il est donc difficile de comparer les différentes études et d'établir un modèle physique de référence d'évaluation de la viscosité dynamique des suspensions à base de NTC permettant de tenir compte de l'ensemble des effets précédemment décrits.

I.3.3 Chaleur spécifique

La conductivité thermique et la viscosité dynamique sont les deux propriétés thermophysiques les plus étudiées dans le cas des nanofluides. La chaleur spécifique des nanofluides, quant à elle, est très rarement étudiée, notamment sur le plan expérimental.

La chaleur spécifique ou la capacité thermique massique, notée C_p (J/kg.K), est définie par la quantité d'énergie à apporter par échange thermique pour élever d'un degré Kelvin la température de l'unité de masse d'une substance [INT2]. Cette grandeur est incorporée dans l'équation de l'énergie, et nécessite alors d'être déterminée d'une manière rigoureuse. L'ajout des nanotubes de carbone NTC se traduit généralement par une diminution relative de la chaleur spécifique du nanofluide due à la chaleur spécifique plus faible des NTC comparée à celle du fluide de base.

La plupart des études effectuées dans la littérature utilise un des deux modèles définis par les équations I.19 [PAK/1998] et I.20 [XUA/2000] pour déterminer la chaleur spécifique des nanofluides. Le premier modèle est basé sur la loi de mélange d'une suspension homogène, tandis que le modèle de l'équation I.20 est fondé sur l'hypothèse d'équilibre thermique entre les particules et le fluide de base [O'HA/2012].

$$c_{p,nf} = \varphi_v (c_p)_{np} + (1 - \varphi_v) (c_p)_{fb} \quad \text{Eq. I. 19}$$

$$c_{p,nf} = \frac{\varphi_v (\rho c_p)_{np} + (1 - \varphi_v) (\rho c_p)_{fb}}{\varphi_v \rho_{np} + (1 - \varphi_v) \rho_{fb}} \quad \text{Eq. I. 20}$$

Zhou et al. [ZHO/2010] ont mesuré expérimentalement la chaleur spécifique d'un nanofluide à base de nanoparticules d'oxyde de cuivre dispersées dans de l'eau. D'après leurs résultats, la chaleur spécifique décroît progressivement avec la concentration volumique. Ils ont montré que la loi de mélange (Eq. I.19) ne permet pas de modéliser la chaleur spécifique dans le cas des nanofluides étudiés et que le modèle (Eq. I.20) est mieux adapté pour le calcul de la chaleur spécifique. O'Hanley et al. [O'HA/2012] ont confirmé expérimentalement ce résultat en utilisant un calorimètre différentiel à balayage.

Kumaresan et Velraj [KUM/2012] ont montré expérimentalement pour un nanofluide composé de MWCNT dispersés dans un mélange d'éthylène glycol et d'eau (70% EG/30% eau), que le modèle de l'équation I.20 permet de reproduire leurs résultats expérimentaux avec une erreur relative de l'ordre de 8% pour une fraction volumique de 0.15% et de l'ordre de 3% pour une fraction volumique de 0.45% (figure I.18). La figure I.18 présente aussi l'évolution de la chaleur spécifique en fonction de la fraction volumique des NTC et de la température. Il est à noter que la chaleur spécifique du nanofluide est supérieure à celle de l'eau, plus particulièrement à basse concentration. Les auteurs l'expliquent par la chaleur spécifique du surfactant (SDBS) utilisé dans cette étude.

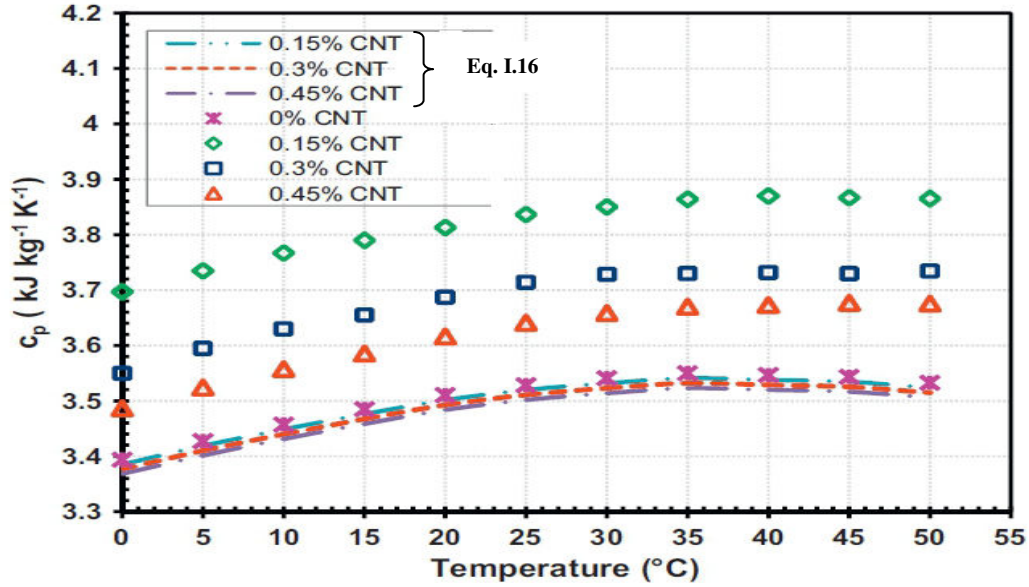


Fig. I. 18 Evolution de la chaleur spécifique massique avec la température [KUM/2012]

Pakdamana et al. [PAK/2012] ont observé une chute de la chaleur spécifique de l'ordre de 42% due à l'ajout d'une fraction massique de 0.4% de MWCNT dans de l'huile. D'après leurs résultats, l'écart maximal entre les mesures expérimentales et le modèle de la loi de mélange (Eq. I.19) est de l'ordre de 40%. Par conséquent, Pakdamana et al. [PAK/2012] ont proposé une corrélation empirique (Eq. I.21) basée sur leurs résultats expérimentaux et qui permet d'estimer la chaleur spécifique du nanofluide étudié avec une erreur relative inférieure à 9.4%.

$$\frac{C_{p,fb} - C_{p,nf}}{C_{p,fb}} = (0.0128T + 1.8382)\varphi_m^{0.4779} \quad \text{Eq. I. 21}$$

Avec φ_m est la concentration massique en nanoparticules.

I.3.4 Masse volumique

La masse volumique des nanofluides est proportionnelle à la fraction volumique en particules et augmente avec l'ajout des nanoparticules. Dans la littérature, et en l'absence de résultats expérimentaux, la masse volumique des nanofluides est souvent calculée à partir de la loi de

mélange dans laquelle, comme pour la chaleur spécifique, le nanofluide est supposé homogène (Eq. I.22) [PAK/1998][FER/2011].

$$\rho_{nf} = \varphi_v \rho_{np} + (1 - \varphi_v) \rho_{fb} \quad \text{Eq. I. 22}$$

Kumaresan et Velraj [KUM/2012] ont mené une étude expérimentale sur la masse volumique d'une solution composée de MWCNT dispersés dans un mélange d'eau et d'éthylène glycol (30/70) et stabilisés par du SDBS (figure I.19). D'après leurs résultats, la masse volumique du nanofluide croît avec la fraction volumique des particules, et la déviation entre la loi de mélange et les mesures expérimentales est de l'ordre de 0.4% à la fraction volumique 0.15%, de 0.9% à 0.3% et de 1% à 0.45%.

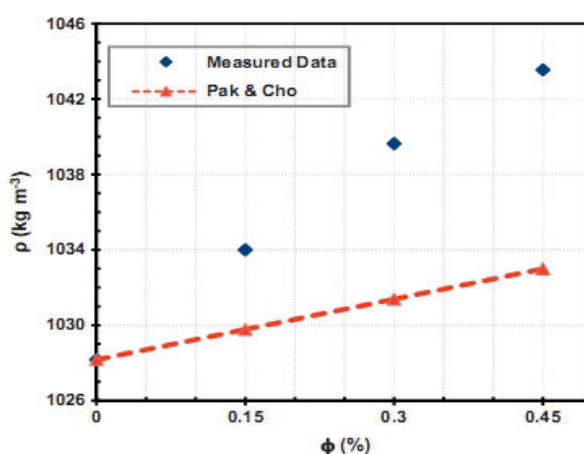


Fig. I. 19 Evolution de masse volumique avec la fraction volumique [KUM/2012]

Pakdamana et al. [PAK/2012] ont observé une déviation maximale entre la loi de mélange et leurs mesures expérimentales pour une solution aqueuse de MWCNT de l'ordre de 1% à la fraction massique 0.4%. Ce qui confirme, d'après eux, que la loi de mélange permet de prédire l'évolution de la masse volumique.

Après cette analyse des connaissances actuelles relatives aux propriétés thermo-physiques des nanofluides à base de NTC, une synthèse des principaux résultats de la littérature concernant l'utilisation et la performance des nanofluides à base de NTC comme agents thermiques dans des échangeurs de chaleur ou dans des systèmes thermiques est présentée dans cette dernière partie.

I.4 PERFORMANCES THERMIQUES ET HYDRODYNAMIQUES DES NANOFLUIDES A BASE DE NTC : SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE

Les nanofluides semblent attractifs si l'on considère leurs seules propriétés thermiques remarquables. Cependant, un point important doit être discuté en vue de leurs applications industrielles. L'ajout des nanoparticules permet d'améliorer les performances thermiques du nanofluide mais cela peut conduire à une augmentation défavorable des propriétés hydrodynamiques.

D'une manière générale, deux approches (qualitative et quantitative) sont utilisées dans la littérature pour évaluer les gains réels apportés par l'utilisation des nanofluides.

- **Approche qualitative** : elle est basée sur une analyse des propriétés thermo physiques du nanofluide, et permet, sans avoir recours à une boucle (ou échangeur de chaleur), d'évaluer selon le régime d'écoulement les limites de l'utilisation des nanofluides [PRA/2006] [TIM/2009]. Cependant, cette approche ne tient pas compte du réarrangement éventuel des nanoparticules en écoulement.
- **Approche quantitative** : Cette approche, utilisée dans la plupart des cas, permet d'évaluer, en condition réelle d'écoulement, les propriétés thermiques (coefficient d'échange convectif) et hydrodynamiques (pertes de charge) dans une boucle fluïdique, notamment dans un échangeur de chaleur.

I.4.1 Relation entre les propriétés thermiques et rhéologiques : approche qualitative

- Régime laminaire

L'ajout des nanoparticules engendre une augmentation de la conductivité thermique et de la viscosité dynamique. Au-delà des relations précédemment décrites, cette modification peut être simplement modélisée en première approche par des modèles empiriques permettant de prédire l'évolution linéaire de la conductivité thermique relative (Eq. I.23) et de la viscosité dynamique relative (Eq. I.24) en fonction de la fraction volumique des nanoparticules [CHE/2008] [TIM/2009][PRA/2006]. Ces modèles empiriques sont valables quelques soient la forme, la taille et l'état de dispersion des nanoparticules dans le fluide de base [PRA/2006][TIM/2009].

$$\frac{\lambda_{nf}}{\lambda_{fb}} \approx 1 + C_{\lambda} \varphi_v \quad \text{Eq. I. 23}$$

$$\frac{\mu_{nf}}{\mu_{fb}} \approx 1 + C_{\mu} \varphi_v \quad \text{Eq. I. 24}$$

Où C_{λ} et C_{μ} sont respectivement le coefficient d'amélioration de la conductivité thermique et le coefficient d'amélioration de la viscosité dynamique du nanofluide.

D'après les résultats de la littérature, en régime laminaire établi, il existe une valeur critique du coefficient d'amélioration de la viscosité dynamique C_{μ} valant $4C_{\lambda}$ (dans le cas d'un tube de section cylindrique) au-delà de laquelle les nanofluides ne sont plus avantageux. Autrement dit, l'utilisation des nanofluides est favorable si la condition de l'équation (I.25) est vérifiée [TIM/2009][PRA/2006] :

$$\frac{C_{\mu}}{C_{\lambda}} < 4 \quad \text{Eq. I. 25}$$

Pour un écoulement en micro-canal à section rectangulaire, la valeur critique devient $3 C_\lambda$ [PRA/2006].

Meyer et al. [MEY/2013] ont mené une étude expérimentale sur une suspension aqueuse contenant des MWCNT dans un tube uniformément chauffé. Les résultats en régime laminaire montrent que pour la même vitesse d'écoulement, les performances thermiques du nanofluide sont plus faibles que celles du fluide de base. Ils ont observé que le coefficient d'amélioration de la viscosité dynamique C_μ est supérieur au coefficient critique $4 C_\lambda$, ce qui se traduit par un bilan énergétique défavorable.

○ Régime turbulent

En régime turbulent, le taux de transfert de chaleur dépend, en plus de la conductivité thermique et la viscosité dynamique, de la chaleur thermique massique et de la masse volumique du fluide [BER/1990]. Pour évaluer l'intérêt de l'utilisation des nanofluides en régime turbulent, Bergles et al. [BER/1990][BER/2003] ont utilisé un facteur de mérite, appelé nombre de Mouromsteff, défini par la formule de l'équation I.26.

$$M_0 = \frac{\rho^{0.8} \lambda^{0.67} C_p^{0.33}}{\mu^{0.47}} \quad \text{Eq. I. 26}$$

Le nanofluide est considéré avantageux par rapport au fluide de base si la condition de l'équation (I.27) est vérifiée [TIM/2009][HAL2/2014].

$$\frac{M_{0_{nf}}}{M_{0_b}} > 1 \quad \text{Eq. I. 27}$$

Cette première approche ne permet pas d'évaluer réellement les gains apportés par les nanofluides, mais, elle peut être utilisée comme une étape préliminaire pour prédire les conditions expérimentales et les concentrations en particules qui tendraient vers un bilan énergétique favorable [HAL2/2014].

I.4.2 Caractérisation des propriétés thermiques et hydrodynamiques: approche quantitative

Les travaux de la littérature menés sur la caractérisation des performances thermiques et/ou hydrodynamiques des nanofluides à base de NTC sont beaucoup plus limités par rapport à celles effectuées sur d'autres types de nanofluide (à base de nanoparticules sphériques).

Certains travaux ont confirmé que l'ajout des NTC peut apporter des gains en performances relativement importants et que ce type de nanofluide peut être un débouché pour l'économie d'énergie dans certains systèmes industriels [DIN/2006][WAN/2008][MAR/2011]. D'autres travaux ont observé le contraire : l'ajout des NTC peut engendrer des pertes de charge significatives pouvant aboutir à un bilan énergétique défavorable [RUA/2012][FER/2011].

Les principaux résultats publiés à ce sujet dans la littérature montrent là encore des résultats très différents. Plusieurs facteurs ont été étudiés afin de comprendre le comportement thermique de ces nanofluides et d'analyser leurs propriétés d'écoulement. A ceux déjà cités et qui peuvent modifier les propriétés thermo-physiques, s'ajoutent les conditions d'écoulement :

- Fraction volumique ou massique des NTC
- Température
- Présence de surfactant/additif et action mécanique (mélangeage)
- Fluide de base
- Régime d'écoulement.
- Abscisse réduit et zone d'établissement du régime
- ...

I.4.2.1 Effet de la fraction volumique/massique

Comme énoncé dans la partie précédente, la conductivité thermique du nanofluide augmente avec la fraction volumique des NTC, ce qui permet d'améliorer les performances thermiques. [PAR/2009]. Pour certains, l'amélioration du coefficient d'échange thermique convectif est due essentiellement à la conductivité thermique des nanofluides [ASH/2012], tandis que pour d'autres le taux d'amélioration des échanges thermiques est nettement supérieur à celui de la conductivité thermique [DIN/2006][WEN/2004]. Plusieurs paramètres peuvent être à l'origine de l'augmentation des échanges thermiques : le réarrangement structural des NTC en écoulement, le mouvement brownien, la surface d'échange modifiée par l'ajout des particules etc...

Ding et al. [DIN/2006] ont mené une étude expérimentale dans un tube cylindrique chauffé uniformément pour évaluer les propriétés thermiques en régime laminaire d'un nanofluide composé de NTC dispersé dans de l'eau et stabilisé par de la gomme arabique GA (*Gum Arabic*). Le coefficient d'échange convectif (figure I.20) augmente significativement avec la fraction volumique des NTC. L'amélioration des échanges thermiques atteint jusqu'à 350% par rapport au fluide de base à la fraction volumique 0.5%. D'après les résultats de Ding et al. [DIN/2006], cette augmentation ne peut pas être due seulement à l'amélioration de la conductivité thermique qui est de l'ordre de 47%, mais s'explique aussi par le réarrangement des NTC en écoulement, par le rapport d'aspect élevé des NTC, par la couche limite réduite au sein de tube ainsi que par l'effet du cisaillement. Ces résultats concordent avec ceux de Xuan et Li [XUA/2003] et Wen et ding [WEN/2004].

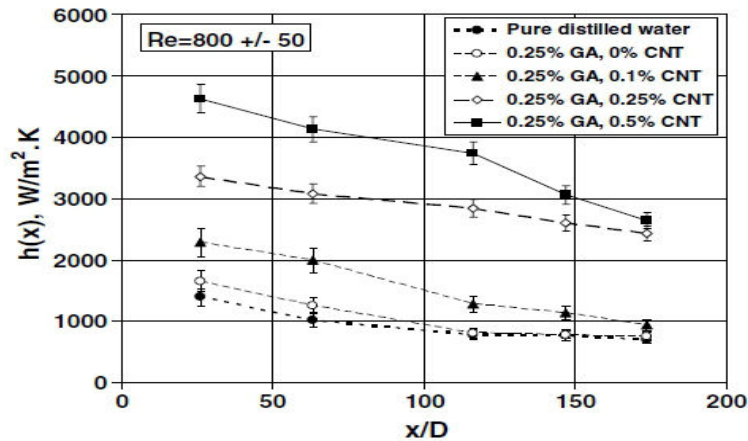


Fig. I. 20 Evolution du coefficient d'échange convectif en fonction de la concentration et l'abscisse axiale d'un nanofluide NTC/eau [DIN/2006]

Les propriétés thermiques augmentent avec la fraction volumique des particules, mais cela peut provoquer aussi une augmentation défavorable des pertes de charge. Par conséquent, il convient d'envisager un bilan global qui tient compte des propriétés thermiques et des pertes de charge afin d'évaluer les gains réellement apportés par l'utilisation des nanofluides par rapport au fluide de base.

Pour caractériser les propriétés thermo hydrodynamiques et évaluer les avantages d'une suspension composée de MWCNT dispersées dans de l'eau et stabilisée avec un mélange binaire de deux surfactants (TritanX-100 et Sodium Dodecylbenzene Sulfonate SDBS), Wang et al. [WAN/2013] ont fait une étude expérimentale dans un tube cylindrique horizontal uniformément chauffé. L'amélioration des échanges thermiques dépend fortement de la concentration volumique, elle est de l'ordre de 70% pour une fraction volumique en MWCNT de 0.05% et de l'ordre de 190% pour 0.24%. Cependant, l'ajout des MWCNT provoque des pertes de charge non négligeables qui augmentent avec le nombre de Reynolds (figure I.21).

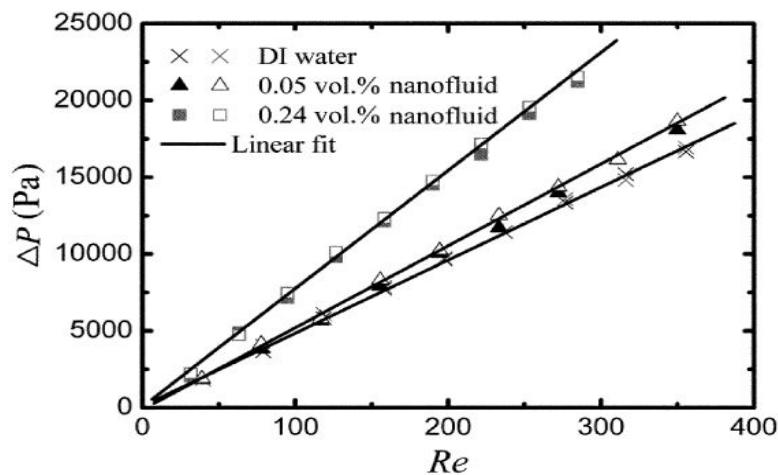


Fig. I. 21 Pertes de charge en fonction du nombre de Reynolds [WAN/2013]

Afin d'étudier l'impact de ces pertes de charge sur l'utilisation du nanofluide, Wang et al. [WAN/2013] ont défini un facteur de mérite η (Eq.I.28) comme le rapport entre la puissance thermique échangée avec le fluide et le produit de la puissance de pompe et la différence de température (entrée/sortie du tube cylindrique).

$$\eta = \frac{\phi}{P\Delta T} \quad \text{Eq. I. 28}$$

Où ϕ , P et ΔT sont respectivement, le flux échangé, la puissance de pompe et la différence de température entre l'entrée/sortie de la section d'essai.

La figure I.22 représente l'évolution de ce facteur de mérite en fonction du nombre de Reynolds. Pour des nombres de Reynolds relativement élevés (supérieurs à 100), le facteur de mérite du nanofluide est plus important par rapport à celui du fluide de base et l'amélioration des performances thermo-hydrauliques du nanofluide est meilleure à la fraction volumique 0.05% comparée à 0.24%. Ce qui montre, que même si l'augmentation des performances thermiques est nettement significative à haute concentration (190% à 0.24% et 70% à 0.05%), le bilan énergétique global montre l'inverse : il est ainsi plus avantageux d'utiliser le nanofluide à basse concentration (0.05%) vis à vis des pertes de charge engendrées dans l'écoulement.

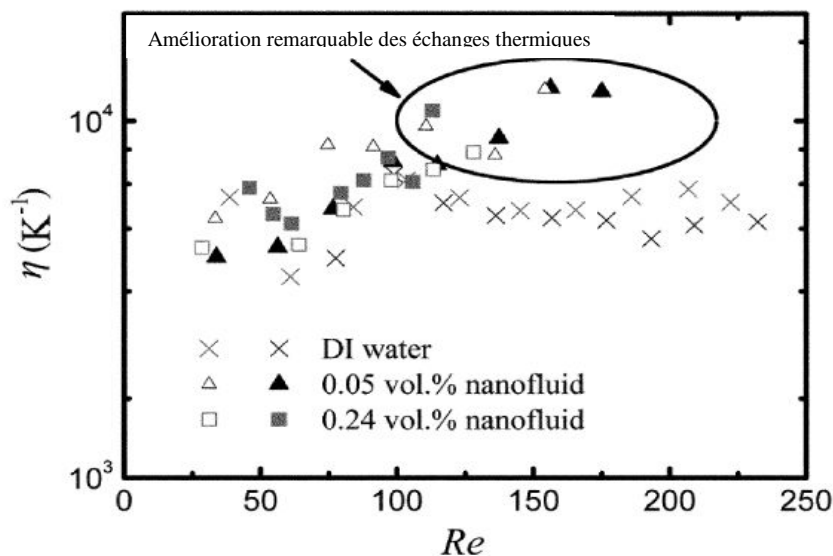


Fig. I. 22 Evolution du facteur de mérite en fonction de Re [WAN/2013]

Pakdaman et al. [PAK/2012] ont défini un indice de performance η (Eq. I.29) comme le rapport du coefficient d'échange relatif (h_{nf}/h_{fb}) par rapport aux pertes de charge relatives ($\Delta P_{nf}/\Delta P_{fb}$) pour une suspension composée de MWCNT dispersée dans l'huile et sans présence de surfactant en écoulement laminaire dans un échangeur de chaleur à tubes hélicoïdaux. D'après leurs résultats, l'indice de performance augmente significativement avec

la concentration volumique pour une gamme de concentration comprise entre 0.063 et 0.251%.

$$\eta = \frac{\frac{h_{nf}}{h_{fb}}}{\frac{\Delta P_{nf}}{\Delta P_{fb}}} \quad \text{Eq. I. 29}$$

Lotfi et al. [LOT/2012] ont présenté une étude expérimentale sur l'amélioration de l'efficacité énergétique d'un échangeur à faisceaux tubulaires en utilisant une suspension à base de MWCNT dispersés dans de l'eau à très faible fraction massique (0.015%). D'après leurs résultats, la présence d'une faible quantité des MWCNT permet d'augmenter le taux de transfert de chaleur d'environ 7% par rapport au fluide de base. Amrollahi et al. [AMR/2010] ont mené une étude expérimentale sur les performances thermiques d'un nanofluide à base de MWCNT dans un tube horizontal en écoulement laminaire et turbulent dans laquelle ils ont montré que l'effet du régime d'écoulement et l'effet de la température sont étroitement liés dans la zone d'entrée/établissement. En effet, à basse température (20°C) le taux d'amélioration du coefficient d'échange convectif augmente avec le nombre de Reynolds et peut atteindre jusqu'à 25% en régime turbulent pour une suspension de concentration massique de 0.12%. Tandis qu'à des températures légèrement supérieures (27-33°C), c'est plutôt l'effet inverse qui se produit ; c'est-à-dire que le taux d'amélioration décroît quand le nombre de Reynolds augmente (figure I.23)

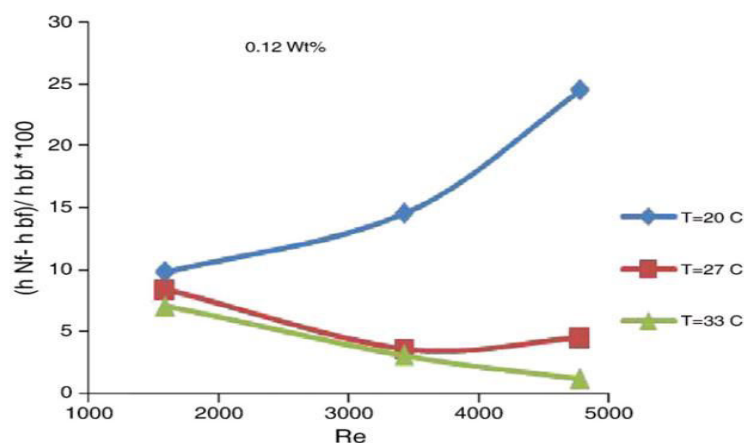


Fig. I. 23 Evolution du taux d'amélioration du coefficient d'échange convectif en fonction du nombre de Reynolds Re [AMR/2010]

Amrollahi et al. [AMR/2010] ont aussi montré que l'ajout des nanoparticules n'a pas d'effet significatif sur l'amélioration de transfert de chaleur en régime turbulent dans la gamme des concentrations massiques étudiées (0.1 ; 0.12 ; 0.2 et 0.25%).

Maré et al. [MAR/2011] ont observé un taux d'amélioration du coefficient d'échange convectif en régime laminaire relativement constant pour une solution aqueuse composée de NTC dans un échangeur à plaque. Cette amélioration est de l'ordre de 50% par rapport au

fluide de base (l'eau) à la fraction massique 1%. Cependant, les pertes de charge dues à l'ajout des NTC sont très élevées, de l'ordre de sept fois supérieures à celles de l'eau. Afin de déterminer les gains en performances réelles en regard de la puissance de pompage, Maré et al. [MAR/2011] ont proposé un critère de performance ξ défini comme suit :

$$\xi = \frac{|\phi_c - P_c)_{nf} - (\phi_c - P_c)_{fb}|}{(\phi_c - P_c)_{fb}} \quad \text{Eq. I. 30}$$

Où ϕ_c et P_c sont respectivement le flux de chaleur échangé du coté nanofluide et la puissance utile. D'après leurs résultats, l'utilisation du nanofluide à base de NTC est plus intéressante à très faible débit ($Re=35$) pour lequel le critère atteint sa valeur maximale 160%. Une augmentation de la vitesse d'écoulement, engendre des pertes de charge plus importantes et par la suite, un critère de performance relativement faible.

Faulkner et al. [FAU/2004] furent les premiers à caractériser expérimentalement les propriétés thermiques au sein d'un dissipateur de chaleur à micro-canaux de diamètre hydraulique 355 μ m en utilisant une suspension à base de CNT comme fluide de refroidissement. Leurs résultats montrent que l'utilisation de ce type de nanofluide peut apporter des gains non négligeables en performances thermiques en régime laminaire pour des très faibles nombre de Reynolds (compris contre 2 et 17).

Meyer et al. [MEY/2013] ont mené une étude expérimentale sur une solution aqueuse contenant des MWCNT stabilisés par de la gomme arabique circulant dans un tube uniformément chauffé pour trois régimes d'écoulement (laminaire, turbulent et régime transitionnel). L'évolution du nombre de Nusselt en fonction du nombre de Reynolds (figure I.24.a) montre que l'ajout des particules entraîne une augmentation des propriétés thermiques du nanofluide. En effet, pour un régime complètement développé ($Re=5000$), le taux d'amélioration des échanges thermiques est de l'ordre de 9.6% à la fraction volumique 0.33%, de 23.5% à 0.75% et de 33.2% à 1%. La présence des particules peut retarder et perturber la couche limite, ce qui se traduit par une accélération du processus de transfert thermique causée par le mouvement brownien des particules [PAK/1998].

L'ajout des MWCNT engendre aussi une augmentation non négligeable de la viscosité dynamique ce qui se traduit par des nombre de Reynolds plus faible par rapport au fluide de base. Pour évaluer les performances thermiques réelles du nanofluide, il est plus rigoureux de comparer ces propriétés à la même vitesse d'écoulement par rapport au fluide de base et non pas au même nombre de Reynolds [PAK/1998].

Basé sur ce concept, Meyer et al. [MEY/2013] ont trouvé que les résultats changent radicalement. En effet, contrairement aux résultats de la figure I.24.a, à même vitesse d'écoulement, les performances thermiques du nanofluide sont plus faibles que celles du fluide de base (figure I.24.b).

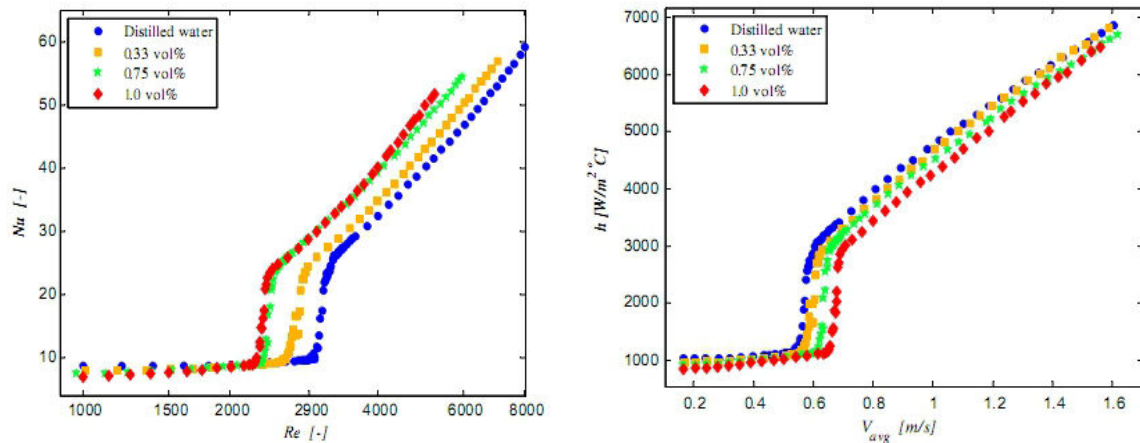


Fig. I. 24 (a) Evolution de Nusselt en fonction de Re ; (b) Evolution du coefficient d'échange convectif h en fonction de la vitesse d'écoulement [MEY/2013]

1.4.2.2 Effet de la température

La température de fonctionnement d'un nanofluide au sein d'un échangeur de chaleur peut avoir des influences considérables sur les performances thermiques et aussi hydrodynamiques. En effet, plus la température de fonctionnement est faible, plus la viscosité dynamique du nanofluide est élevée, ce qui peut se traduire par une augmentation défavorable des pertes de charge. Kumaresen et al. [KUM/2012] ont étudié l'effet de la température d'entrée d'un nanofluide MWCNT/eau+EG(70/30) dans un échangeur tubulaire à la fois en mode chauffage et en mode refroidissement. Les températures de fonctionnement testées varient entre 0 et 40°C pour le nanofluide et de 40 à 0°C respectivement pour l'eau. D'après leurs résultats, le gain en performances thermiques est maximal en mode chauffage quand la température de fonctionnement du nanofluide est la plus élevée (40°C). Ces résultats rejoignent ceux de Halelfadl et al. [HAL1/2014] qui ont montré, sur un dissipateur de chaleur à micro canaux utilisant un nanofluide composé de MWCNT dispersés dans de l'eau distillée et stabilisé par du SDBS, que la température a un effet significatif sur les performances thermiques du fluide de refroidissement. En effet, l'amélioration du coefficient d'échange convectif du nanofluide est de l'ordre de 2% à 20°C ; 12% à 30°C et 13% à 40°C par rapport au fluide de base. Ces résultats ne concordent pas avec ceux d'Amrollahi et al. [AMR/2010] qui ont montré qu'au même nombre de Reynolds, l'amélioration du coefficient d'échange thermique augmente quand la température de fonctionnement du nanofluide diminue (figure I.23).

1.4.2.3 Effet de la présence de surfactant/additif et action mécanique (mélangeage)

La présence de surfactant, la fonctionnalisation des NTC par des traitements acides et le mélangeage (à ultrasons) peuvent influencer les propriétés thermo hydrodynamiques des nanofluides. Plusieurs études ont été menées afin d'évaluer ces effets dans le cas des nanofluides à base de NTC.

Paritosh et al. [PAR/2009] ont observé qu'il existe une durée optimale de mélangeage à ultrason (*Optimal Ultrasonication Time*) où l'amélioration du coefficient d'échange convectif dans un tube cylindrique chauffé uniformément, d'un nanofluide à base de MWCNT dispersés dans l'eau et stabilisé par de la gomme arabique,, est maximale. Cette amélioration est de l'ordre de 36% pour une suspension de fraction massique de 1%. Paritosh et al. [PAR/2009] ont montré que la présence du surfactant GA n'induit aucun effet significatif sur les propriétés thermiques du nanofluide en régime laminaire.

Ko et al. [KOG/2007] ont réalisé un travail expérimental sur le comportement hydrodynamique dans un tube horizontal d'un nanofluide à base de NTC dispersés dans de l'eau distillée. Le but de ce travail est d'étudier l'influence des méthodes de stabilisation sur deux solutions aqueuses à base de NTC. La première solution est stabilisée par l'ajout de surfactant SDS (*Sodium dodecyl sulfate*), et la deuxième est stabilisée par traitement acide des NTC en utilisant un mélange d'acides nitrique et sulfurique. En régime laminaire, les pertes de charge sont légèrement plus élevées dans le cas du premier nanofluide (figure I.25). les auteurs l'expliquent par le comportement rhéologique du surfactant SDS à faible taux de cisaillement. En régime turbulent, les pertes de charge sont relativement similaires pour les deux nanofluides.

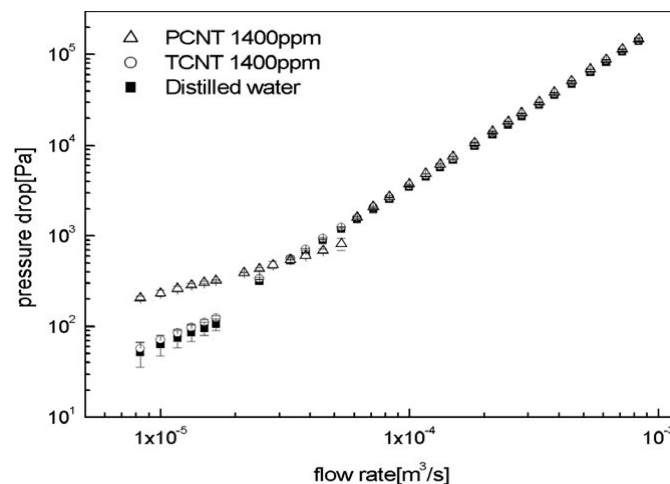


Fig. I. 25 Evolution des pertes de charge en fonction du débit volumique (PCNT : nanofluide 1 ; TCNT : nanofluide 2) [KOG/2007]

I.4.2.4 Effet de la distance axiale

De nombreuses études se sont intéressées à l'intensification des échanges thermiques par rapport à la distance axiale (distance par rapport à l'entrée de la section d'essai), notamment à la zone d'entrée thermique pour les nanofluides à base de nanoparticules sphériques [WEN/2004][CHE/2008][FER/2011][HER/2013]. Cependant, les travaux effectués sur les nanofluides à base de NTC sont très limités [DIN/2006][PAR/2009]. Ding et al. [2006] ont étudié l'effet de la distance axiale sur le comportement thermique d'un nanofluide à base de NTC dans un tube cylindrique chauffé uniformément pour plusieurs concentrations massiques en régime laminaire. Leurs résultats montrent qu'il existe une position axiale optimale où le

gain en performances thermiques est maximal et que cette position axiale dépend de la concentration des NTC (figure I.26).

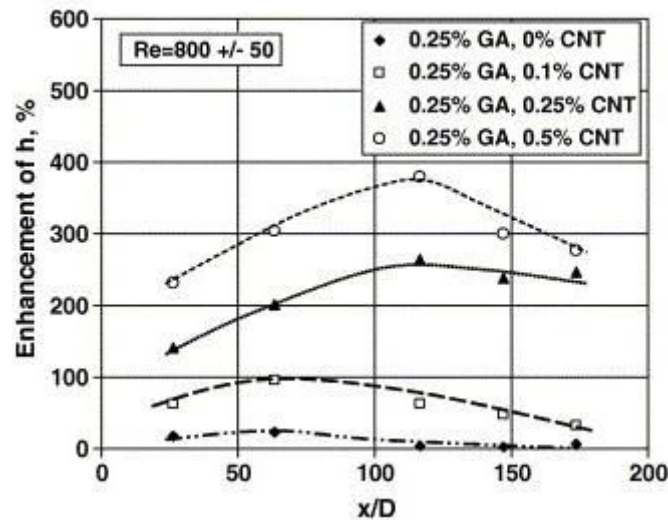


Fig. I. 26 Amélioration des échanges thermiques en fonction de la distance axiale [DIN/2006]

Ces résultats diffèrent de ceux de Paritosh et al. [PAR/2009] qui ont trouvé que le pourcentage d'amélioration des échanges thermiques augmente d'une façon continue avec la distance axiale en régime laminaire quel que soit le temps de mélangeage à ultrasons appliqué. Cette augmentation est essentiellement due à l'évolution de la conductivité thermique en fonction de la température qui croît en fonction de la distance axiale (figure I.27).

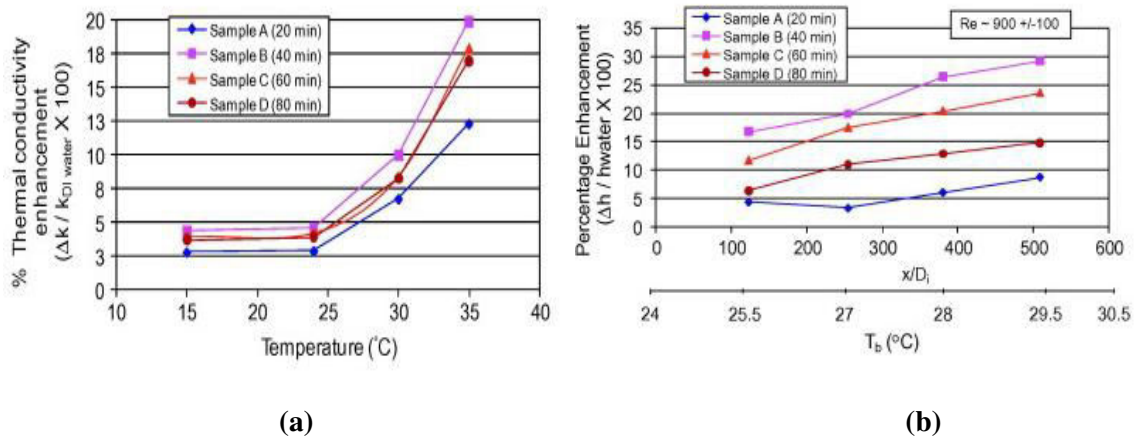


Fig. I. 27 a) amélioration de la conductivité thermique en fonction de la température ; b) Amélioration des échanges thermiques en fonction de la distance axiale et la température [PAR/2009]

1.4.2.5 Influence des autres paramètres

Le fluide de base et le rapport d'aspect des NTC peuvent aussi avoir une influence non négligeable sur les performances thermiques des nanofluides à base de NTC. En effet, les performances thermo-hydrauliques (coefficient d'échange thermique, pertes de charge) sont sensibles à l'évolution de la conductivité thermique et à la viscosité dynamique des nanofluides. Comme nous l'avons évoqué plus tôt dans ce chapitre, ces deux paramètres dépendent du rapport d'aspect des NTC et du fluide de base utilisé. A l'état actuel de notre étude, nous n'avons pas encore trouvé dans la littérature de publications qui intègrent l'influence de ces deux paramètres.

L'analyse et la comparaison des résultats des études antérieures de la littérature concernant l'influence des différents facteurs sur les performances thermiques et hydrodynamiques des nanofluides à base de NTC montrent des disparités importantes. Une synthèse des principales études présentées précédemment est donnée dans le tableau I.2. On peut noter que l'utilisation des nanofluides à base de NTC peut effectivement améliorer d'une manière significative les performances thermiques. Le pourcentage de cette amélioration diffère d'une publication à une autre. D'après les résultats du tableau I.2, on observe un gain en performances thermiques variant entre 7 et 350%.

Tableau I. 2 Comparaison des résultats des travaux expérimentaux de la littérature en fonction du régime d'écoulement et du nanofluide utilisé

Auteurs	Type d'écoulement	Nanofluide utilisé	Résultats (performances thermiques)
[DIN/2006]	Laminaire	MWCNT/eau	Jusqu'à 350% d'amélioration à la zone d'entrée thermique ($\phi_v=0.5\%$)
[PAR/2009]	Laminaire	MWCNT/eau	Amélioration maximale de 32% ($\phi_m=1\%$)
[KUM/2012]	Laminaire	MWCNT/eau+EG(70/30)	Jusqu'à 160% d'amélioration ($\phi_v=0.45\%$)
[LOT/2012]	Laminaire	MWCNT/eau	7% d'amélioration ($\phi_v=0.015\%$)
[MAR/2011]	Laminaire	MWCNT/eau	Amélioration maximale de 50% ($\phi_m=1\%$)
[FAU/2004]	Laminaire Faibles Re (2 à 7)	CNT/eau	Jusqu'à 250% d'amélioration ($\phi_m=4\%$)
[AMR/2010]	Laminaire et turbulent	MWCNT/eau	33% d'amélioration en régime laminaire 40% d'amélioration en régime turbulent ($\phi_m=0.25\%$)

CONCLUSION

Dans ce premier chapitre, nous avons donné dans un premier temps une description générale des nanofluides à base de NTC, de la synthèse des nanotubes à la caractérisation (structure et stabilité) de ces nanofluides. Une synthèse bibliographique de leurs propriétés thermophysiques et de leurs performances thermiques et hydrodynamiques a ensuite été réalisée. Nous avons ainsi montré à travers une analyse des travaux antérieurs que les résultats de la littérature varient d'une publication à une autre, et mis en évidence les facteurs qui influencent les propriétés thermiques, rhéologiques et hydrodynamiques de ces matériaux à savoir : la fraction volumique des NTC, la température, les techniques de stabilisation, le fluide de base, le rapport d'aspect des NTC

En l'absence de relations théoriques fiables et exploitables, il convient d'évaluer au préalable et de façon rigoureuse les propriétés thermo physiques des nanofluides à base de CNT afin de mieux appréhender et d'étudier leur comportement en écoulement et leurs propriétés thermiques dans des systèmes thermiques.

Dans cet objectif, le chapitre suivant expose en détails, après une description des nanofluides utilisés dans cette étude, les différents dispositifs expérimentaux et méthodes mis en œuvre, pour la caractérisation des principales propriétés thermo-physiques des nanofluides (conductivité thermique, viscosité dynamique, masse volumique) et des propriétés thermiques dans deux types d'échangeur de chaleur.

Chapitre II :

Matériaux et dispositifs expérimentaux

INTRODUCTION

Dans ce chapitre, nous présenterons les systèmes et les dispositifs expérimentaux mis en œuvre pour la caractérisation des propriétés thermo-physiques et des performances thermiques des nanofluides étudiés. Dans une première partie, une description détaillée des nanofluides à base de nanotubes de carbone NTC utilisés tout au long de ce travail est réalisée. Ensuite, nous exposons dans une seconde partie, les différents systèmes et protocoles expérimentaux ainsi que leurs validations servant pour la caractérisation expérimentale des propriétés thermo-physiques, conductivité thermique, viscosité dynamique et masse volumique. La dernière partie de ce chapitre décrit, après une présentation approfondie des calculs et formulations mathématiques utilisées pour l'évaluation des performances thermiques dans les échangeurs de chaleur, le banc d'essai composé d'un échangeur à tubes concentriques en U mis en œuvre pour une étude préliminaire et le banc d'essai instrumenté finement pour une étude plus complète des transferts thermiques ainsi que les choix et les démarches effectuées. Enfin, les méthodes de calibration et les incertitudes de mesures associées à ces dispositifs sont aussi présentées.

II.1 PRESENTATION DES NANOFLUIDES UTILISES

Les nanofluides à base de nanotubes de carbone testés dans ce travail sont fournis par la société Nanocyl (Belgique) dans le cadre d'une étroite collaboration. Les nanotubes sont d'abord produits ou achetés selon les grades et ensuite insérés dans les fluides de base associés. La synthèse des NTC produits par Nanocyl repose sur une des méthodes décrites dans le chapitre précédent (section I.1.2.2), à savoir le dépôt chimique catalytique en phase vapeur (CCVD).

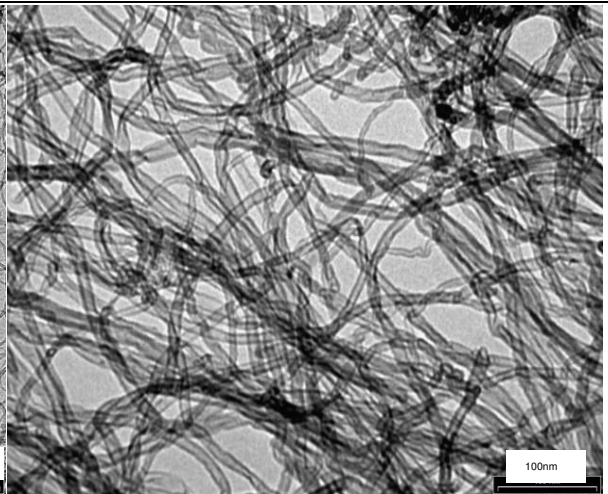
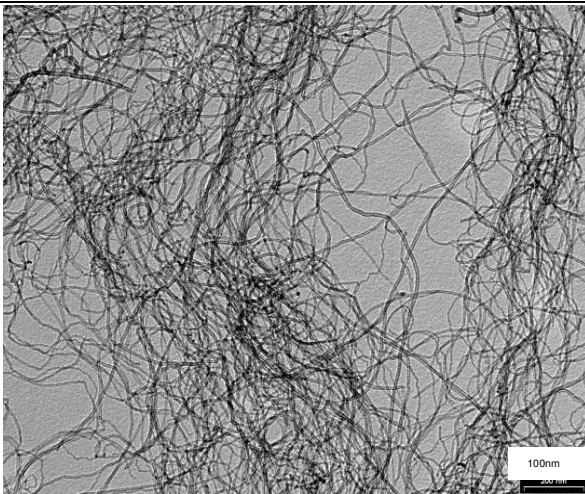
II.1.1 Nanotubes de carbone

Dans cette étude, trois types de nanotubes de carbone NTC multi-parois, de dimensions et de masses volumiques différentes sont initialement considérés (tableau II.1). Il s'agit des grades NC7000 de la société Nanocyl (figure II.1.a), du Graphistrength CNTA de la société Arkema (figure II.1.b) et d'un troisième grade nommé CNTB fourni par Nanocyl (figure II.1.c). Certaines caractéristiques de ces NTC, évaluées et communiquées par Nanocyl, sont résumées dans le tableau II.1. Ce tableau montre que les principales différences entre les nanotubes étudiés sont le diamètre moyen, la longueur et la surface spécifique des nanotubes et la densité. Ainsi, les NTC étudiés ont des rapports d'aspect (rapport de la longueur moyenne des nanotubes sur leur diamètre moyen) de l'ordre de 160, 90 et 60 respectivement pour le NC7000, le CNTA et le CNTB. D'autre part, la surface d'échange et la surface à couvrir par le surfactant pour le NC7000 est plus importante que pour le CNTA et beaucoup plus importante que pour le CNTB (tableau II.1).

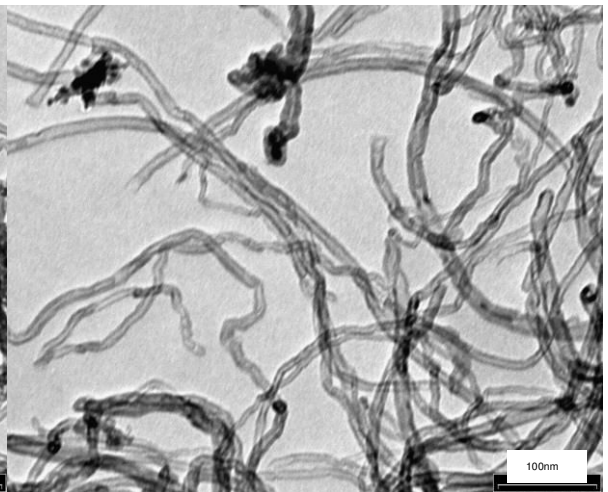
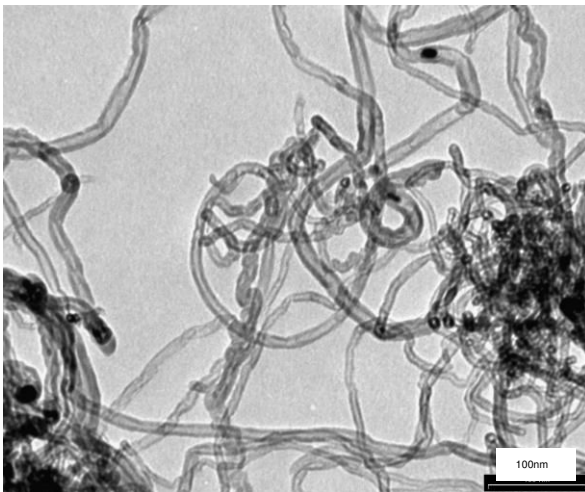
Tableau II.1. Caractéristiques des nanotubes de carbone utilisés

	NC7000	CNTA	CNTB
type	Multi Parois	Multi Parois	Multi Parois
Densité de poudre (g/L)	50	92	75
Pureté en Carbone (wt.%)	90	90	97
Diamètre moyen (nm)	9.2	11.4	16.6
Longueur moyenne (µm)	1.5-2	> 1	> 1
Distribution en diamètre (nm) D(0.1)-D(0.5)-D(0.9)	5.2-8.7-12.6	7.7-10.7-16.1	9.4-15.9-25.3
Surface spécifique (m ² /g)	257-332	206-252	121-176
BET-Iodine Index			
Masse volumique des NTC (kg/m ³)	1800	2050	2250

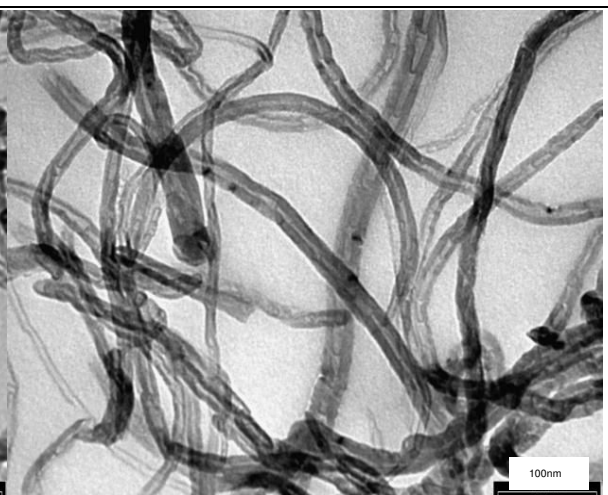
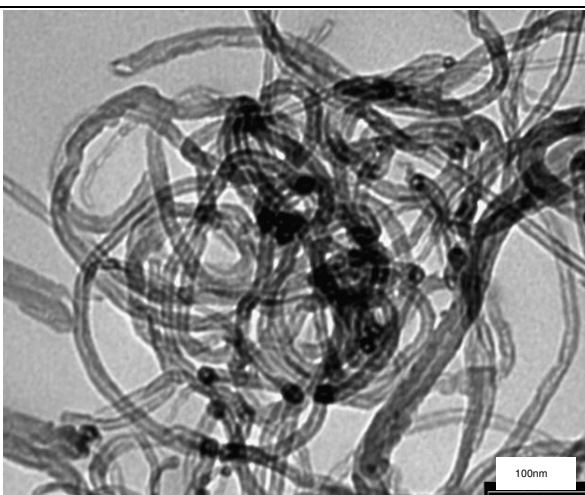
Des analyses par microscope électronique à transition MET des nanotubes ont également été réalisées par Nanocyl (figure II.1). Pour chaque type de NTC, le contrôle systématique par observation au MET après dispersion des nanotubes dans de l'éthanol par sonication a été réalisé dans le but de contrôler la structure et la taille des NTC et la présence éventuelle d'agrégats de nanotubes avant leur utilisation pour formuler des nanofluides. Les clichés obtenus sont présentés ci-dessous. On constate que les dimensions des nanotubes varient bien selon les grades et sont conformes à celles reportées dans le tableau II.1. La figure II.1 montre également que les nanotubes ont tendance à s'entrelacer et ne sont pas forcément alignés.



NC7000



CNTA



CNTB

Fig. II. 1 Caractérisation Microscopie électronique à transmission (MET=TEM) des nanotubes après dispersion et sonication (bain de sonication) dans de l'éthanol

II.1.2 Description des nanofluides à base de NTC utilisés

Cinq types de nanofluides ont été formulés et préparés par Nanocyl à partir des trois grades de NTC précédemment présentés. Ces nanofluides sont constitués de NTC dispersés dans de l'eau déminéralisée. Du fait de la nature hydrophobe des nanotubes de carbone, et pour s'assurer de la stabilité et l'homogénéité des NTC dans l'eau, un surfactant est utilisé. La nature et la quantité de surfactant utilisé ici relève des choix et des travaux antérieurs de Nanocyl et confère aux nanofluides une stabilité de plusieurs mois selon les spécifications de Nanocyl. Dans le cadre de ce travail, trois dispersants ioniques ont été considérés et testés : du dodécylbenzenesulfonate (SDBS) sous la référence D2525 de Sigma Aldrich (fiche technique en annexe A-2), de la lignine alcaline (L) à faible contenu de sulfonate, dénommé lignine, (fiche technique en annexe A-3) et d'un polycarboxylate de sodium soluble dans l'eau (O) (sans référence communiquée par Nanocyl).

Tableau II.2. Liste et composition des nanofluides étudiés

Dénomination des nanofluides	Type de NTC	Fluide de base	Dispersant/surfactant
N1	NC7000	Eau distillée	Dodécylbenzenesulfonate (SDBS)
N2	NC7000	Eau distillée	Lignine (L)
N3	NC7000	Eau distillée	Polycarboxylate de sodium soluble dans l'eau (O)
N4	CNTA	Eau distillée	Polycarboxylate de sodium soluble dans l'eau (O)
N5	CNTB	Eau distillée	Dodécylbenzenesulfonate (SDBS)

Le tableau II.2 présente la composition des nanofluides étudiés. Ce tableau et le précédent (tableau II.1) montrent en particulier les paramètres de composition dont l'influence sera étudiée dans ce travail, à savoir *le rapport d'aspect des NTC* et *le type de surfactant*. Dans tous les cas, Nanocyl nous a fourni des solutions dites « mères » contenant 1% en masse de

NTC et 2% en masse de dispersant. Le rapport des concentrations massiques NTC/dispersant est ainsi de 1/2. Ce rapport optimal a été établi au préalable par la société Nanocyl et doit garantir une stabilité des suspensions pour une durée de plusieurs mois.

Les solutions « mères » sont ensuite diluées en conservant un rapport CNT/dispersant constant et égal à 1/2 selon le protocole décrit ci-après de façon à obtenir des nanofluides de concentration massique (ou volumique) plus faible. *L'influence de la concentration en nanoparticules* constitue ainsi un autre paramètre d'étude.

Dans ce travail, nous allons étudier les nanofluides présentés dans le tableau II.2 pour des fractions massiques comprises entre 0.01 et 1%. Ce choix réside dans un compromis entre propriétés rhéologiques et thermiques. En effet, l'augmentation significative de la viscosité dynamique liée à l'augmentation de la quantité de nanotubes implique une augmentation des pertes de charge comme nous l'avons rapporté au chapitre 1. Par conséquent, bien qu'une amélioration des échanges thermiques soit observée pour des fractions massiques en NTC élevées, l'augmentation importante de la viscosité dynamique pourrait compenser les gains thermiques et aboutir ainsi à un bilan énergétique défavorable. Nous avons montré précédemment sur une des solutions « mères » (nanofluide N1) que la viscosité dynamique et les pertes de charge de ce type de suspension à base de MWCNT dans de l'eau déminéralisée sont importantes à la fraction massique de 1% [MAR/2011] et constitue ainsi la limite haute de ce compromis en vue d'une exploitation de ces matériaux dans les systèmes énergétiques.

II.1.3 Protocole de dilution et préparation des échantillons

Pour préparer des échantillons de concentration massique inférieure à 1%, nous avons dilué la solution mère pour chaque nanofluide en suivant l'exemple présenté ci-dessous et en adoptant les hypothèses suivantes, et en utilisant une balance de précision (Milliot THB; $\pm 0.02\text{g}$) :

Hypothèses

- Le surfactant est adsorbé au niveau de la surface des NTC, aussi le rapport massique NTC/dispersant reste constant pour tous les échantillons préparés.
- Toutes les mesures sont effectuées à la température ambiante

Supposons que l'on dispose d'un échantillon (1) de volume V_x de la solution mère. Sa concentration massique est donnée par l'équation II.1.

$$\varphi_{m1} = \frac{m_{np}}{m_{np} + m_w} = 1\% \quad \text{Eq.II. 1}$$

Avec m_{np} la masse des NTC avec la couche du dispersant adsorbé à la surface ; m_w la masse de l'eau déminéralisée.

A l'aide d'un densimètre, on mesure la masse volumique de l'échantillon (1)

$$\rho_{nf}(1) = \frac{m_{np} + m_w}{V_x} = \frac{m_T}{V_x} \quad \text{Eq.II. 2}$$

La masse totale de l'échantillon mère contenu dans le volume V_x est :

$$m_T = V_x \rho_{nf} \quad \text{Eq.II. 3}$$

D'où la masse des NTC avec la couche du dispersant dans le volume V_x est donnée par l'équation II.4

$$m_{np} = \rho_{nf}(1) V_x \varphi_{m1} \quad \text{Eq.II. 4}$$

Si on veut maintenant diluer cet échantillon afin d'avoir un autre échantillon (2) avec une concentration massique φ_{m2} , alors il faut calculer la masse de l'eau à ajouter pour obtenir la concentration souhaitée :

$$\text{On a } \varphi_{m2} = \frac{m_{np}}{m_T + m'_w} \quad \text{Eq.II. 5}$$

D'où la masse d'eau à ajouter est donnée par :

$$m'_w = \frac{m_{np} - \varphi_{m2} m_T}{\varphi_{m2}} \quad \text{Eq.II. 6}$$

$$\text{Et } V'_w = \frac{m'_w}{\rho_w}$$

Une fois la phase de dilution terminée, chaque nouvelle solution ainsi obtenue est mélangée à l'aide d'un agitateur mécanique pendant 30 minutes à la vitesse 300tr/min. Cette opération de mélange est répétée 24h après dans le but d'assurer une dispersion uniforme des nanoparticules et diminuer les risques d'agglomération des nanoparticules dans le fluide de base. Les échantillons sont ensuite stockés dans des récipients hermétiques à température ambiante avant leur utilisation pour les différents essais.

II.1.4 Caractérisation par MEB des nanofluides étudiés

Afin d'évaluer l'état de dispersions des NTC au sein des différentes solutions « mères », des visualisations de ces échantillons ont été réalisés par SEM. Avant de pouvoir réaliser les clichés, une goutte de chaque échantillon est prélevée (sans recours préalable à la dilution de la suspension), déposée sur une platine, puis mise à sécher lentement en étuve. Dans la série de clichés à suivre, deux types d'appareil ont été utilisés (LEO 1430 VP et SEM-JEOL-JSM-6301F), ce qui explique les différences de voltage et les distances de prise de vue et le grossissement.

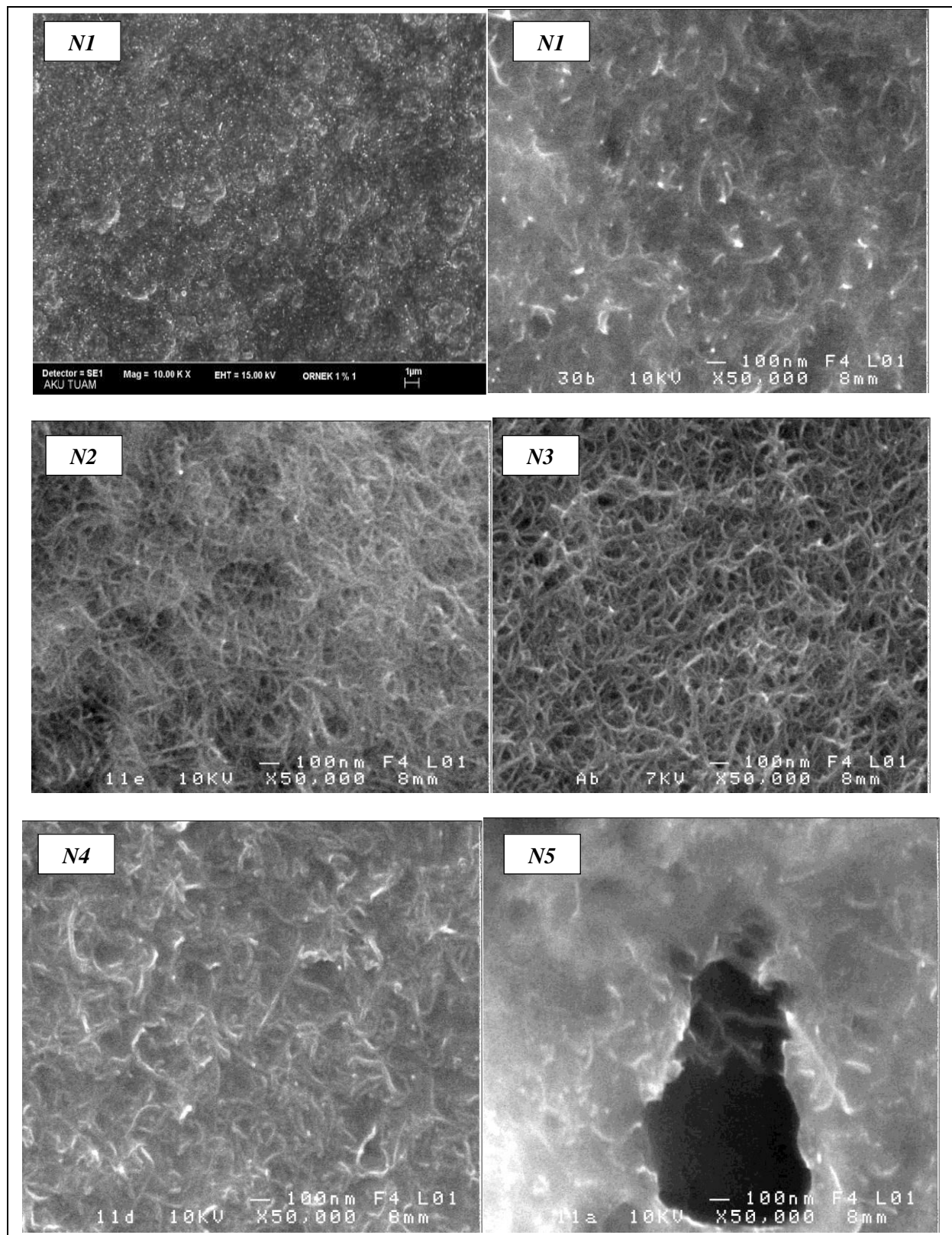


Fig. II. 2 Photographies SEM des NTC

La figure II.5 montre les clichés obtenus pour les nanofluides étudiés, de N1 à N5 de haut en bas. Pour rappel, les nanofluides N1 à N3 sont constitués des mêmes nanotubes et diffèrent

par le type de surfactant utilisé pour les disperser. On constate tout d'abord sur ces clichés que les dimensions des nanotubes sont en accord avec celles fournies par Nanocyl. Les nanotubes des nanofluides N2 et N3 sont très entrelacés, avec de nombreux points de contact entre eux sans la présence visible d'agglomérats de nanotubes. Ce phénomène de regroupement des nanotubes apparaît plus franchement pour le nanofluide N1 [EST/2013]. Les clichés permettent, comme sur la figure II.1, de distinguer la dimension des nanotubes, qui pour N4 et N5, apparaissent clairement plus larges et ramassés que pour N1, N2 et N3 (qui sont identiques). Les nanotubes semblent là aussi très entremêlés.

Nous verrons dans la suite comment ces informations peuvent être éventuellement corrélées aux mesures des propriétés thermo-physiques des nanofluides.

Après la description des nanofluides à base de NTC utilisés dans cette étude, nous exposons dans cette partie, les différents systèmes et protocoles expérimentaux utilisés ainsi que leurs validations pour la caractérisation expérimentale des propriétés thermo-physiques des nanofluides, à savoir conductivité thermique, viscosité dynamique et masse volumique.

II.2 CARACTERISATION DU COMPORTEMENT RHEOLOGIQUE : TECHNIQUES DE MESURE, PROTOCOLE EXPERIMENTAL ET VALIDATION

II.2.1 Technique de mesure et protocole expérimental

La caractérisation rhéologique des suspensions à base de NTC a été effectuée à l'aide d'un rhéomètre Malvern Kinexus Pro (Malvern Instruments) en adoptant une géométrie cône-plan, dans laquelle l'échantillon est cisailé entre le cône mobile et le plan fixe (figure II.3).

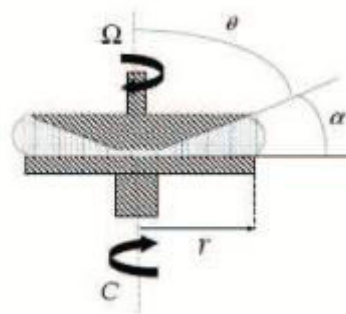


Fig. II. 3 Géométrie cône-plan

Avec les notations de la figure II.3, la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ (1/s) et la contrainte de cisaillement τ (Pa) sont données respectivement par les expressions suivantes :

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega}{\alpha} \quad \text{Eq.II. 7}$$

$$\tau = \frac{3C}{2\pi r^3} \quad \text{Eq.II. 8}$$

Dans ces expressions, C est le couple, Ω est la vitesse de rotation, r et α sont respectivement le rayon et l'angle de la géométrie conique.

La viscosité apparente μ (Pa.s) est définie comme étant le rapport de la contrainte de cisaillement τ et la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ (équation II.9)

$$\mu = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} \quad \text{Eq.II. 9}$$

Comme le montre l'expression (II.7), la vitesse de cisaillement est indépendante du rayon r, ce qui permet un cisaillement uniforme et constant dans tout l'entrefer entre le cône et le plan et engendre ainsi une déformation homogène de l'échantillon à étudier.

Dans le cadre de cette étude, et du fait de la faible viscosité des nanofluides testés, le diamètre et l'angle du cône sont respectivement de 60mm et 1°. Ceci se traduit par un entrefer de 0.03mm au niveau de la partie tronquée du cône, ce qui représente un volume d'échantillon de 1 millilitre. La température de l'échantillon est stabilisée grâce à un système de plaque chauffante et de régulation de température à effet Peltier situé sous le plan inférieur avec une précision de 0.01°C.

Chaque échantillon de nanofluide est prélevé dans son récipient à l'aide d'une pipette graduée automatique puis déposé sur le plan inférieur en prenant soin à ce qu'aucune bulle d'air ne soit piégée dans l'échantillon. Le cône est ensuite descendu pour atteindre l'entrefer fixé et le surplus d'échantillon est éventuellement enlevé. L'ensemble de la géométrie est ensuite enfermée sous un couvercle pour s'affranchir des problèmes d'évaporation et confiner l'échantillon dans une ambiance contrôlée. Puis, l'échantillon est soumis à la température de consigne pendant cinq minutes avant de démarrer l'essai, ce qui permet de considérer la température du fluide constante et homogène au sein de l'échantillon et conforme aux consignes. Finalement, une rampe logarithmique par palier de contrainte de 180s au maximum est appliquée à l'échantillon sous des conditions d'écoulement stationnaire. La vitesse de cisaillement est ainsi mesurée pour chaque palier de contrainte quand les conditions de stationnarité sont atteintes et maintenues constantes pendant 10s. La gamme de contrainte appliquée est évaluée au préalable de façon à s'assurer des conditions d'écoulement stationnaire aux faibles taux de cisaillement et d'éviter les effets de turbulences et d'éjection de l'échantillon à fort taux de cisaillement [FAL/2008], en particulier pour les échantillons à faible concentration en nanotubes. Elle peut ainsi varier d'une concentration à l'autre mais permet d'obtenir le comportement rhéologique des nanofluides dans une gamme de vitesse de cisaillement comprise entre 1 et 1000s⁻¹.

Les essais ont été répétés afin de s'assurer de la reproductibilité de la mesure et de la stabilité des nanofluides dans le temps (voir par exemple la figure II.4 pour le cas de l'eau distillée). Les fluides de base ont été également testés selon un protocole rigoureusement identique.

Il est important de mentionner qu'aucun traitement mécanique (sonication et/ou précisaillement) n'est appliqué aux différents échantillons avant leur caractérisation rhéologique. En effet, nous avons montré dans une étude préliminaire que le comportement des nanofluides étudiés, en particulier pour la solution « mère », est très sensible à un précisaillement, et que la structure du réseau de nanotubes peut s'en trouver altérée et évoluée après un temps de repos suffisant [EST/2013]. Dans ce travail, il est aussi montré que la mise en place des nanofluides à l'aide d'une pipette ne modifie pas la structure des nanofluides avant leur caractérisation rhéologique. Le détail de cette étude est reporté en annexe A-4.

II.2.2 Incertitude de mesure et validation du protocole expérimental

D'après les spécifications de Malvern Instruments, la résolution du couple du rhéomètre est de 0.1 nNm. Ceci conduit, d'après l'équation II-7, à une incertitude maximale de $1,3 \cdot 10^{-6}$ Pa en ce qui concerne la contrainte de cisaillement. De la même façon, la résolution de l'appareil en vitesse de cisaillement est de l'ordre de 10 nrad/s. Aussi, d'après l'équation II-8, l'incertitude en termes de vitesse de cisaillement est inférieure à $5,73 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$. Ces incertitudes conduisent, dans les gammes de viscosité et de vitesses de cisaillement testées, à estimer la viscosité des nanofluides dans un intervalle de confiance de 4%.

De l'eau distillée et de l'huile standard (PRA, U2400) ont été testées comme des fluides de calibration à 20°C dans le but de valider le protocole expérimental précédemment décrit. Comme attendu, un comportement newtonien a été observé pour ces fluides (figures II.4 et II.5). De plus, la viscosité dynamique mesurée à 20°C est de 1.035mPa.s pour l'eau distillée et de 1452mPa.s pour l'huile, ce qui représente une erreur relative inférieure à 3.5% pour l'eau distillée et de 0.4% pour l'huile standard par rapport aux valeurs théoriques.

Ces résultats nous permettent d'une part de valider le protocole expérimental et de montrer aussi que l'erreur expérimentale est ici dans le domaine de confiance de l'appareil, notamment pour les fluides de faible viscosité.

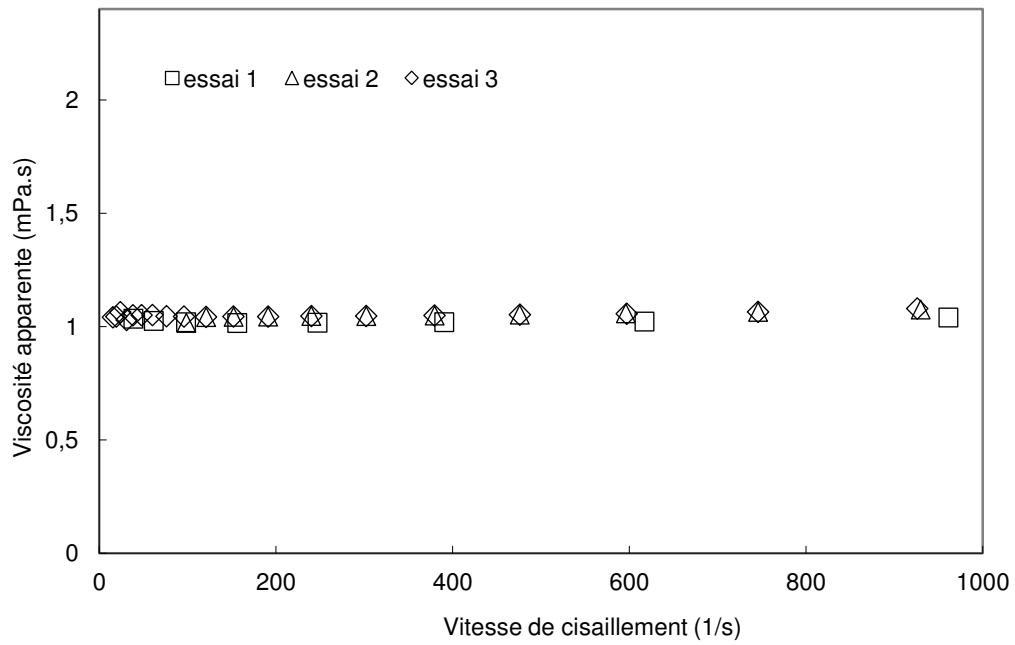


Fig. II. 4 Comportement rhéologique à 20°C de l'eau distillée

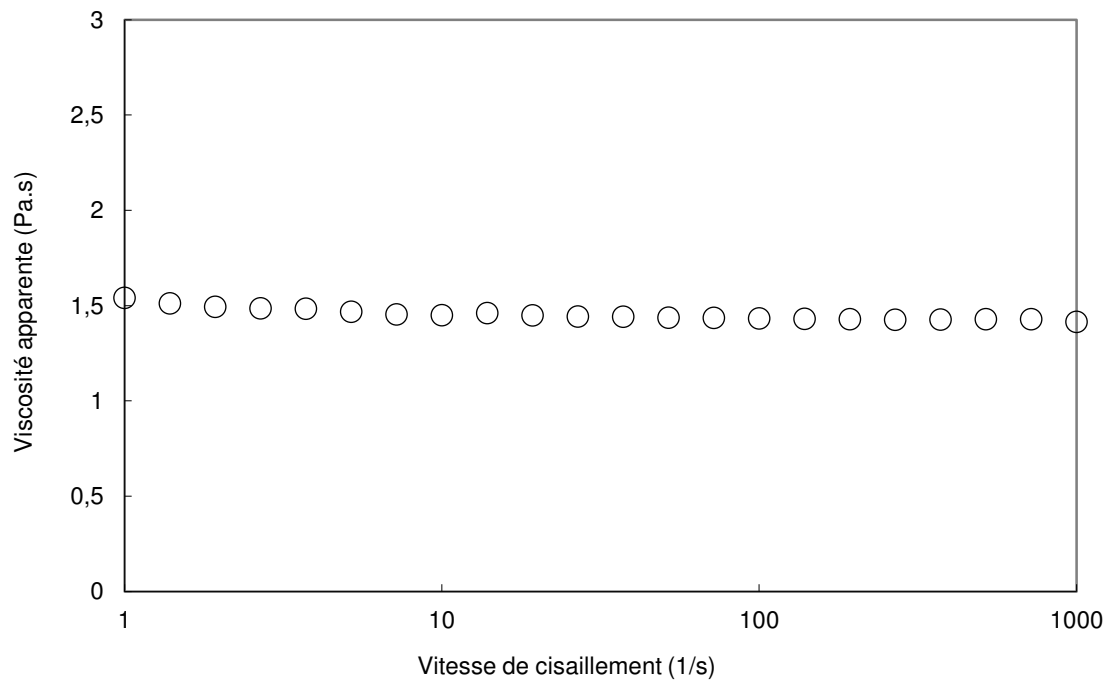


Fig. II. 5 Comportement rhéologique à 20°C de l'huile standard (PRA, U2400)

II.3 CARACTERISATION DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE : TECHNIQUES DE MESURE, PROTOCOLE EXPERIMENTAL ET VALIDATION

II.3.1 Technique expérimentale : Méthode du fil chaud

Les méthodes de mesure des propriétés thermiques en régime stationnaire ne sont pas adaptées aux fluides en raison de la présence de courant de la convection naturelle lors de l'établissement d'un gradient thermique. La méthode du fil chaud en régime transitoire (*Transient Hot Wire* en anglais) est la méthode la plus connue et la plus répandue pour la mesure de la conductivité thermique des fluides en raison de sa rapidité, de sa facilité de mise en œuvre et son coût peu élevé. Le principe de cette technique est de chauffer par effet Joule un élément filiforme (sonde) de très faible rayon immergé dans le fluide à caractériser, et de mesurer l'élévation de la température au voisinage de la sonde en fonction du temps par l'intermédiaire d'un capteur qui lui est associée. En effet, au niveau de la sonde, l'échange thermique se fait par conduction thermique unidirectionnelle. La conductivité thermique s'obtient à partir de la détermination de la pente du thermogramme $T=f(t)$ (figure II.6), qui est proportionnelle à la conductivité thermique.

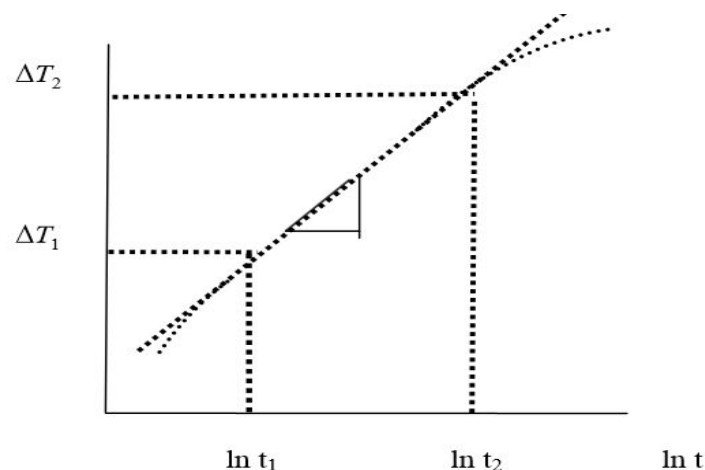


Fig. II. 6 Thermogramme de conductivité thermique [GLA/2010]

Les hypothèses utilisées dans cette théorie sont les suivantes :

- Le milieu est isotrope et homogène
- La sonde est une source de chaleur infiniment longue
- La température initiale, ou à laquelle on veut mesurer la conductivité thermique, est supposée uniforme dans tout l'échantillon.

De plus amples détails relatifs à cette technique peuvent être trouvés dans [BAK/1997].

Dans le cadre de ce travail, les mesures de la conductivité thermique des échantillons ont été obtenues par cette technique à l'aide de l'appareil KD2 Pro développé par DECAGON Inc.®. Cet instrument est conçu pour mesurer les propriétés physiques de n'importe quel milieu. Il

est composé d'un boîtier de lecture et de trois capteurs en inox, TR-1, KS-1 et SH-1. Dans notre étude expérimentale, nous avons utilisé le capteur KS-1 adapté pour les mesures de la conductivité thermique des liquides dans la gamme 0,02-2 W/m.K. Le schéma de principe du capteur KS-1, basé sur la méthode du fil chaud, est présenté sur la Figure II.7. Pour mesurer la conductivité thermique d'un échantillon, la sonde doit être immergée complètement dans l'échantillon.

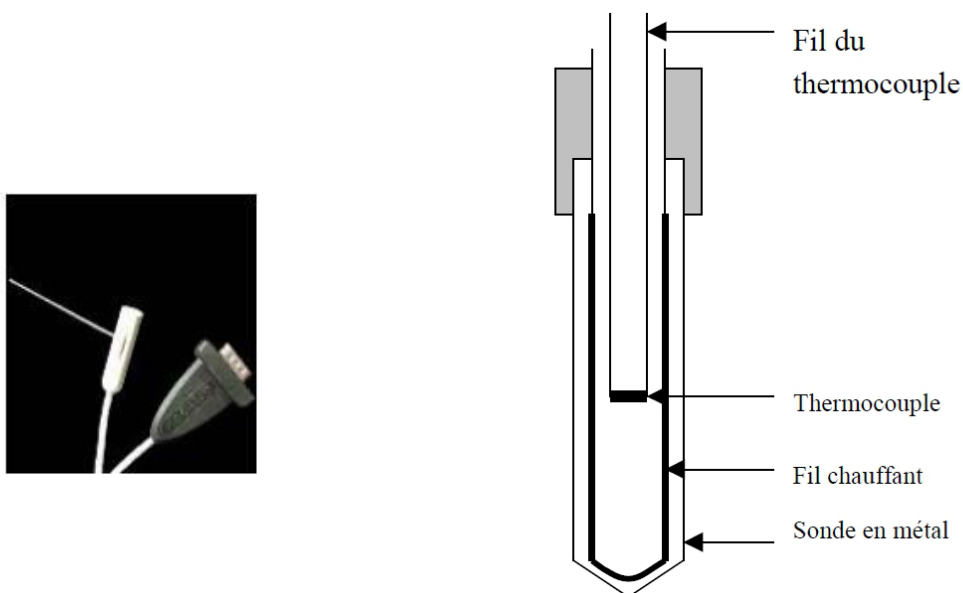


Fig. II. 7 Schéma de principe du capteur KS-1

II.3.2 Procédure expérimentale

La première étape consiste à immerger un pot contenant l'échantillon étudié dans un bain thermostaté porté, au préalable, à la température désirée. Le système contient une sonde à résistance de platine liée à un système d'acquisition (figures II.8 et II.9), qui permet de faire un suivi temporel de l'évolution de la température de l'échantillon. Cette température de l'échantillon se stabilise après environ 30 minutes. Une fois la stabilité de température obtenue, la mesure de la conductivité de la solution est effectuée à 10 reprises avec le KS1 précédemment décrit avec un intervalle de temps de 5 minutes entre chaque mesure

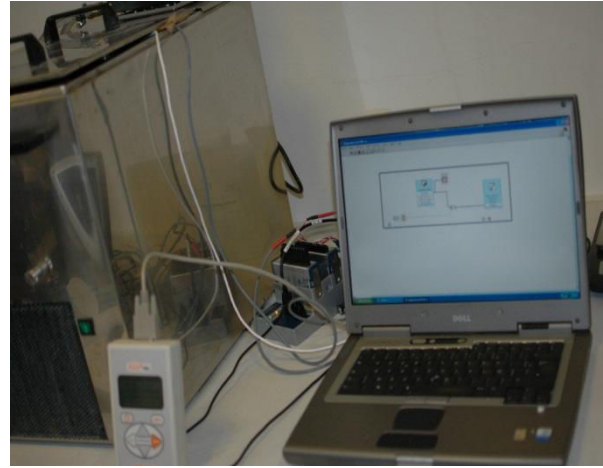
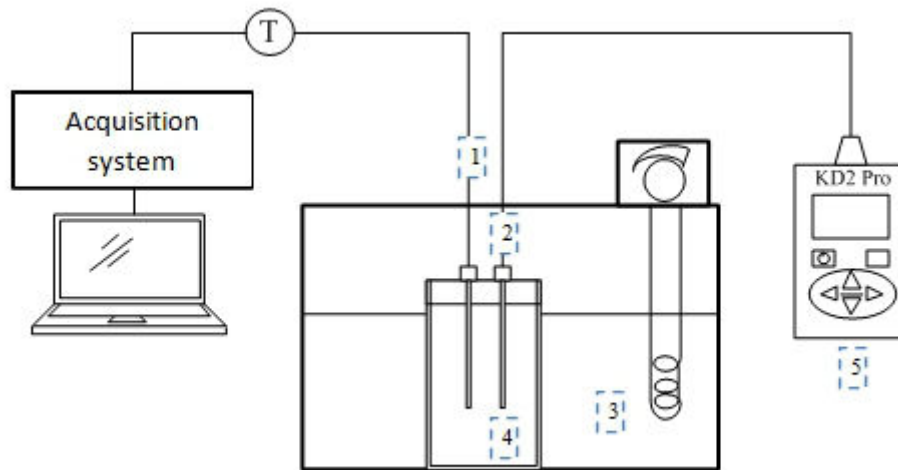


Fig. II. 8 Montage expérimental de la mesure de la conductivité thermique



[1]: Sonde platine PT100

[2]: Sonde KS1

[3]: Bain thermostaté

[4]: Pot d'échantillons

[5]: KD2 Pro

Fig. II. 9 Schéma du banc d'essais dédié à la mesure de conductivité thermique

II.3.3 Validation du protocole expérimental

De l'eau distillée a été utilisée comme liquide de calibration à plusieurs températures dans le but de valider le protocole expérimental utilisé et d'évaluer l'incertitude de mesure du dispositif. Pour cela, les résultats expérimentaux ont été comparés avec les données de la littérature sur l'eau distillée [LID/2003].

Les résultats expérimentaux et théoriques de l'évolution de la conductivité thermique de l'eau distillée en fonction de la température sont reportés dans le tableau II.5. Ils montrent que la conductivité thermique de l'eau distillée augmentent logiquement avec la température, et que l'incertitude relative maximale est de 3.5% à 20°C (tableau II.5). Cette incertitude diminue

quand la température augmente. Ceci permet de valider le protocole expérimental et d'établir le domaine de confiance des mesures de conductivité thermique.

Tableau II.5 Validation du protocole expérimental sur l'eau distillée

Eau distillée			
Température	λ_{EXP}	λ_{TH}	incertitude relative (%)
20	0,5914	0,6132	3,55
30	0,6084	0,6272	3,00
40	0,6344	0,6403	0,92
47	0,6433	0,648	0,73
50	0,6508	0,6513	0,08

II.4 CARACTERISATION DE LA MASSE VOLUMIQUE : TECHNIQUES DE MESURE, PROTOCOL EXPERIMENTALE ET VALIDATION

Les mesures de la masse volumiques ont été effectuées au Laboratoire de Recherche en Microgravité de l'Université Libre de Bruxelles (ULB).

II.4.1 Technique expérimentale

Les mesures de la masse volumique reportées dans la suite de ce travail sont effectuées à l'aide d'un densimètre à tube vibrant Anton PAAR couplé avec une cellule DMA 602 (figure II.10) conçus pour des mesures de masses volumiques de fluides (liquides et gaz) et qui permet une précision de l'ordre de 1.10^{-5}g/cm^3 [GED/2005]. La température dans la cellule est stabilisée grâce à un cryothermostat capable d'assurer une précision jusqu'à 0.01K.



Fig. II. 10 Densimètre à tube vibrant

II.4.2 Principe de fonctionnement

Le densimètre contient un oscillateur constitué d'un tube vibrant creux en verre qui peut être excité d'une manière harmonique par un système électronique. Le principe de la mesure du densimètre est basé sur le changement de la fréquence naturelle de l'oscillateur qui est rempli

du fluide étudié. En effet, après remplissage du tube par l'échantillon, le système subit ensuite une excitation harmonique dont la direction de l'oscillation est perpendiculaire au plan du tube. La fréquence de l'oscillation est influencée par la masse de l'oscillateur, donc par la masse volumique de l'échantillon étudié. L'homogénéité des échantillons doit être assurée afin d'avoir une reproductibilité des résultats.

La masse volumique de l'échantillon est déterminée à partir de la période d'oscillation et de deux constantes A et B d'étalonnage telles que :

$$\rho(T) = A\tau^2(T) - B \quad \text{Eq.II. 10}$$

A et B sont des constantes qui peuvent être déterminées à partir de la calibration du densimètre au moyen de deux échantillons de masses volumiques connues. Dans le cadre de cette étude, nous avons utilisé de l'eau distillée et de l'air comme fluides de référence ou de calibration. Par conséquent, A et B s'expriment à partir des relations suivantes.

$$A = \frac{\rho_{H_2O}(T) - \rho_{air}(T)}{(\tau_{H_2O}(T))^2 - (\tau_{air}(T))^2} \quad \text{Eq.II. 11}$$

$$B = \frac{(\tau_{air}(T))^2 \rho_{H_2O}(T) - (\tau_{H_2O}(T))^2 \rho_{air}(T)}{(\tau_{H_2O}(T))^2 - (\tau_{air}(T))^2} \quad \text{Eq.II. 12}$$

$\rho_{H_2O}(T)$ et $\rho_{air}(T)$ sont respectivement les masses volumiques de l'eau et de l'air à une température fixée.

La calibration réalisée sur l'eau distillée et sur l'air est illustrée dans le tableau II.6. Elle a été réalisée dans une gamme de températures conforme à celles exploitées pour la caractérisation des nanofluides. Les constantes A et B sont calculées pour chaque température en s'appuyant sur ce tableau. Les résultats sont reportés dans le tableau II.7.

Tableau II.6. Etalonnage à l'aide de l'eau distillée et de l'air

Température (°C)	Air		Eau distillée	
	τ (1/s)	ρ (kg/m ³)	τ (1/s)	ρ (kg/m ³)
20	293.39047	0.00120	249.47448	0.99821
25	293.49199	0.00118	249.63553	0.99707
30	293.59367	0.00101	249.84959	0.99565
35	293.69404	0.00100	249.89105	0.99403
40	293.79119	0.00100	250.20367	0.99222

Tableau II.7. Calcul des constantes de calibration

Température (°C)	A(10 ⁶)	B(10 ⁶)
20	11.612	4.463
25	11.604	4.456
30	11.597	4.442
35	11.589	4.452
40	11.581	4.427

Les mesures de période ne nécessitent pas d'étalonnage. En effet, les mesures expérimentales sont directement converties en masses volumiques (équation II.10), qui sont au préalable étalonnées à partir des deux fluides de calibration (l'eau distillée et l'air sec). Ainsi, la masse volumique des fluides étudiés est calculée à partir des périodes prélevées expérimentalement en utilisant l'équation II.10 et le tableau II.7 pour les constantes de calibration A et B.

Dans la dernière partie de ce chapitre, on se propose, après une analyse des calculs et formulations mathématiques utilisées pour l'évaluation des performances thermiques, de présenter les bancs d'essais, les techniques et systèmes de mesures expérimentaux utilisés et développés dans le cadre de ce travail. Les choix et les démarches effectués pour la caractérisation des performances thermiques des nanofluides dans ces systèmes thermiques sont également explicités.

II.5 PERFORMANCES THERMIQUES DANS UN ECHANGEUR : TECHNIQUES DE MESURE, PROTOCOLES EXPERIMENTAUX ET VALIDATION

II.5.1 Principe d'analyse et détermination des grandeurs utiles

Il existe de nombreuses méthodes d'évaluation des performances des échangeurs de chaleur servant aussi à leur dimensionnement. Les plus répandues sont la méthode classique d'analyse de la différence de température moyenne logarithmique (DTLM ou LMTD) et celle de l'efficacité fonctionnelle ou le nombre d'unités de transfert (ϵ -NUT) [PAT/2003]. Dans ce travail, seule la première méthode est utilisée. Ainsi, on se propose, avant de décrire cette méthode, de présenter d'abord un schéma représentatif et les principales hypothèses de ce travail. La figure (II.11) représente le fonctionnement d'un échangeur bitubes en configuration co-courant avec l'analogie électrique correspondante. Cette configuration est choisie dans le but d'établir les équations II.13-II.22.

Il est important de signaler que nous avons opté pour une configuration co-courant sachant que cela a peu d'importance puisque cette configuration sera fixée pour toutes les manipulations. En plus, ce qui nous intéresse est de comparer les performances thermiques des nanofluides par rapport à ceux des fluides de base associés sous les mêmes conditions de fonctionnement

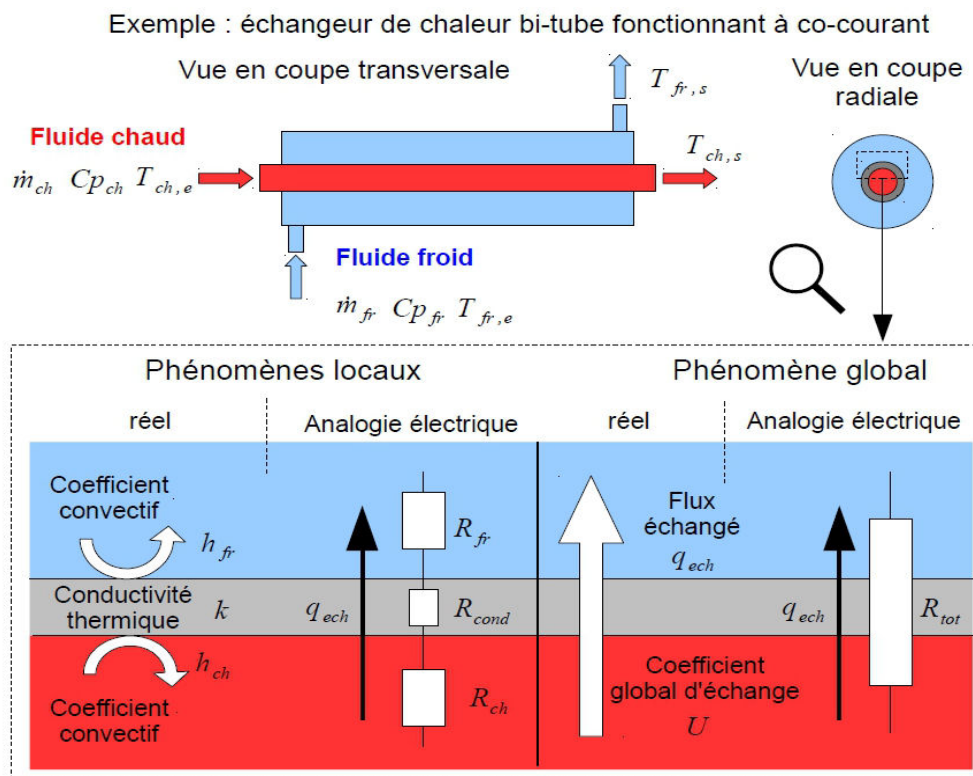


Fig. II. 11 Principe de fonctionnement d'un échangeur de chaleur [LEG/2012]

Les hypothèses majeures adoptées sont :

- Les propriétés thermo-physiques pour le calcul des coefficients d'échange convectifs moyens des fluides utilisés sont évaluées à la température moyenne entre la température d'entrée et la température de sortie de chaque tube.
- Le régime de fonctionnement est stationnaire.

La puissance thermique délivrée par le fluide chaud et la puissance reçue par le fluide froid sont exprimées respectivement par les équations II.13 et II.14

$$q_{ch} = (\dot{m}C_p)_{ch} (T_{ch,e} - T_{ch,s}) \quad \text{Eq.II. 13}$$

$$q_{fr} = (\dot{m}C_p)_{fr} (T_{fr,s} - T_{fr,e}) \quad \text{Eq.II. 14}$$

Si l'échangeur est parfaitement isolé, ces deux puissances sont égales et correspondent à la puissance thermique échangée.

En s'appuyant sur l'analogie électrique (figure II.11), on peut schématiser le flux de chaleur échangé comme étant un courant électrique circulant à travers plusieurs résistances. On représente sur la figure II.11 trois résistances thermiques : deux résistances convectives associés aux deux fluides (chaud et froid) et une troisième résistance liée à la conduction dans la paroi du tube central.

Les résistances thermiques convectives peuvent être évaluées à partir des équations II.15 et II.16 :

$$R_{ch} = \frac{1}{h_{ch}A_{ch}} \quad \text{Eq.II. 15}$$

$$R_{fr} = \frac{1}{h_{fr}A_{fr}} \quad \text{Eq.II. 16}$$

Avec h (W/m².K) le coefficient d'échange convectif et A (m²) la surface d'échange.

La résistance thermique de conduction est exprimée à l'aide de l'équation II.17:

$$R_{cond} = \frac{\ln\left(\frac{D_2}{D_1}\right)}{2\pi\lambda L} \quad \text{Eq.II. 17}$$

D_2 et D_1 sont respectivement les diamètres extérieur et intérieur du tube central de l'échangeur de chaleur comme le montre la figure II.12

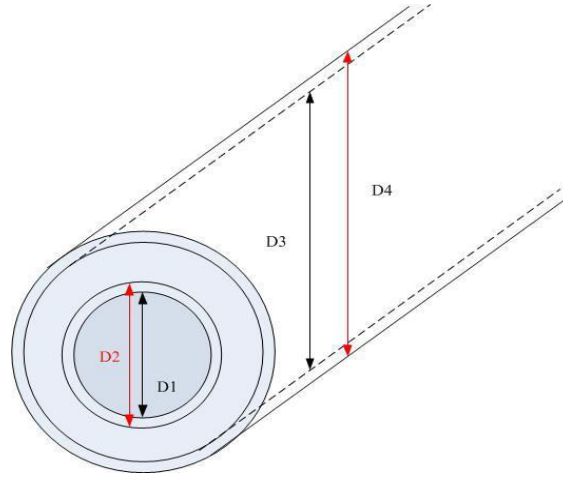


Fig. II. 12 Schéma des grandeurs géométriques de l'échangeur de chaleur

L (m) est la longueur du tube central et λ (W/m.K) représente ici la conductivité thermique de la paroi séparatrice.

Les trois résistances thermiques en série, schématisées sur la figure II.11 permettent donc de déterminer la résistance thermique totale R_t (équation II.18) :

$$R_t = R_{ch} + R_{cond} + R_{fr} \quad \text{Eq.II. 18}$$

Le coefficient global d'échange U (W/m².K) peut alors être calculé à partir de l'équation II.19:

$$\frac{1}{UA_{ch}} = \frac{1}{h_{ch}A_{ch}} + \frac{\ln\left(\frac{D_2}{D_1}\right)}{2\pi\lambda L} + \frac{1}{h_{fr}A_{fr}} \quad \text{Eq.II. 19}$$

Le flux de chaleur échangé peut aussi être évalué en fonction du coefficient d'échange global et d'un écart de température logarithmique moyen (DTLM) entre les deux fluides (équation II.20) :

$$q_{éch} = UA_{ch}\Delta T_{lm} \quad \text{Eq.II. 20}$$

Les températures d'entrée/sortie des fluides dans l'échangeur permettent de déterminer la DTML. La Figure II.13 représente deux profils observés typiquement dans le cas d'un échangeur bi-tubes, celui de gauche dans le cas d'un fonctionnement à co-courant et celui de droite dans le cas d'un fonctionnement à contre-courant.

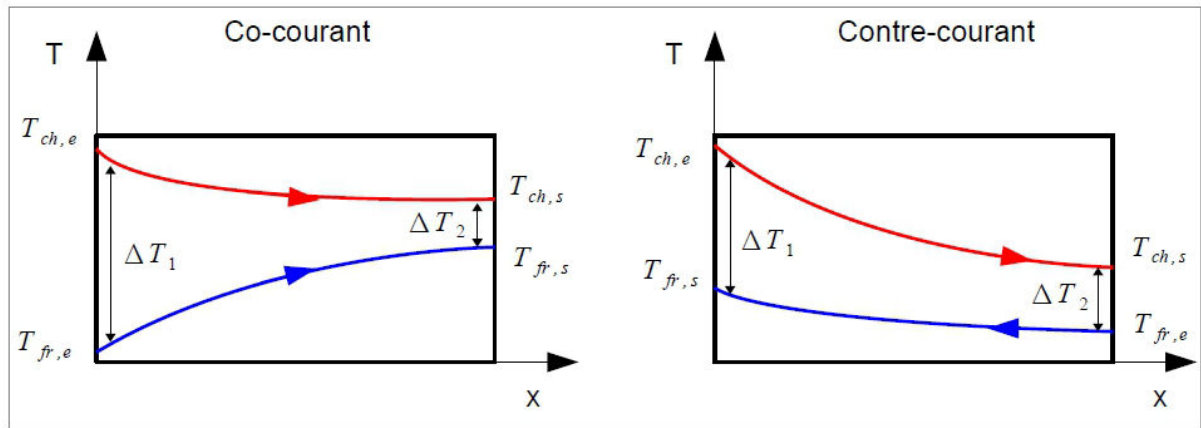


Fig. II. 13 Profils de température en fonctionnement co-courant et contre-courant [LEG/2012]

La DTLM s'exprime suivant l'équation II.21 :

$$\Delta T_{lm} = \frac{\Delta T_1 - \Delta T_2}{\ln\left(\frac{\Delta T_1}{\Delta T_2}\right)} \quad \text{Eq.II. 21}$$

La méthode d'analyse de la différence de température moyenne logarithmique DTLM est basée principalement sur les équations II.20 et II.21.

Dans cette étude, on s'intéressera à l'évolution du coefficient d'échange convectif (équation II.22) dans le tube central (circuit chaud) dédié, dans cette étude, à l'écoulement des nanofluides. A partir de l'équation II.22, on peut également calculer le nombre de Nusselt (équation II.23).

$$h_{ch} = \frac{1}{\frac{1}{U} - \frac{D_1}{2\lambda} \ln\left(\frac{D_2}{D_1}\right) - \frac{1}{h_{fr}} \frac{D_1}{D_2}} \quad \text{Eq.II. 22}$$

$$Nu_{ch} = \frac{h_{ch} D_h}{\lambda_{ch}} \quad \text{Eq.II. 23}$$

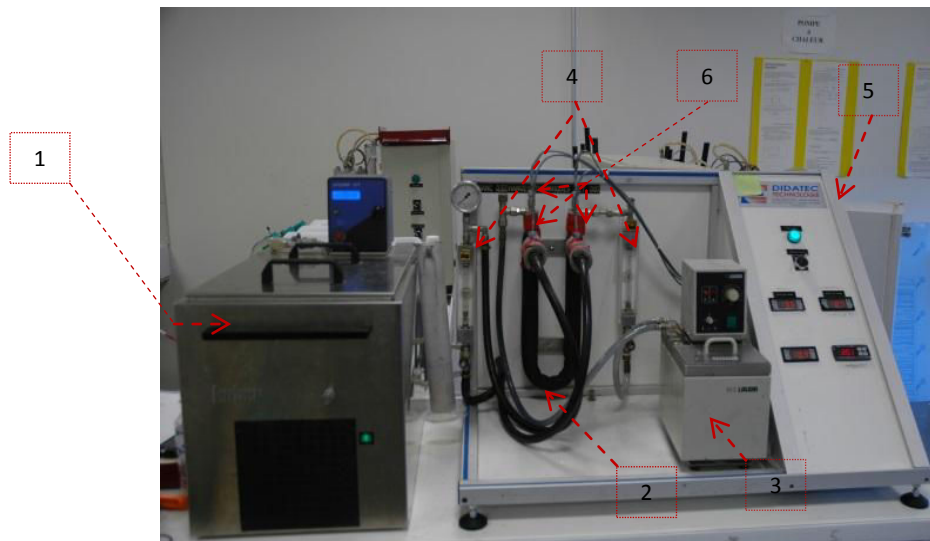
D_h (m) et λ_{ch} (W/m.K) sont respectivement le diamètre hydraulique du tube central et la conductivité thermique du fluide chaud.

II.5.2 Etude préliminaire : dispositif expérimental et validation

II.5.2.1 Dispositif expérimental

Le banc d'essai mis à notre disposition (figure II.14), pour cette étude préliminaire, est un échangeur de chaleur à tubes concentriques (en U) fabriqué par la société Didatec Technologie (référence : BET 101), concepteur et fabricant de matériel pédagogique. Ce

Le système est un dispositif ‘clé en main’ pour une utilisation pédagogique dans le cadre de travaux pratiques.



- | | |
|--|--|
| 1- Bain thermostaté du circuit froid | 2- Echangeur de chaleur à tubes coaxiaux |
| 3- Bain thermostaté du circuit chaud | 4- Débitmètres à flotteur |
| 5- Indicateurs digitaux pour l'acquisition | 6- Sondes à résistance de platine RTD |

Fig. II. 14 Dispositif expérimental : échangeur à tubes coaxiaux (en U) BET 101

Le dispositif expérimental schématisé dans la figure II.15 est composé d'un échangeur en inox à tubes concentriques où le fluide chaud et le fluide froid s'écoulent respectivement dans le tube central et le tube annulaire (figure II.16). Quatre sondes à résistance de platine RTD sont montées à l'entrée et à la sortie de chaque tube et sont initialement couplées avec des indicateurs digitaux pour l'acquisition des températures. La précision des sondes après étalonnage est de l'ordre de 0.1°C . Deux bains thermostatés au niveau de chaque circuit permettent de régler les températures de consignes. Chaque bain thermostaté dispose d'une pompe qui permet d'assurer la circulation du fluide. Le dispositif expérimental contient aussi deux débitmètres à flotteur ($0\text{--}46\text{ l/h}$) étalonnés sur l'eau distillée. Cependant, nos connaissances sur les propriétés thermo-physiques des nanofluides ne permettent pas d'adapter ce type de débitmètre aux écoulements des nanofluides étudiés. Par conséquent, ils servent uniquement à la validation du montage avec de l'eau déminéralisée. Dans le cas des nanofluides, le débit massique est évalué en comptant le temps de remplissage pour un volume donné.

La surface extérieure de l'échangeur est entièrement isolée pour minimiser les pertes de chaleur thermiques vers l'extérieur.

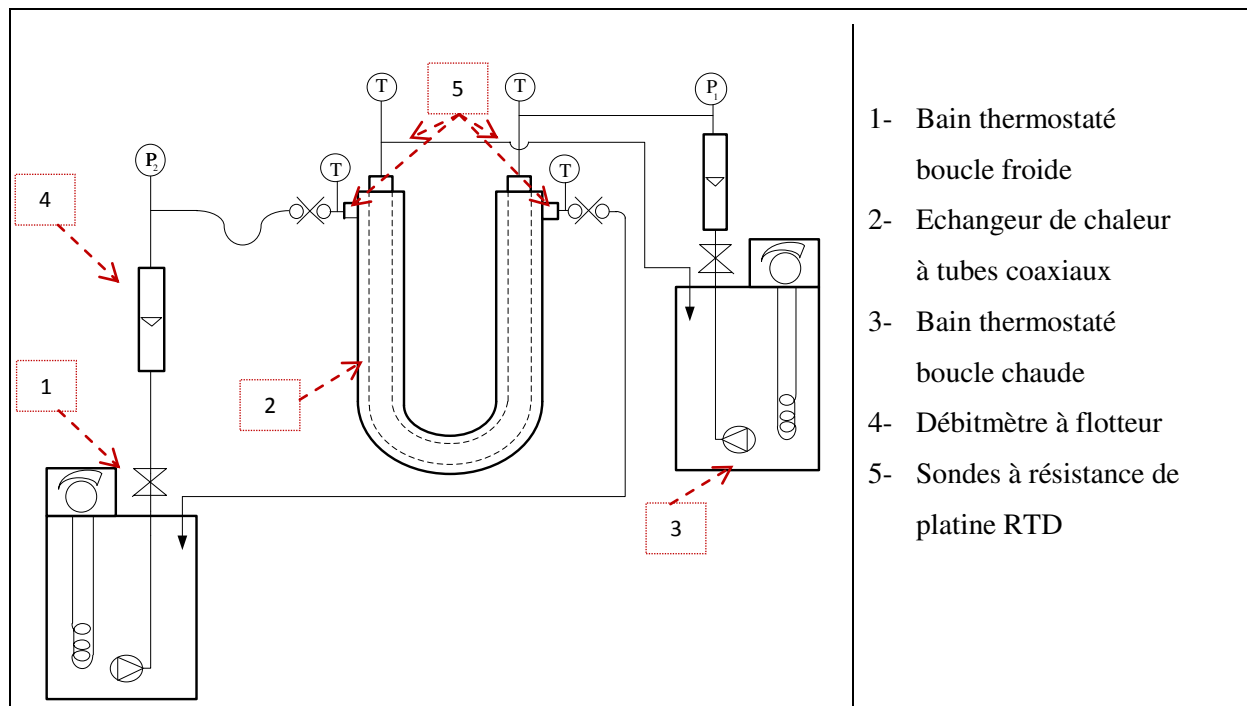


Fig. II. 15 Schéma du Dispositif expérimental : échangeur à tubes coaxiaux (en U) BET 101

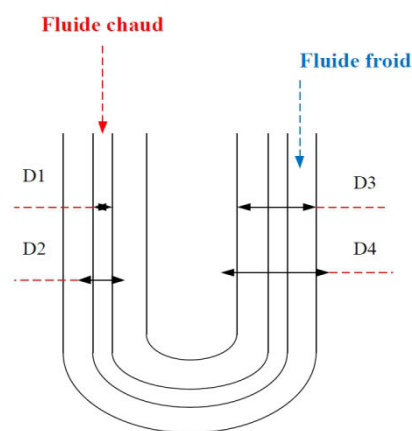


Fig. II. 16 Schéma de l'échangeur, $D_4=18\text{mm}$, $D_3=16\text{mm}$, $D_2=8\text{mm}$, $D_1=6\text{mm}$, $L=68\text{mm}$, $S=0.015\text{m}^2$

Nous avons mis au point un programme à l'aide de l'interface Labview permettant de visualiser l'évolution temporelle des températures à l'entrée et à la sortie de chaque tube (figure II.17). Cette acquisition automatisée remplace l'indicateur digital. La fréquence d'acquisition que nous avons imposée est d'une mesure toutes les 5 secondes pendant 30 minutes après que l'équilibre thermodynamique entre les deux fluides soit établi.

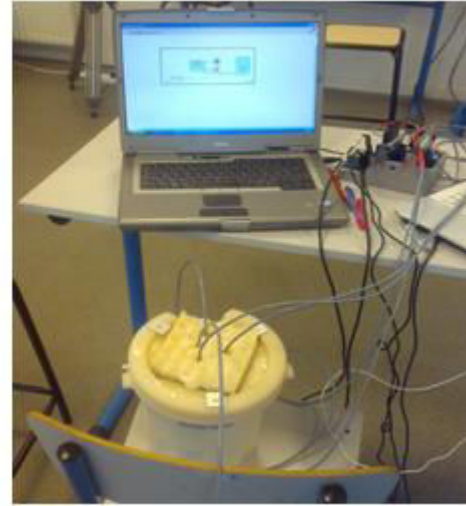


Fig. II. 17 Dispositif expérimental : échangeur à tubes coaxiaux avec acquisition automatisée des températures

II.5.2.2 Validation du protocole expérimental

Pour valider le protocole expérimental et évaluer les pertes thermiques au niveau de l'échangeur de chaleur, des essais ont été effectués sur l'eau déminéralisée circulant dans le circuit chaud et dans le circuit froid (configuration de l'échangeur Eau/Eau).

Conditions de fonctionnement :

- Température entrée fluide chaud : $T_{ce}=50^{\circ}\text{C}$.
- Température d'entrée du fluide froid $T_{fe}=10^{\circ}\text{C}$.

L'évaluation des pertes thermiques vers le milieu extérieur, notés q_- , est déterminée par l'équation de bilan des flux (équation II.24)

$$q_- = \dot{m}_c C_{pc}(T_{ce} - T_{cs}) - \dot{m}_f C_{pf}(T_{fs} - T_{fe}) \quad \text{Eq.II. 24}$$

$\dot{m}_c$ et $\dot{m}_f$ sont les débits en masse (kg/s) des fluides chaud et froid.

i. Pertes thermiques

Le tableau II.8 propose des extraits de bilans énergétiques dans l'échangeur de chaleur. Les débits volumiques d'eau chaude dans le tube central sont de 10; 20; 30 et 40l/h (nombre de Reynolds ($Re = \frac{4\dot{m}}{\pi D \mu}$) correspondants 980; 1958; 2938 et 3917). Tandis que le débit d'eau froide dans l'espace annulaire est fixé à 40l/h (nombre de Reynolds correspondant est de 1560). Les gammes des débits ont été choisies en fonction des capacité des pompes de circulation.

Le débit de l'eau froide dans l'espace annulaire est fixé à la valeur maximale de la pompe de circulation. Cela a peu d'importance car cette valeur sera fixe pour toutes les manipulations. En plus, ce qui nous intéresse dans cette partie est de comparer les performances thermiques des nanofluides par rapport à ceux des fluides de base associés dans le tube central sous les mêmes conditions de fonctionnement

Tableau II.8 Extrait de bilan énergétique pour une configuration eau/eau

Débit d'eau froide l/h)	Débit d'eau chaude (l/h)	Flux absorbé par le fluide froid (W)	Flux délivré par le fluide chaud (W)
40	10	110,30	105,54
	20	171,68	177,80
	30	289,57	300,60
	40	350,85	359,34

La figure II.18 récapitule les résultats du tableau II.8 et représente l'évolution des pertes thermiques vers le milieu extérieur (équation II.25), exprimé en pourcentage (%), en fonction du débit volumique d'eau chaude imposé dans le tube central.

$$\frac{\Delta q}{q}(\%) = \frac{q_{ch} - q_{fr}}{q_{ch}} 100 \quad \text{Eq.II. 25}$$

On constate simplement sur cette figure que les pertes thermiques vers le milieu extérieur représentent 4% en moyenne de la puissance échangée du côté chaud. Dans la suite, ces pertes thermiques sont bien prises en comptes dans la détermination du flux échangé (équation II.20).

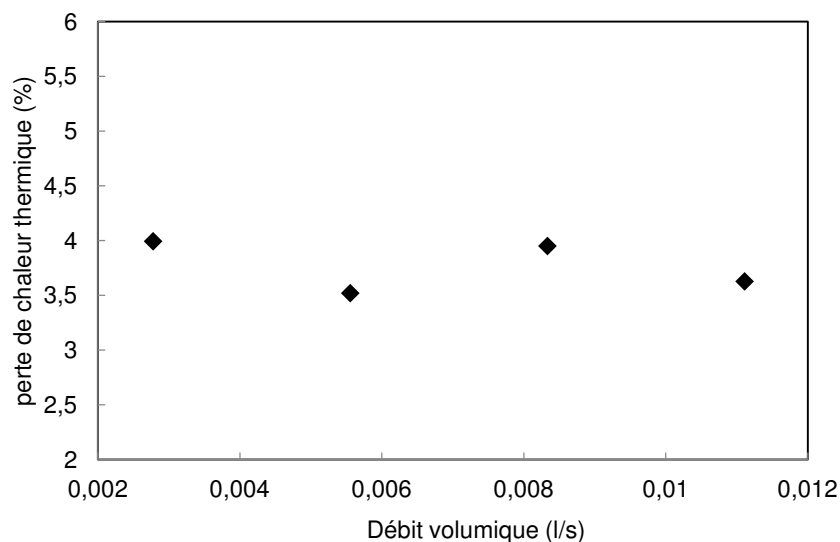


Fig. II. 18 Evolution des pertes thermiques en fonction du débit volumique

Il est à noter que les propriétés thermo-physiques (conductivité thermique, viscosité dynamique, masse volumique et chaleur spécifique) de l'eau déminéralisée ont été évaluées à la température moyenne T_m pour les deux tubes annulaire et central.

Pour le tube annulaire $T_{m,fr} = \frac{T_{fr,e} + T_{fr,s}}{2}$ **Eq.II. 26**

Pour le tube central $T_{m,ch} = \frac{T_{fr,e} + T_{fr,s}}{2}$ **Eq.II. 27**

ii. Validation du protocole expérimental

Pour valider notre protocole expérimental, nous avons comparé les valeurs expérimentales du coefficient d'échange convectif obtenues pour l'eau déminéralisée dans une configuration eau/eau de l'échangeur avec celles de la littérature calculées à partir des nombres de Nusselt (équations II.28-II.29).

Les nombres de Nusselt théoriques dans le tube central sont calculés à partir des corrélations suivantes [INC/2011] :

En régime laminaire $Re < 2300$

$$Nu_{th} = 4.364 + \frac{0.086 \left(Re Pr \frac{D_h}{L} \right)^{1.33}}{1 + 0.1 Pr \left(Re \frac{D_h}{L} \right)^{0.83}}$$
 Eq.II. 28

En régime turbulent $Re > 2300$

$$Nu_{th} = \frac{\left(\frac{f}{8} \right) (Re - 1000) Pr}{1 + 12.7 \left(\frac{f}{8} \right)^{0.5} \left(Pr^{\frac{2}{3}} - 1 \right)}$$
 Eq.II. 29

Avec f le facteur de friction qui peut être estimé à partir de l'équation suivante :

$$f = (0.79 \ln(Re) - 1.64)^{0.5}$$
 Eq.II. 30

Le nombre de Prandtl (Pr) est calculé à partir des propriétés thermo-physiques des fluides (équation II.31) :

$$Pr = \frac{\mu C_p}{\lambda}$$
 Eq.II. 31

Les modèles des équations II.29 et II.30 correspondent, dans la mesure de possible, et pour s'approcher des conditions de fonctionnement expérimentales, à des écoulements non établis du point de vue thermiques et/ou hydrodynamique.

Le calcul du coefficient d'échange convectif du fluide froid dans l'espace annulaire a été réalisé en fonction du nombre de Nusselt théorique (équation II.32) calculé à partir des corrélations usuelles de la littérature (équation II.33) [INC/2011] :

$$h_{fr} = \frac{Nu_{th} \lambda_{fr}}{D_h} \quad \text{Eq.II. 32}$$

$$Nu_{th} = 3.66 + \left(1 + 0.14 \left(\frac{D_3}{D_2} \right)^{0.16} \right) \frac{0.19 \left(Re Pr \frac{D_h}{L} \right)^{0.8}}{1 + 0.117 \left(Re Pr \frac{D_h}{L} \right)^{0.467}} \quad \text{Eq.II. 33}$$

Cette corrélation correspond à des écoulements non établis des points de vue thermique et/ou hydrodynamique [INC/2011].

D_h , D_2 et D_3 correspondent respectivement au diamètre hydraulique, au diamètre externe du tube central et au diamètre interne du tube annulaire.

Le diamètre hydraulique de l'espace annulaire est calculé à partir de l'équation II.34 :

$$D_h = D_3 - D_2 \quad \text{Eq.II. 34}$$

On peut voir sur la figure II.19, que les valeurs expérimentales du coefficient d'échange convectif dans le cas de l'eau déminéralisée dans le tube central, correspondent bien à celles calculées à l'aide des corrélations des équations II.29 et II.30 à 10% près.

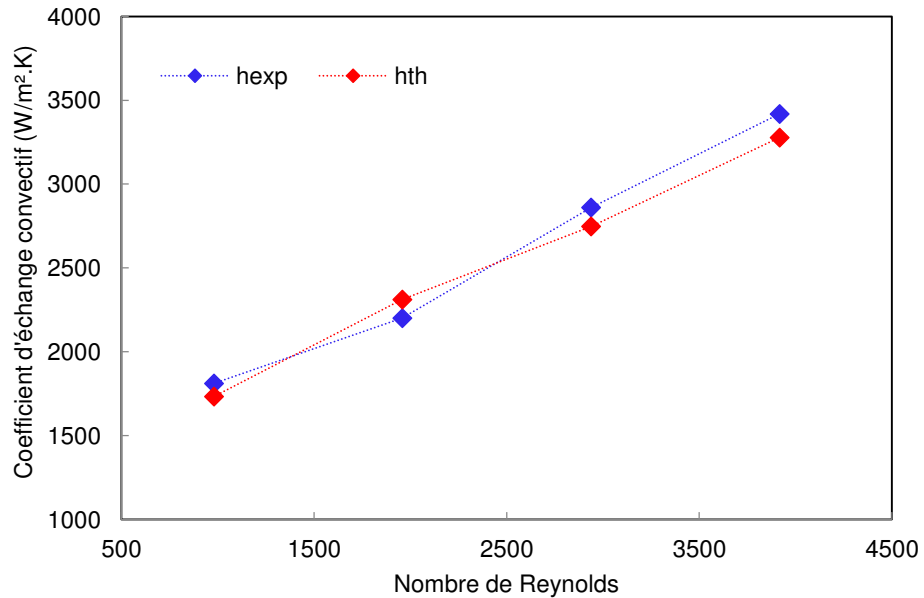


Fig. II. 19 Evolution des coefficients d'échange théorique et expérimental de l'eau en fonction du nombre de Re

II.5.3 Etude du comportement thermique dans un échangeur coaxial horizontal : dispositif expérimental et validation

II.5.3.1 Dispositif expérimental

Dans l'objectif d'étudier les performances thermiques des nanofluides, nous avons conçu et finement instrumenté un banc d'essai composé d'un échangeur de chaleur coaxial (figure II.20). Cet échangeur en acier inoxydable est composé d'un tube central de 0.66m de long, de 18.7mm de diamètre intérieur et de 1.3mm d'épaisseur. Le tube annulaire a un diamètre intérieur de 47.6mm et une épaisseur de 1.7mm. Le fluide chaud circule dans le tube central et le fluide froid dans l'espace annulaire (schéma figure II.21). Deux bains thermostatés au niveau de chaque circuit permettent de régler les températures de consignes. Chaque bain thermostaté dispose d'une pompe qui permet d'assurer la circulation du fluide.

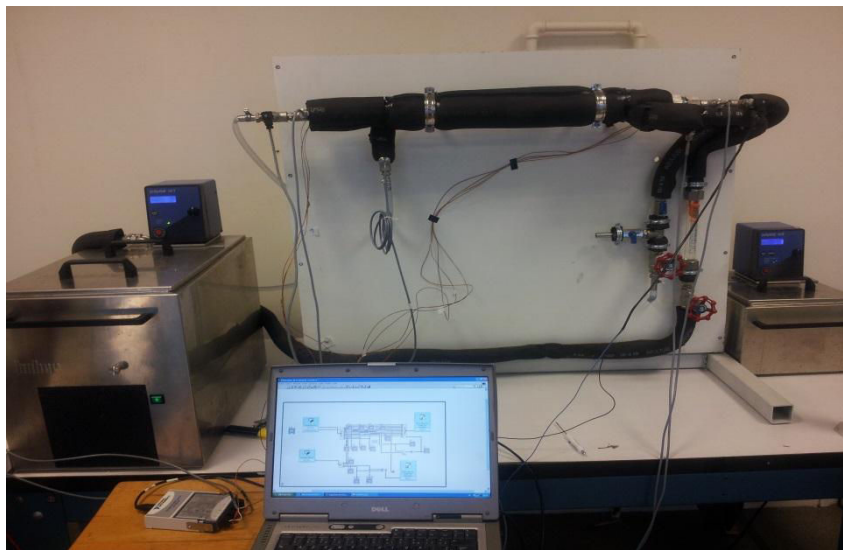


Fig. II. 20 Banc d'essai échangeur coaxial

Quatre sondes à résistance platine RTD, de précision de l'ordre de 0.1K après étalonnage, sont insérées à l'entrée et à la sortie de chaque tube.

Huit thermocouples de type K, avec une précision de 0.1 K après étalonnage, sont placés sur une gorge et brasés au niveau de la surface d'échange à différentes positions axiales (en mm) : 5(T1), 20 (T2), 30 (T3), 60 (T4), 140 (T5), 185 (T6), 245 (T7) et 385 (T8) à partir de l'entrée de la section (figure II.22). Les positions des thermocouples ont été choisies dans le but d'évaluer la distribution de la température à la paroi en particulier dans la zone d'entrée thermique.

Les pertes de charge du tube central sont mesurées à l'aide des transmetteurs de pression piézorésistifs (Rosemount) sur une gamme de 0-5bars avec une précision de 0.075%. Toutes les données ont été enregistrées grâce à une centrale d'acquisition (Labview).

La surface extérieure de l'échangeur est entièrement isolée pour minimiser les pertes de chaleur thermiques vers l'extérieur.

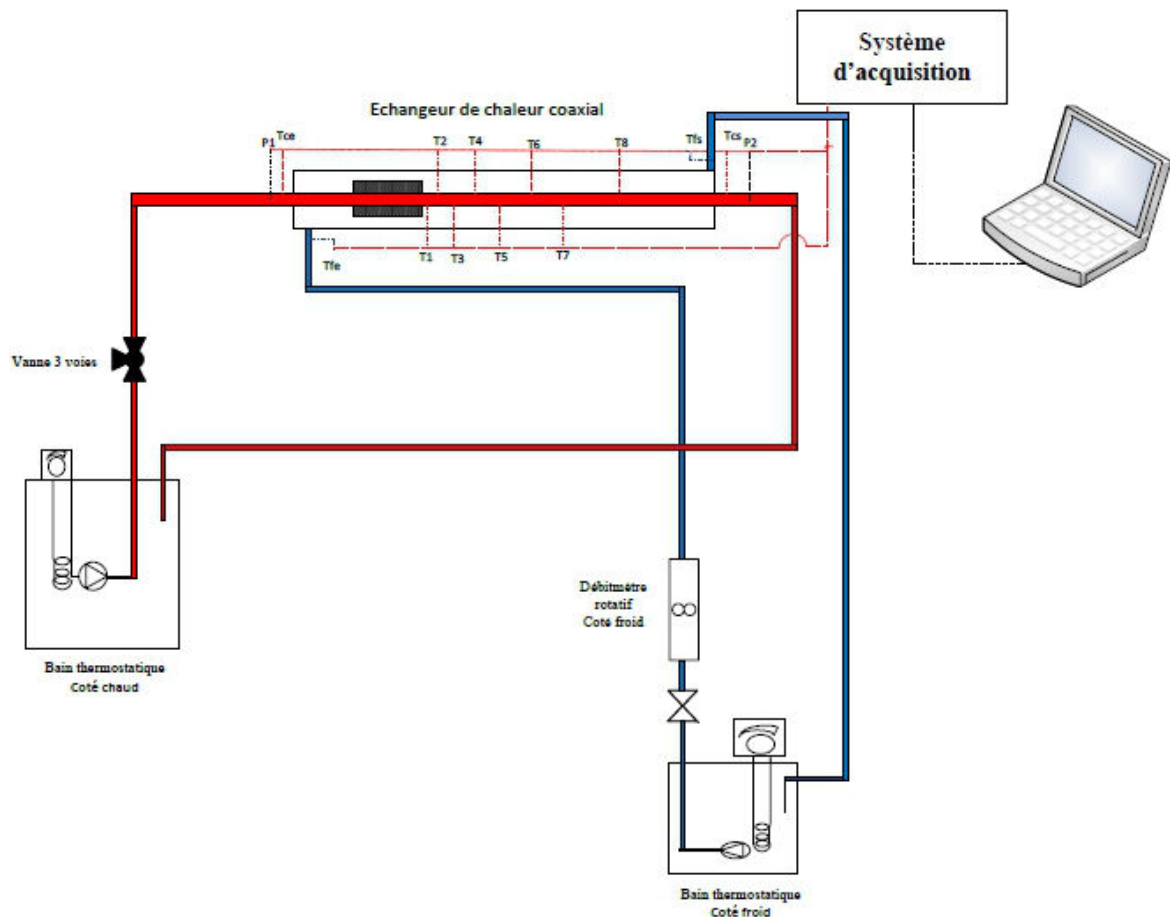


Fig. II. 21 Schéma du banc d'essai

Il est à noter qu'une zone adiabatique (figure II.22) est ajoutée en amont de la section d'essais dans le but d'avoir un profil de vitesse constant à l'entrée du tube central. Ce dispositif permet de s'assurer que les évolutions des températures axiales sont principalement liées aux échanges thermiques et non pas à l'écoulement.

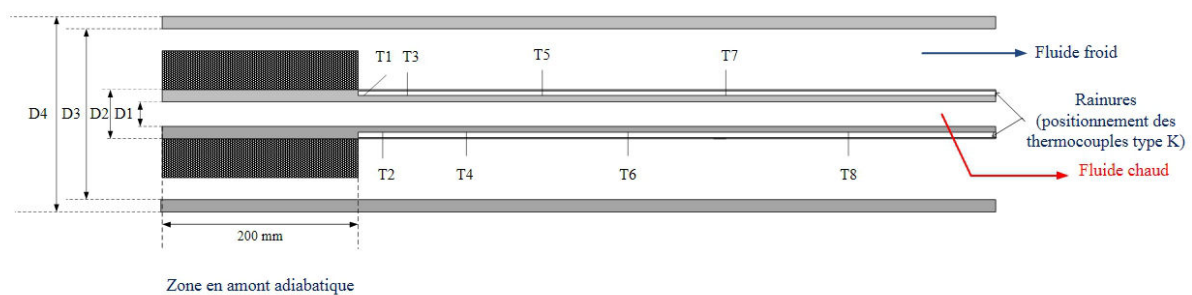


Fig. II. 22 Géométrie de l'échangeur de chaleur

II.5.3.2 Conditions de fonctionnement fixées et validation du protocole expérimental

○ Conditions de fonctionnement

Dans cette étude, l'échangeur de chaleur fonctionne à co-courant en maintenant la température d'entrée du fluide chaud à 50°C et du fluide froid à 10°C. Le débit de l'eau dans le circuit annulaire est maintenu constant (égal à 5.6l/min) pour tous les essais. Ce débit volumétrique dans l'espace annulaire est choisi très élevé, correspondant au débit maximal que peut assurer la capacité de la pompe de circulation du côté froid. Le débit dans l'espace central varie entre 0.1 et 3l/min. Pour cette gamme du débit volumique testé, la différence de la température maximale entre l'entrée et la sortie du tube annulaire ne dépasse pas 1°C (tableau II.9). Pour cette raison, nous avons pris comme hypothèse, dans le calcul des performances thermiques, que la température à la paroi externe du tube central est constante. Le débit du tube central est mesuré avec une vanne 3-voies en comptant le temps de remplissage pour un volume donné.

Les essais sont effectués d'abord sur l'eau déminéralisée dans les deux circuits (froid et chaud) pour évaluer les pertes vers le milieu extérieur et ensuite pour évaluer le coefficient de transfert convectif de l'eau dans le circuit chaud.

Tableau II.9 Différence de température dans l'espace annulaire en fonction du débit volumique (eau/eau)

Débit dans l'espace annulaire (l/min)	Débit dans le tube central (l/min)	Différence de température $\Delta T = T_{fs} - T_{fe}$ (°C)
5.6	0.31	0.98
	0.52	0.80
	0.77	0.75
	0.95	0.70
	1.16	0.58
	1.28	0.49
	1.51	0.42
	1.68	0.41
	2.07	0.39
	2.43	0.27
	2.98	0.22

○ Etude des pertes thermiques vers le milieu extérieur

L'évaluation des pertes thermiques vers le milieu extérieur est déterminée par l'équation de bilan des flux (équation II.24)

Le tableau II.10 propose des extraits de bilans énergétiques pour une configuration eau/eau en fonction du débit volumique du côté chaud de l'échangeur de chaleur. Comme pour l'échangeur en U, les pertes thermiques vers le milieu extérieur représentent 4% en moyenne de la puissance échangée du côté chaud.

Tableau II.10 extrait de bilan énergétique pour une configuration eau/eau

Débit dans l'espace annulaire (l/min)	Débit dans le tube central (l/min)	Flux absorbé par le fluide froid (W)	Flux délivré par le fluide chaud (W)	Pertes thermiques (%)
5.6	0.31	332.64	345.77	3.95
	0.52	431.83	434.69	0.66
	0.77	490.57	509.29	3.82
	0.95	502.24	519.81	3.50
	1.16	524.90	542.98	3.44
	1.28	531.97	555.49	4.42
	1.51	538.83	561.22	4.15
	1.68	542.92	567.50	4.53
	2.07	550.77	577.24	4.81
	2.43	576.48	602.22	4.46
	2.98	648.35	677.82	4.55

Il est à noter que les propriétés thermo-physiques de l'eau distillée ont été évaluées à la température moyenne du tube central (équation II.26) et du tube annulaire (II.27) (Annexe A-5)

○ Validation du protocole expérimental (grandeurs globales)

Pour valider notre protocole expérimental, nous avons comparé les valeurs expérimentales du **nombre de Nusselt moyen** obtenues pour l'eau déminéralisée circulant dans le tube central avec celles de la littérature calculées à partir des équations II.35-II.36:

En régime laminaire, nous avons comparé nos résultats expérimentaux du nombre de Nusselt moyen avec la corrélation de Sieder and Tarte [SIE/1936] (équation II.35)

$$\left\{ \begin{array}{l} Nu_{th} = 1.86 \left(\frac{Re Pr}{L / D_h} \right)^{\frac{1}{3}} \left(\frac{\mu}{\mu_p} \right)^{0.14} \\ 0.6 \leq Pr \leq 5 \\ 0.0044 \leq \frac{\mu}{\mu_p} \leq 9.75 \end{array} \right. \quad Eq.II. 35$$

Où μ et μ_p sont les viscosités dynamiques de l'eau déminéralisée prises aux températures moyennes du fluide et de la paroi respectivement.

En régime transitoire et turbulent, pour des nombre de Reynolds supérieurs à 2300, nous avons comparés nos points expérimentaux avec le modèle de Gnielinski [GNI/1976] (équation II.36):

$$\left\{ \begin{array}{l} Nu_{th} = \frac{\left(\frac{f}{8} \right) (Re - 1000) Pr}{1 + 12.7 \left(\frac{f}{8} \right)^{0.5} \left(Pr^{\frac{2}{3}} - 1 \right)} \left(\frac{Pr}{Pr_p} \right)^{0.1} \left(1 + \frac{D_h}{L} \right)^{\frac{2}{3}} \\ 0.5 \leq Pr \leq 2000 \\ 3000 \leq Re \leq 5.10^6 \end{array} \right. \quad Eq.II. 36$$

3635

Où Pr et Pr_p sont les nombres de Prandtl de l'eau déminéralisée prises aux températures du fluide moyenne et de la paroi respectivement et f le facteur de friction estimé à partir de l'équation suivante II.37.

$$Et \ f = (0.79 \ln(Re) - 1.64)^{0.5} \quad Eq.II. 37$$

La figure II.23 représente l'évolution des nombres théoriques et expérimentaux de Nusselt moyen en fonction du nombre de Reynolds. On constate que le nombre de Nusselt moyen calculé par les résultats expérimentaux est en bon accord avec celui obtenu par les corrélations théoriques avec un écart maximal d'environ 6% avec l'équation II.35 (régime laminaire), et de l'ordre de 8.5% avec l'équation II.37

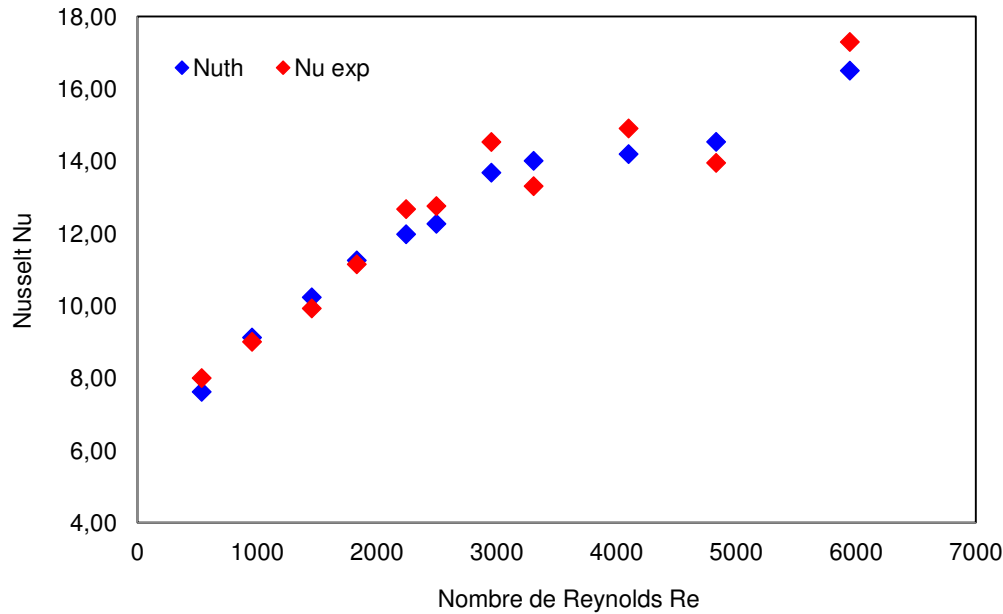


Fig. II. 23 Evolution des nombres de Nusselt théorique et expérimental de l'eau en fonction du nombre de Re

○ Validation du protocole expérimental (grandeurs locales)

Les thermocouples insérés au niveau de la surface d'échange, comme l'indique la figure II.22, mesurent les températures entre la surface interne et la surface externe du tube central. Pour déterminer la distribution de la température au niveau de la surface interne du tube central, nous avons tenu en compte de l'échange conductif entre les rainures où sont placés les thermocouples et la surface interne du tube central (figure II.22).

Pour chaque position axiale x , la densité du flux est calculée à partir de l'expression suivante :

$$q(x) = \frac{T_{th}(x) - T_a}{\lambda_{th}} e_1 \quad \text{Eq.II. 38}$$

Avec $T_{th}(x)$ la température affichée par le thermocouple à la distance axiale x (°C) et T_a la température de l'espace annulaire (°C).

λ_{th} la conductivité thermique moyenne des thermocouples ($15 \text{ W/m}^{-1} \cdot \text{K}$) et e_1 l'épaisseur de la rainure (m).

Cette densité de flux axiale peut être aussi exprimée en fonction de la température axiale de la surface interne du tube centrale $T_p(x)$ (équation II.39) :

$$q(x) = \frac{T_p(x) - T_{th}(x)}{\lambda_s} e_2 \quad \text{Eq.II. 39}$$

λ_s la conductivité thermique moyenne du tube central (acier inoxydable) (W/m⁻¹.K) ; et e_2 l'épaisseur entre le thermocouple et la surface interne du tube (m).

A partir des équations II.38 et II.39, nous pouvons estimer la température $T_p(x)$, température de la surface interne du tube central (équation II.40)

$$T_p(x) = T_{th}(x) + \frac{e_1}{e_2} \frac{\lambda_s}{\lambda_{th}} (T_{th}(x) - T_a) \quad \text{Eq.II. 40}$$

Le coefficient d'échange convectif local (W/m².K) est calculé à partir de l'équation II.41 suivante :

$$h_{ch}(x) = \frac{q_{ch}}{(T_{ch}(x) - T_p(x))} \quad \text{Eq.II. 41}$$

Où $T_{ch}(x)$ la température du fluide circulant dans le tube central à la distance axiale x est déterminée à partir de l'équation II.42 suivante [INC/2011]

$$T_{ch}(x) = T_p(x) + (T_{ch,e} - T_p(x)) \exp\left(-\frac{Px}{(\dot{m}C_p)_{ch}} \bar{h}\right) \quad \text{Eq.II. 42}$$

P est le périmètre du tube central (m) ; $\bar{h}$ est le coefficient d'échange convectif moyen du tube central.

Et enfin, le nombre de Nusselt local $Nu(x)$ est déterminé à partir de l'équation II.43 suivante

$$Nu(x) = \frac{h(x)D_h}{\lambda_{ch}} \quad \text{Eq.II. 43}$$

La figure II.24 représente l'évolution du nombre de Nusselt local de l'eau déminéralisée dans le tube central à différente distance axiale pour trois nombres de Reynolds 600, 950 et 1850. Pour des distances axiales inférieures à 0.25mm, on remarque que le nombre de Nusselt décroît avec la distance axiale, puis se stabilise pour des distances axiales supérieures à 0.25mm. On note pour $Re=600$ que les valeurs atteintes à hautes distances axiales correspondent à celles d'un régime thermiquement développé, à savoir $Nu \cong 3.66$.

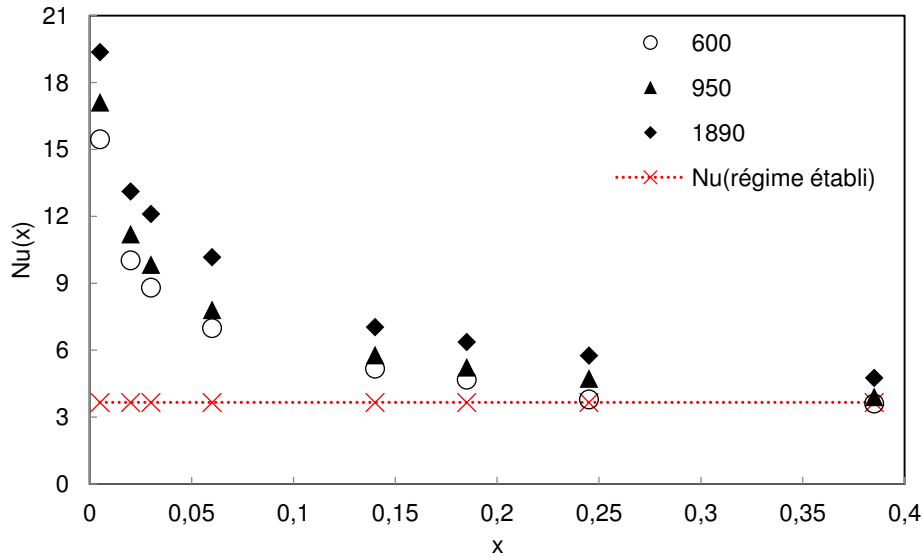


Fig. II. 24 Evolution du nombre de Nusselt local en fonction de la distance axiale en régime laminaire

La longueur d'établissement x_t (m) en régime laminaire peut être calculée à partir de l'équation II.44 [INC/2011] :

$$\frac{x_t}{D_h} \approx 0.05 \text{Re}_{D_h} \text{Pr} \quad \text{Eq.II. 44}$$

On peut également définir le nombre de Graetz en fonction de la distance axiale selon l'équation II.45 [INC/2011] :

$$Gz^{-1} = \frac{x}{D_h} \frac{1}{\text{Re}_{D_h} \text{Pr}} \quad \text{Eq.II. 45}$$

A partir des équations II.44 et II.45, on peut déduire que le régime est thermiquement développé en laminaire si la condition ci-dessous est vérifiée :

$$Gz^{-1} \geq 0.05$$

Dans le tableau II.11, on représente les valeurs de Nusselt obtenus en fonction de Gz^{-1} . Il est à noter que dans l'expression de Gz^{-1} , nous avons intégré dans le calcul de distance axiale, la longueur de la zone adiabatique (200mm) mise en amont du tube central.

En observant les valeurs obtenues de Gz^{-1} , on s'aperçoit qu'elles sont inférieures à 0.05 valeur au-dessous de laquelle la condition de régime thermiquement établi n'est plus vérifiée. On note une seule valeur supérieure à 0.05 à $\text{Re}=600$ ($Gz^{-1} = 0.012$) qui correspond à un nombre de Nusselt en accord avec la valeur théorique (3.66) en régime thermiquement établi.

Tableau II.11 Nusselt Local en fonction de Gz^{-1}

	Re=600		Re=950		Re=1890	
x	Gz^{-1}	Nu(x)	Gz^{-1}	Nu(x)	Gz^{-1}	Nu(x)
0.205	0.004	15.46	0.003	17.12	0.001	19.36
0.220	0.005	10.03	0.003	11.21	0.001	13.12
0.230	0.005	8.81	0.003	9.84	0.002	12.11
0.260	0.005	6.99	0.003	7.82	0.002	10.17
0.340	0.007	5.18	0.005	5.79	0.002	7.04
0.385	0.008	4.68	0.005	5.24	0.003	6.37
0.445	0.009	3.80	0.006	4.74	0.003	5.76
0.585	0.012	3.61	0.008	3.91	0.004	4.76

II.5.3.3 Remarques générales et incertitudes de mesure

La précision des sondes de platine et des thermocouples type K utilisées à l'entrée/sortie de l'échangeur de chaleur après étalonnage est de l'ordre de 0.1K. Dans le circuit chaud, le débit a été calculé en mesurant le temps de remplissage d'un volume donné. Cette opération a été répétée cinq fois pour chaque débit afin de minimiser les incertitudes de mesure. L'erreur relative maximale est estimée de l'ordre de 2%.

L'incertitude de calcul maximale sur le flux échangé peut être calculée à partir de l'équation II.46 issue de la métrologie développée par Moffatt 1988 [MOF/1988] :

$$\frac{\delta q_{ech}}{q_{ech}} = \left[\left(\frac{\delta \dot{m}}{\dot{m}} \right)^2 + \left(\frac{\delta C_p}{C_p} \right)^2 + \left(\frac{\delta \Delta T}{\Delta T} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq.II. 46}$$

L'incertitude maximale calculée sur le flux de chaleur échangé dans le cas le plus défavorable en s'appuyant sur l'équation II.46 est de l'ordre de 4.5%.

Des calculs similaires (non présentés ici) ont été effectués pour évaluer l'incertitude de mesure du coefficient d'échange convectif. L'incertitude maximale a été trouvée à 7.45%. Le calcul utilisé pour estimer l'incertitude sur la différence de température logarithmique moyenne DTLM est détaillé dans l'annexe 6.

Pour un écoulement en régime laminaire, il est important de prendre certaines précautions liées à la position des sondes de température. Bontemps et al. [BON/1994] ont montré que la température d'un fluide peut être très différente selon le point de mesure notamment à très faibles débits. Il existe plusieurs techniques pour remédier à ce problème, comme par exemple : répéter les expériences après des temps d'attente suffisamment longs, faire pivoter les sondes de température afin d'éliminer les bulles d'air (s'il y en a) ou encore vérifier l'équilibre des bilans énergétiques. Lors de nos mesures expérimentales, les sondes se situent

dans des doigts de gant, qui favorisent le mélange de fluide et l'homogénéisation de sa température. Pour un écoulement turbulent, ce problème est négligeable [BON/1994].

CONCLUSION

Dans ce chapitre, une description détaillée des nanofluides à base de NTC étudiés dans cette thèse a été réalisée permettant de mettre en évidence les paramètres de formulation des nanofluides dont l'influence vis-à-vis des propriétés thermo-physiques et des performances thermiques est étudiée dans la suite : rapport d'aspect des nanotubes, type de surfactant, concentration en nanotubes et éventuellement l'état de dispersion de ces nanotubes. Aussi, les différents systèmes et protocoles expérimentaux mis en œuvre pour la caractérisation des nanofluides et l'évaluation de leurs conductivités thermiques, viscosités et masses volumiques ont ensuite été présentés. Ces dispositifs ont été testés sur des fluides usuels, notamment de l'eau déminéralisée, et les protocoles expérimentaux ont été validés. Finalement, et selon le même principe, les échangeurs de chaleur (tube en U et échangeur coaxial) destinés à évaluer les performances thermiques des nanofluides ont été décrits et validés. Les équations associées à la validation et l'analyse de tels dispositifs ont également été développées. L'exploitation de ces différents dispositifs donne lieu aux résultats des chapitres suivants, à commencer par les propriétés thermo-physiques des nanofluides qui font l'objet du prochain chapitre.

Chapitre III :

Caractérisation expérimentale des propriétés thermo physiques des nanofluides à base de NTC : Résultats et discussions

INTRODUCTION

Comme nous l'avons rapporté dans le chapitre 1 à partir de nombreux exemples, l'ajout des NTC modifie considérablement les propriétés thermo-physiques du fluide de base. En effet, l'insertion des NTC dans la solution de base permet d'améliorer la conductivité thermique du nanofluide mais peut aussi conduire à une augmentation défavorable de la viscosité dynamique et modifier relativement la masse volumique et la chaleur spécifique de cette solution. En l'absence de relations et modèles fiables permettant de prédire théoriquement l'évolution de ces propriétés, il est donc nécessaire d'envisager une caractérisation expérimentale des nanofluides afin de mieux contrôler la solution utilisée.

Ainsi, ce chapitre présente les résultats de la caractérisation expérimentale des principales propriétés thermo-physiques des nanofluides étudiés (viscosité dynamique, conductivité thermique, masse volumique). Une analyse des résultats est également développée de façon à étudier l'influence de la fraction volumique, de la température, du type de surfactant et du rapport d'aspect des NTC sur leurs propriétés thermo-physiques ainsi évaluées. Les résultats seront également comparés et discutés vis-à-vis des modèles existants décrits au chapitre 1, en proposant des améliorations et des interprétations selon les tendances obtenues.

III.1 CARACTERISATION DU COMPORTEMENT RHEOLOGIQUE DES NANOFLUIDES A BASE DE NTC : RESULTATS ET ANALYSES

Dans une première partie, nous réalisons une étude complète sur le nanofluide N₁ (NC7000+SDBS) de façon à étudier l'effet de la concentration en nanotubes et l'effet de la température sur son comportement rhéologique. Ces résultats sont largement extraits de [HAL/2013]. De façon moins exhaustive, on s'intéresse dans une deuxième partie à l'influence du rapport d'aspect des nanotubes et du surfactant en comparant les résultats obtenus à 20°C pour chacun des nanofluides précédemment décrits dans le chapitre II.

III.1.1 Effet de la concentration en nanotubes et de la température : cas du Nanofluide N1

Le tableau III.1 résume les fractions massiques et volumiques des échantillons étudiés issus du nanofluide N₁, obtenus selon le protocole de dilution détaillé dans le chapitre II (partie II.1.3). Du fait du type de surfactant utilisé dans le nanofluide N1, à savoir le SDBS, la température limite haute d'étude a été fixée à 40°C. En effet, des études antérieures [WEN/2009] et [WUD/2009] ont montré que le surfactant SDBS perd de sa fiabilité à hautes températures. Assael et al. [ASS/2005] et Murshed et al. [MUR/2008] ont observé qu'à 60°C, la liaison entre les nanoparticules et le surfactant commence à se dégrader. Ceci entraîne une déstabilisation de la suspension accompagnée de sédimentation et la formation d'agrégats [WAN/2007]. Nous avons observé un comportement similaire pour le nanofluide N1 (NC7000+SDBS) à 50°C (non reporté ici). En effet, nous avons pu constater que l'évolution de la viscosité apparente au cours du cisaillement n'est pas stable et que les résultats ne sont pas reproductibles à 50°C. A l'inverse, la limite basse en température est fixée à 10°C.

Il est à noter que le passage de la concentration massique à la concentration volumique se fait en appliquant la relation suivante [MAR/2011] :

$$\varphi_v = \frac{\varphi_m \frac{\rho_{fb}}{\rho_{np}}}{\left(1 - \varphi_m \left(1 - \frac{\rho_{fb}}{\rho_{np}}\right)\right)} \quad \text{Eq.III. 1}$$

Tableau III. 1 Fractions massique et volumique des échantillons étudiés à T=20°C

Fraction massique des NTC (%)	Fraction volumique des NTC (%)	Fraction volumique du SDBS (%)
1	0.557	1.697
0.75	0.418	1.272
0.5	0.278	0.847
0.2	0.111	0.338
0.1	0.055	0.169
0.05	0.0277	0.084
0.01	0.0055	0.0169

Nous avons d’abord effectué une série de mesures préliminaires sur le fluide de base, composé d’un mélange d’eau déminéralisée et du surfactant SDBS. Les solutions testées, dont la concentration en SDBS est donnée dans le tableau III.1, correspondent au fluide de base de chacune des suspensions de NTC du nanofluide N1 testées. Le but est ici d’étudier l’impact de la fraction volumique du surfactant ajouté sur le comportement rhéologique du fluide de base, et de quantifier la viscosité de ces fluides pour évaluer ensuite la viscosité relative du nanofluide N1.

III.1.1.1 Mesures expérimentales de la viscosité dynamique du fluide de base

Sur la figure III.1, nous représentons la viscosité apparente du fluide de base à la fraction volumique 1.697% (qui correspond à la fraction volumique en NTC de 0.557% dans le nanofluide) en fonction de la vitesse de cisaillement et de la température. On note un comportement newtonien du fluide de base avec une évolution constante de la viscosité apparente avec la vitesse de cisaillement. La figure III.1 montre également que la viscosité apparente du fluide de base à 20°C est d’environ 1.129mPa.s qui est supérieure à celle de l’eau déminéralisée (1.035mPa.s). Ceci montre que l’ajout du surfactant SDBS à la fraction

volumique 1.697% se traduit par une augmentation de la viscosité apparente de l'ordre de 9%. Enfin, on remarque que la viscosité apparente du fluide de base diminue quand la température augmente.

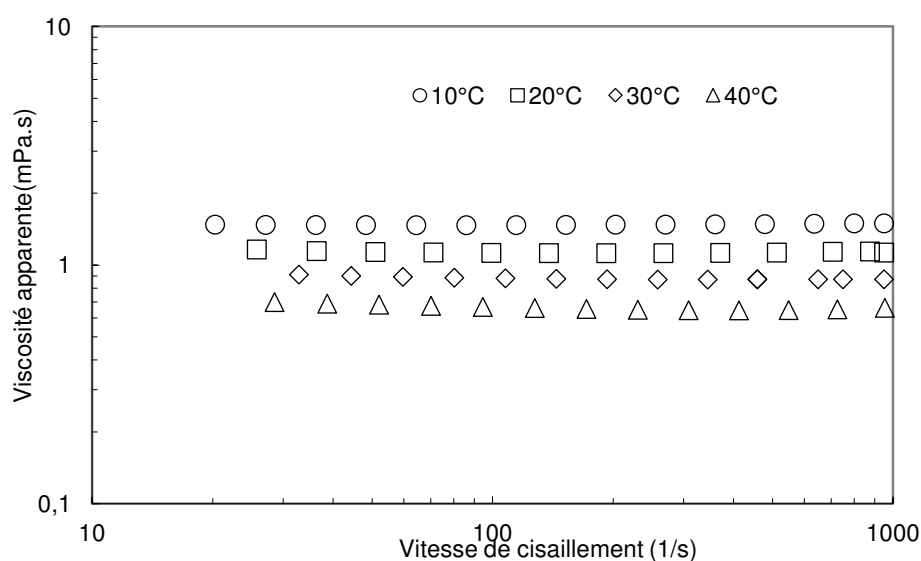


Fig.III. 1 Evolution de la viscosité apparente du fluide de base à la fraction volumique 1.697% (SDBS) en fonction de la température

Sur la figure III.2, on trace l'évolution de la viscosité apparente du fluide de base à la fraction volumique 0.017% (qui correspond à la fraction volumique en NTC de 0.0055% dans le nanofluide) en fonction de la vitesse de cisaillement et de la température. On observe que le comportement du fluide de base est newtonien, la viscosité apparente est constante quelle que soit la vitesse de cisaillement appliquée et qu'elle décroît avec la température.

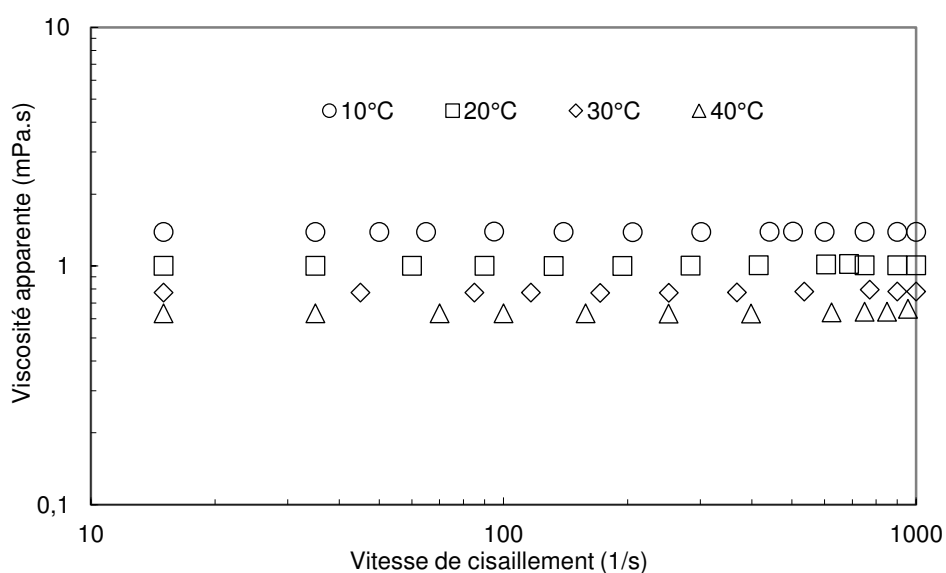


Fig.III. 2 Evolution de la viscosité apparente du fluide de base à la fraction volumique 0.017% (SDBS) en fonction de la température

Les valeurs enregistrées de la viscosité apparente sont très proches de celles de l'eau déminéralisée. Ce qui montre, qu'à la fraction volumique 0.017% de SDBS, l'ajout du surfactant n'a pas d'influence significative sur la viscosité dynamique de l'eau. Les mêmes conclusions vis-à-vis du comportement newtonien, de la concentration et de la température ont été obtenues pour l'ensemble des fluides de base.

Dans le tableau III.2, on complète les résultats de la viscosité dynamique du fluide de base (figure III.1-III.2) pour les fractions volumiques entre 1.697 et 0.017%.

Tableau III. 2 Viscosité dynamique du fluide de base (eau distillée + surfactant)

Fraction volumique des NTCs (%)	Fraction volumique du SDBS (%)	Fraction massique associée du SDBS (%)	Viscosité dynamique du fluide de base (mPa.s)			
			10(°C)	20(°C)	30(°C)	40(°C)
0.557	1.697	2	1.478	1.129	0.877	0.665
0.418	1.272	1.5	1.454	1.102	0.852	0.657
0.278	0.847	1	1.401	1.077	0.828	0.648
0.111	0.338	0.4	1.391	1.046	0.799	0.637
0.055	0.169	0.2	1.386	1.036	0.789	0.633
0.0277	0.084	0.1	1.383	1.027	0.784	0.632
0.0055	0.017	0.05	1.382	1.026	0.78	0.63

On observe d'après le tableau III.2 que la viscosité dynamique du fluide de base augmente sensiblement avec la fraction volumique du SDBS. Ce qui montre que l'ajout du surfactant augmente relativement la viscosité dynamique du fluide de base.

Pour des faibles fractions volumiques (inférieures à 0.169% ce qui correspond à la fraction volumique des NTC 0.055%), la viscosité dynamique du fluide de base tend vers celle de l'eau et la présence du surfactant n'a pas d'influence significative sur la viscosité dynamique du mélange.

III.1.1.2 Effet de la fraction volumique des NTC

La figure III.3 montre l'évolution de la viscosité apparente du nanofluide en fonction de la fraction volumique à 20°C. On observe tout d'abord que la viscosité apparente augmente avec la fraction volumique des NTC et que le comportement rhéologique du nanofluide dépend fortement de la fraction volumique en NTC. Pour des fractions volumiques inférieures à une fraction critique de 0.055%, le nanofluide a un comportement newtonien sur toute la gamme de vitesse de cisaillement étudiée. Au-delà de cette concentration, on observe un comportement rhéofluidifiant à faibles vitesses de cisaillement qui est d'autant plus prononcé

que la fraction volumique est élevée. Ce comportement rhéofluidifiant se traduit par une évolution de la viscosité apparente qui décroît quand la vitesse de cisaillement augmente.

Enfin, il est à noter aussi que les valeurs de la viscosité apparente enregistrées à faibles fractions volumiques (inférieures à 0.055%) sont très proches de celles des fluides de base.

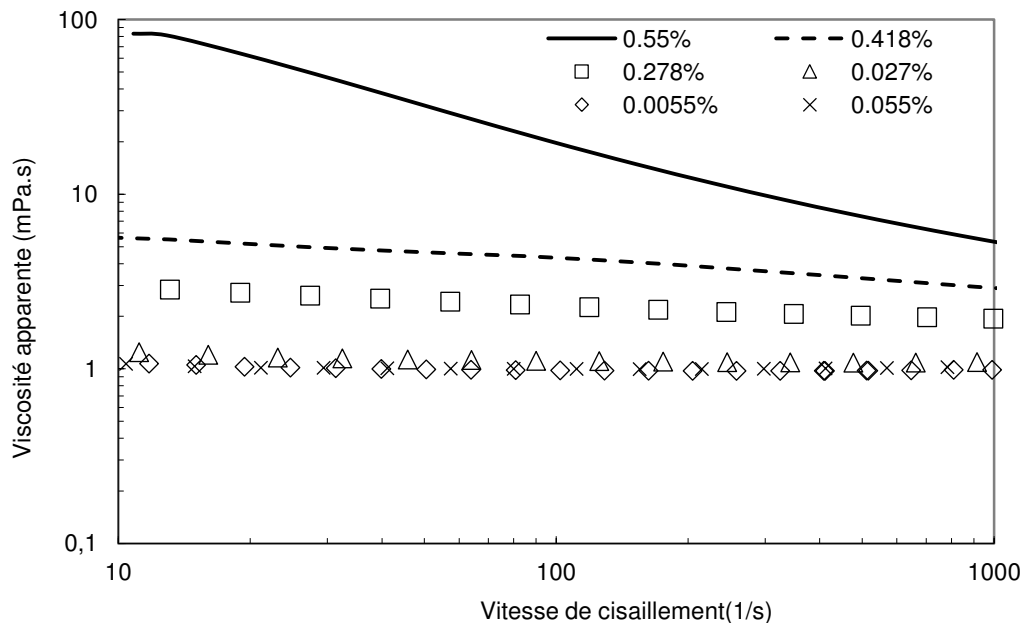


Fig.III. 3 Evolution de la viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement pour différentes fractions volumiques à 20°C

Ces résultats confirment ce qui a été reporté par Kinloch et al. [KIN/2002] et Ding et al. [DIN/2006] pour des fractions massiques comprises entre 0.1 et 0.5%. En effet, Ding et al. [DIN/2006] ont montré que pour des concentrations massiques entre 0.1 et 0.5%, le comportement rhéologique d'un nanofluide composé de MWCNT dispersés dans l'eau et stabilisés avec le surfactant gomme arabique, est rhéofluidifiant à faibles taux de cisaillement et devient newtonien pour des taux de cisaillement élevés.

Enfin, il est important de signaler que cette évolution de la viscosité dynamique apparente en fonction de la fraction volumique des NTC est similaire quelle que soit la température de fonctionnement étudiée.

III.1.1.3 Effet de la température

Nous cherchons ici à étudier l'effet de la température sur le comportement rhéologique du nanofluide. Pour cela, nous représentons l'évolution de la viscosité apparente en fonction de la température à deux fractions volumiques (0.278% et 0.0055%) pour lesquelles le comportement du nanofluide est différent (figures III.4 et III.5).

On observe à partir des figures (III.4 et III.5) que la viscosité apparente du nanofluide diminue quand la température augmente dans la gamme de température étudiée (entre 10 et 40°C).

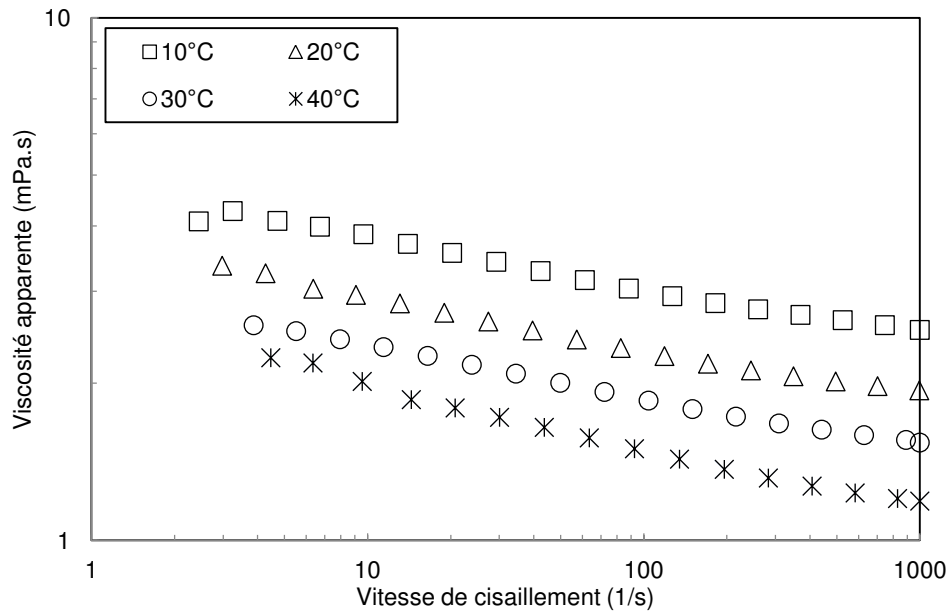


Fig.III. 4 Evolution de la viscosité apparente en fonction de la température pour une fraction volumique de 0.278%

On note un comportement rhéofluidifiant du nanofluide avec une viscosité apparente qui diminue quand le taux de cisaillement augmente pour toutes les températures à la fraction volumique 0.278% (figure III.4).

A la fraction volumique 0.0055%, on note un comportement newtonien du nanofluide pour toutes les températures (figure III.5).

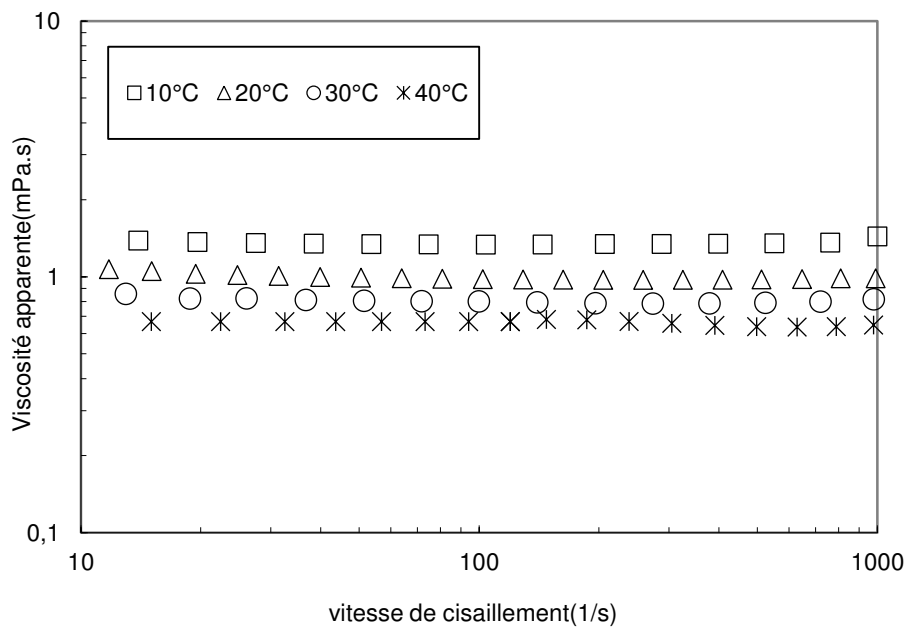


Fig.III. 5 Evolution de la viscosité apparente en fonction de la température à 0.0055%

Les résultats montrent également que l'allure de la courbe de l'évolution de la viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement (ou le comportement rhéologique) est relativement indépendante de la température appliquée et que le comportement rhéologique est fortement lié à la fraction volumique des NTC.

A partir de l'ensemble des résultats expérimentaux concernant les fluides de base (tableau II.4), et les nanofluides, nous sommes en mesure de tracer l'évolution de la viscosité relative (μ_{nf}/μ_{fb}) en fonction de la température pour toutes les fractions volumiques testées.

III.1.1.4 Viscosité relative du nanofluide en fonction de la température à hautes vitesses de cisaillement

La figure III.6 illustre l'évolution de la viscosité relative du nanofluide en fonction de la température à différentes fractions volumiques pour un taux de cisaillement élevé de l'ordre de $1000s^{-1}$. Ainsi, nous pouvons remarquer une évolution quasi-constante de la viscosité relative en fonction de la température. Ce qui signifie que la température n'a pas d'effet significatif sur le rapport de la viscosité dynamique du nanofluide par rapport à celle du fluide de base. Ces résultats rejoignent ceux de Chen et al. [CHE/2008] qui ont trouvé que la température n'a pas d'effet significatif sur la viscosité relative d'un nanofluide composé de NTC dispersés dans l'éthylène glycol pour des températures comprises entre 10 et 40°C. Ils ont montré que l'effet de la température devient non négligeable à des températures supérieures à 55°C.

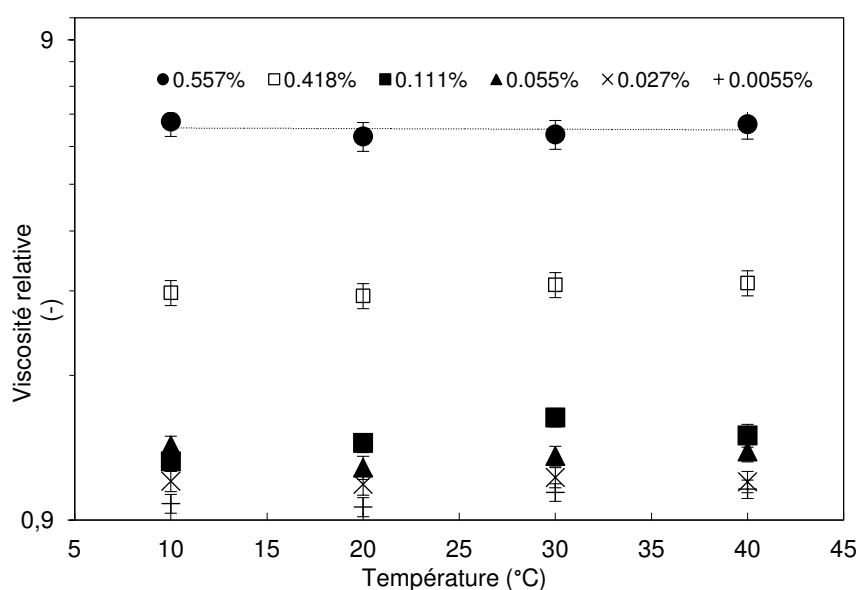


Fig.III. 6 Evolution de la viscosité relative en fonction de la température

A partir des résultats de la figure III.6, on peut également représenter l'évolution de la viscosité relative en fonction de la fraction volumique à différentes températures (figure III.7). Nous cherchons ici à interpréter l'évolution de la viscosité relative du nanofluide N1 pour déterminer les paramètres déterminants associés à ce comportement. Pour cela, nous

proposons dans cette partie une analyse comparative des résultats expérimentaux avec les modèles de la littérature usuellement utilisés et reportés au chapitre 1.

III.1.1.5 Comparaison avec les modèles de la littérature

On observe à partir de la figure III.7 un écart important, notamment pour des fractions volumiques de NTC supérieures à 0.027%, entre les points expérimentaux et les modèles de viscosité dynamique précédemment décrits dans le chapitre bibliographique de type Einstein (Eq. III.2), Brinkman (Eq.III.3), Brenner-Condifff (Eq.III.4) ou encore Maron & Pierce (Eq. III.5). On note également une augmentation très marquée de la viscosité relative expérimentale avec la fraction volumique.

$$\mu_{nf} = \mu_{fb}(1 + 2.5\varphi_v) \quad \text{Eq.III. 2}$$

$$\mu_{nf} = \mu_{fb} \frac{1}{(1 - \varphi_v)^{2.5}} \quad \text{Eq.III. 3}$$

$$\mu_r = (1 + \eta\varphi_v) \quad \text{Eq.III. 4}$$

$$\text{Avec } \eta = \frac{0.312r_a}{\ln 2r_a - 1.5} + 2 - \frac{0.5}{\ln 2r_a - 1.5} - \frac{1.872}{r_a}$$

$$\mu_r = \left(1 - \frac{\varphi_v}{\varphi_M}\right)^{-2} \quad \text{Eq.III. 5}$$

φ_v et φ_M sont respectivement la fraction volumique des NTC dans le fluide de base et la fraction volumique maximale des NTC dans une suspension ; r_a est le rapport d'aspect des NTC.

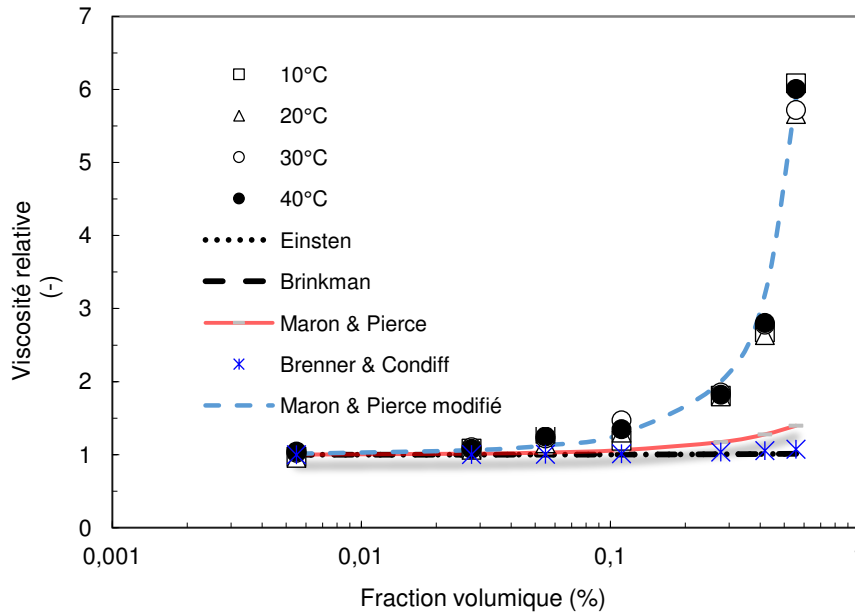


Fig.III. 7 Evolution de la viscosité relative en fonction de la fraction volumique

Comme nous l'avons mentionné dans l'étude bibliographique du chapitre 1, les modèles classiques d'Einstein et de Brinkman peuvent être valides pour des suspensions de particules sphériques et ne tiennent pas compte de l'effet de la taille/forme ni des interactions entre les nanoparticules. C'est en partie pour cela que ces deux modèles ne permettent pas de reproduire l'évolution de la viscosité relative du nanofluide. Le modèle de Brenner et Condif (Eq. III.4) intègre l'effet de la forme des nanoparticules et il peut éventuellement être appliqué pour des suspensions à base de NTC dont la fraction volumique peut aller jusqu'à $1/r_a^2$ (ce qui correspond dans notre étude à 0.004%). Cela explique qu'à des fractions volumiques relativement élevées (supérieures à 0.027%), ce modèle ne parvient pas à reproduire nos points expérimentaux.

Enfin, le modèle de Maron-Pierce (Eq. III.5) basé sur la fraction volumique maximale ϕ_M (voir chapitre I) peut être utilisé pour prédire l'évolution de la viscosité relative des suspensions à base de nanoparticules sphériques [KOL/2011], en forme de tige (*Rod-like particle*) [CHE2/2009] ou encore des suspensions à base de fibres [MUE/2010]. Mueller et al. [MUE/2010] ont reporté que la fraction volumique maximale ϕ_M diminue quand le rapport d'aspect des fibres augmente selon l'équation III.6. Nous avons appliqué cette équation à nos résultats expérimentaux pour le nanofluide étudié et nous avons obtenu une valeur très faible de ϕ_M d'environ 0.0361 due au rapport d'aspect élevé des NTC utilisés (ici $r_a \approx 160$). Cette valeur est faible en comparaison à celle utilisée dans le cas des suspensions à base de

nanoparticules sphériques qui est de l'ordre de 0.65, montrant ainsi l'effet de la forme des nanoparticules.

$$\varphi_M = \frac{2}{0.321r_a + 3.02} \quad \text{Eq.III. 6}$$

On observe à partir de la figure III.7, un écart entre l'évolution de la viscosité relative expérimentale et celle prédite par le modèle de Maron-Pierce notamment pour des fractions volumiques élevées. Ce comportement du nanofluide en fonction de la fraction volumique peut être expliqué par la présence d'interactions entre les particules qui conduit à la formation des agrégats et affecte ainsi l'homogénéité de la suspension (voir cliché SEM-N1 figure II.2 chapitre II). Ces interactions augmentent avec la fraction volumique des NTC. Nous allons étudier par la suite la pertinence de ces hypothèses pour trouver un modèle adéquat permettant de prédire les résultats expérimentaux.

○ Effet de la présence des agrégats

En cas de présence d'agrégats, l'augmentation de la viscosité relative peut être décrite en s'appuyant sur la notion de dimension fractale [WOL/1996] (voir chapitre I). En effet, les agrégats sont des amas dont la structure fractale peut être définie par un index fractal D, qui permet de définir une fraction volumique d'agrégats φ_a selon la loi de l'équation III.7. Dans cette équation, on suppose que la densité des agrégats change avec la position radiale et qu'elle n'est pas uniforme au sein du nanofluide [CHE3/2009].

$$\varphi_a = \varphi \left(\frac{d_a}{d_p} \right)^{3-D} \quad \text{Eq.III. 7}$$

d_p et d_a sont respectivement le diamètre moyen de la particule et le diamètre d'agrégat.

En intégrant la notion de dimension fractale dans l'équation III.5, on obtient le modèle de Maron-Pierce modifié qui tient compte, en plus de la forme des NTC, de la présence éventuelle des agrégats et de leur structure.

$$\mu_r = \left(1 - \frac{\varphi_a}{\varphi_M} \right)^{-2} \quad \text{Eq.III. 8}$$

Comme nous l'avons mentionné, l'indice fractal D peut dépendre de plusieurs paramètres dont le type, la forme et la taille des particules agrégées et l'état de cisaillement. Il est

généralement compris entre 1.5 et 2.5. Pour des suspensions de particules en forme de nanotube, l'index fractal D varie entre 1.5 et 2.45 [CHE3/2009].

Mohraz et al. [MOH/2004] ont montré que l'indice fractal dépend du rapport d'aspect pour les nanotubes. Dans leurs analyse, D augmente de 1.8 à 2.3 pour un rapport d'aspect allant de 1 à 30.6 respectivement. Une valeur de 2.1 est généralement utilisée [MOH/2004][LIN/2007][CHE2/2009]. En s'appuyant sur les résultats des travaux antérieurs, nous avons utilisé cette valeur pour l'indice fractal D .

D'après la figure III.7, le modèle de Maron-Pierce modifié est compatible avec l'évolution de la viscosité relative obtenue expérimentalement et permet de déterminer la dimension caractéristique des agrégats d_a . On obtient alors, pour le nanofluide étudié, un rapport d_a/d_p de l'ordre de 4.41. Par conséquent, en prenant d_p comme la longueur moyenne d'un NTC, la taille maximale des agrégats est de l'ordre de 6.6 μ m. Cette valeur est en accord avec celle déterminée expérimentalement à l'aide de la visualisation SEM précédemment présentée dans le chapitre II et rappelée ci-après (figure III.8).

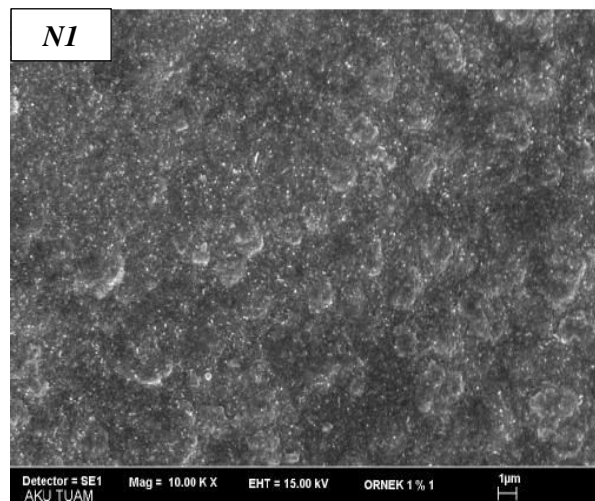


Fig.III. 8 Photographies SEM des NTC

Les résultats de la modélisation montrent d'une part que la température n'a pas d'effet significatif sur l'évolution de la viscosité relative, et d'autre part, que cette évolution dépend fortement du rapport d'aspect des NTC et de la taille des agrégats formés malgré la présence du surfactant SDBS.

Dans la partie suivante, on s'intéresse à l'influence du rapport d'aspect des NTC et du type de surfactant en comparant les résultats obtenus à 20°C pour chacun des nanofluides précédemment décrits dans le chapitre II.

III.1.2 Effet du type de surfactant et du rapport d'aspect

Dans cette partie, nous présentons l'effet du type de surfactant sur le comportement rhéologique des fluides de base. Cette étude est réalisée pour deux concentrations massiques 2% et 0.2% qui correspondent aux fractions massiques 1% et 0.1% en NTC des nanofluides

testés (tableau III.2). Ce choix de concentrations est inspiré des résultats représentés dans la section III.1.1.1 sur le comportement rhéologique du fluide de base eau+SDBS.

III.1.2.1 Mesures expérimentales de la viscosité dynamique du fluide de base

Sur les figures III.9 et III.10, nous représentons respectivement les évolutions de la viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement des fluides de base associés aux nanofluides N1, N2 et N3 à 20°C aux fractions massiques 2 et 0.2%.

Rappel : les surfactants SDBS (Dodécylbenzenesulfonate), L (Lignine) et O (Polycarboxylate de sodium soluble dans l'eau) sont utilisés pour stabiliser respectivement les nanofluides N1, N2 et N3.

Comme le montrent les figures suivantes, la viscosité apparente des fluides de base pour les concentrations en surfactant testées est constante quelle que soit la vitesse de cisaillement appliquée montrant ainsi un comportement newtonien de ces fluides de base.

On observe qu'à la fraction massique 2% (figure III.9), la viscosité apparente des fluides de base est relativement élevée par rapport à celle de l'eau déminéralisée. On note ainsi une augmentation importante due à l'ajout du surfactant O de l'ordre de 50% et une augmentation modérée pour les deux autres surfactants, de l'ordre de 9% pour le SDBS et de l'ordre de 4% pour le surfactant L.

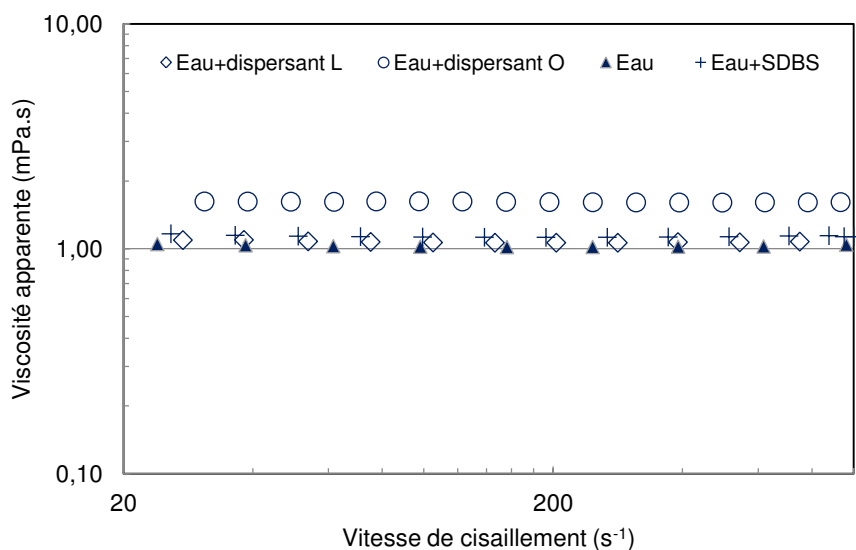


Fig.III. 9 Evolution de la viscosité apparente des fluides de base à la fraction massique 2% à 20°C

Les valeurs mesurées de la viscosité apparente des fluides de base à faible concentration (0.2%) sont similaires à celles de l'eau déminéralisée (figure III.10). Ceci montre, qu'à la fraction massique 0.2%, l'ajout du surfactant n'a pas d'influence significative sur la viscosité dynamique de l'eau et cela quel que soit le type du surfactant.

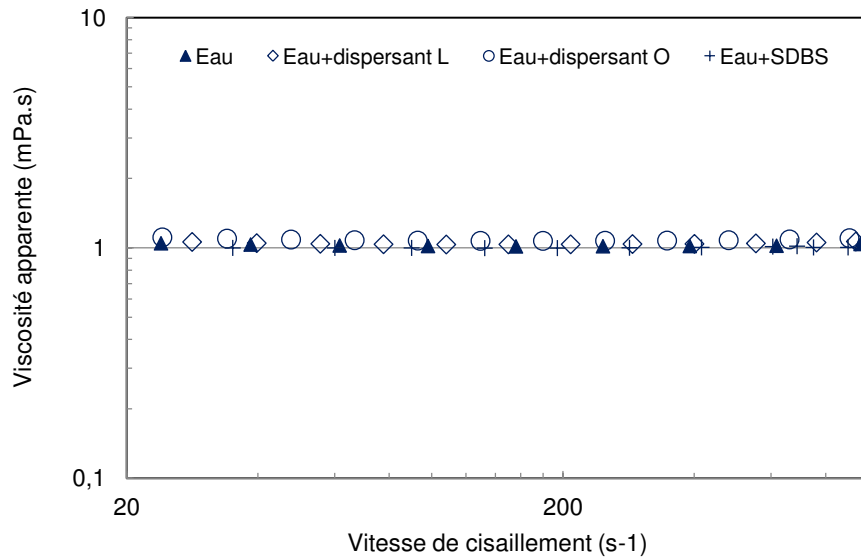


Fig.III. 10 Evolution de la viscosité apparente des fluides de base à la fraction massique 0.2% à 20°C

III.1.2.2 Effet du type de surfactant

Pour étudier l'effet du type de surfactant sur la viscosité dynamique des nanofluides, nous comparons les trois nanofluides N1, N2 et N3. Ces nanofluides ont le même type de NTC et diffèrent par le type de surfactant utilisé pour stabiliser les NTC (voir tableau II.2 chapitre II).

Pour mettre en évidence l'effet du type de surfactant sur le comportement rhéologique, nous présentons les résultats pour deux concentrations volumiques inférieures et supérieures à 0.055% (figures III.11 et III.12). Le choix de ces concentrations se base sur les résultats obtenus précédemment dans la section III.1.1.2 où l'on montre qu'au-dessous de la fraction volumique 0.055% (0.1% en masse), le comportement rhéologique du nanofluide est quasi-identique en fonction de la fraction des NTC.

Sur la figure III.11, nous représentons l'évolution de la viscosité dynamique apparente des nanofluides N1, N2 et N3 de concentration volumique 0.0277% en fonction du taux de cisaillement.

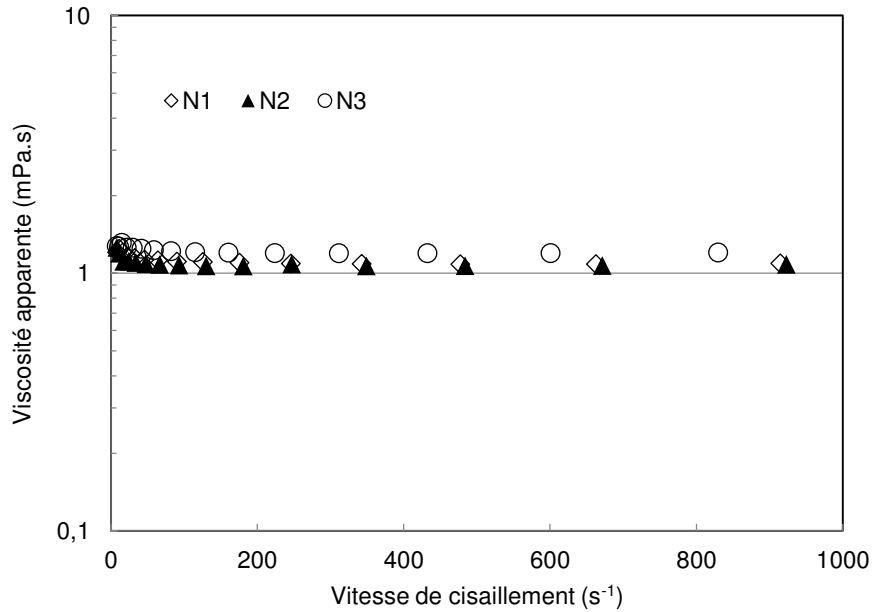


Fig.III. 11 Evolution de la viscosité dynamique apparente à la concentration volumique 0.0277 %

On constate d'après la figure III.11 que l'écart entre les courbes d'évolution de la viscosité dynamique apparente des trois nanofluides est relativement négligeable. Ce qui confirme que l'effet du surfactant utilisé n'a pas d'effet significatif sur la viscosité dynamique des nanofluides pour de faibles fractions volumiques en NTC.

La figure III.12 montre l'évolution de la viscosité dynamique apparente des nanofluides en fonction de la vitesse de cisaillement à la fraction volumique de 0.557%.

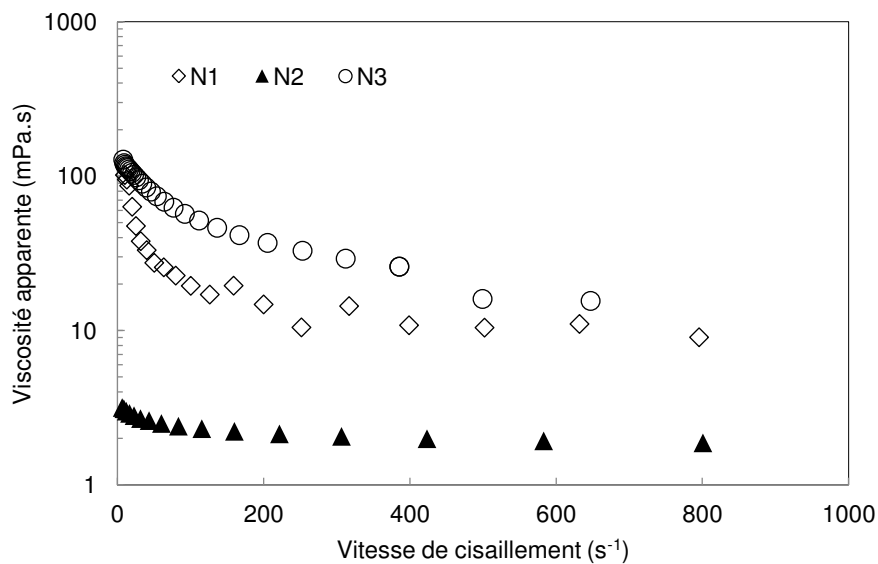


Fig.III. 12 Evolution de la viscosité dynamique apparente à la concentration volumique 0.557%

On remarque tout d'abord un comportement rhéofluidifiant marqué des nanofluides N1 et N3 à faibles taux de cisaillement. Quant au nanofluide N2, il se comporte comme un fluide rhéofluidifiant, mais ce comportement est moins marqué et l'étendue de la zone de rheofluidification (diminution de la viscosité avec le taux de cisaillement) est plus faible. On note aussi un écart très important entre les viscosités dynamiques apparentes des trois nanofluides. Le résultat le plus remarquable est que cette tendance vis-à-vis du type de surfactant utilisé rejoint celle observée pour les fluides de base. L'écart entre les trois courbes peut être attribué alors au type de surfactant utilisé qui gouverne les interactions entre les NTC et l'homogénéité des suspensions.

A partir de l'ensemble des résultats expérimentaux de la viscosité dynamique des nanofluides et des fluides de base associés, on représente sur la figure III.13 l'évolution de la viscosité relative des trois nanofluides N1, N2 et N3 en fonction de la concentration volumique des NTC à hautes vitesses de cisaillement à 20°C.

○ Viscosité relative et modélisation

On remarque d'après la figure III.13 que le modèle de Maron & Pierce modifié est compatible avec nos résultats expérimentaux de l'évolution de la viscosité relative pour les deux nanofluides N1 et N3. Ce modèle permet de déterminer la dimension caractéristique d'agrégats.

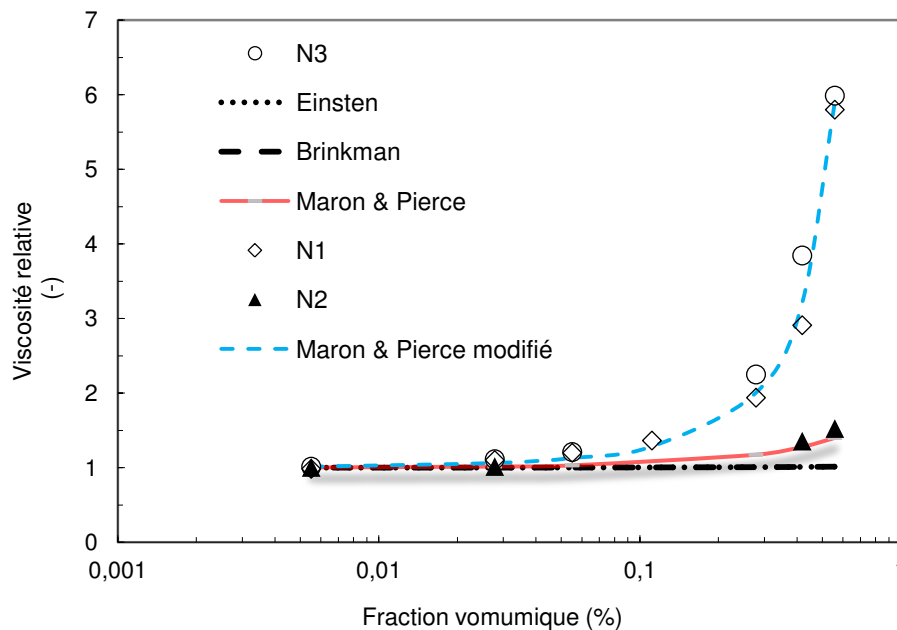


Fig.III. 13 Evolution de la viscosité relative des nanofluides N1, N2 et N3 en fonction de la fraction volumique à 20°C

On obtient pour le nanofluide N1, comme nous avons mentionné précédemment, un rapport d_a/d_p de l'ordre de 4.41 et pour le nanofluide N3 un rapport de l'ordre de 4.44.

Pour le nanofluide N2, on constate que le modèle de Maron & Pierce initial (équation III.5) permet largement d'ajuster l'évolution expérimentale de la viscosité relative. Ces résultats nous montrent que les NTC dans le nanofluide N2 sont bien dispersés et qu'ils ne sont pas agglomérés.

On remarque d'après ces résultats que le type de surfactant peut jouer un rôle primordial pour assurer une bonne dispersion des NTC (sans présence d'agrégats). Les résultats obtenus nous confirment que le surfactant L (lignine) est le mieux adapté parmi les trois surfactants testés à hautes concentrations où les interactions entre les NTC sont plus importantes. A faibles concentrations, le type de surfactant utilisé n'a pas d'effet significatif sur l'état de dispersion et sur la viscosité des NTC.

III.1.2.3 Effet du rapport d'aspect

Il existe peu de publications dans la littérature concernant l'influence du rapport d'aspect sur la viscosité dynamique des nanofluides à base de NTC [GAR/2009]. Nous envisageons donc dans cette partie d'étudier l'effet de trois types de NTC précédemment décrits :

Il s'agit du NC7000 dont le rapport d'aspect est d'environ 160, du CNTA de rapport d'aspect d'environ 90 et du CNTB de rapport d'aspect d'environ 60.

Nous avons comparé le comportement rhéologique du nanofluide N1 avec N5 et du nanofluide N3 avec N4 (tableau II.2) pour deux concentrations massiques 0.05% et 0.5%. Nous avons opté pour ce choix afin d'avoir des nanofluides avec le même type de surfactant et des nanotubes de rapport d'aspect différent.

Rappel : les nanofluides N1 et N3 sont composés des NTC de type NC7000 ; les nanofluides N4 et N5 sont composés respectivement des NTC de type CNTA et CNTB.

Sur les figures III.14 et III.15, nous représentons l'évolution de la viscosité apparente des nanofluides étudiés en fonction de la vitesse de cisaillement pour les deux concentrations massiques 0.5 et 0.05%. Il est important de signaler que dans cette partie nous avons choisi de comparer le comportement rhéologique des nanofluides à la même fraction massique au lieu de la fraction volumique car les NTC (NC7000, CNTA et CNTB) utilisés n'ont pas la même masse volumique. En plus, lors du processus de préparation des échantillons (dilutions des solutions mères), nous avons opté pour les mêmes fractions massiques des nanofluides qui varient entre 0.01 et 1%. On peut cependant noter qu'à ces concentrations massiques, les concentrations volumiques sont présentées dans le tableau suivant :

Tableau III.3. Fractions massiques /volumiques des nanofluides à base de NC7000, CNTA et CNTB

Fraction massique (%)	Fraction volumique associée (%)		
	Nanofluides à base de NC7000	Nanofluides à base de CNTA	Nanofluides à base de CNTB
1	0.557	0.4897	0.4463
0.5	0.278	0.3276	0.3074
0.2	0.111	0.1086	0.0999
0.1	0.055	0.0513	0.0470
0.05	0.0277	0.0250	0.0228
0.01	0.0055	0.0049	0.0045

Les figures III.14 montrent qu'à la concentration massique 0.05%, les courbes d'évolution des viscosités dynamiques apparentes des nanofluides restent très proches. Ceci n'est cependant pas le cas à la fraction massique 0.5% pour laquelle les nanofluides N3 et N1 qui sont composés des NTC avec le plus grand rapport d'aspect (environ 160) sont plus visqueux comparés aux nanofluides N4 et N5 de rapports d'aspect inférieurs (environ 90 pour N4 et 60 pour N3).

Ces résultats montrent que l'influence du rapport d'aspect des NCT n'est pas significative à faibles concentrations et que pour des concentrations relativement élevées, les nanofluides composés de NTC sont d'autant plus visqueux que le rapport d'aspect des NTC est élevé.

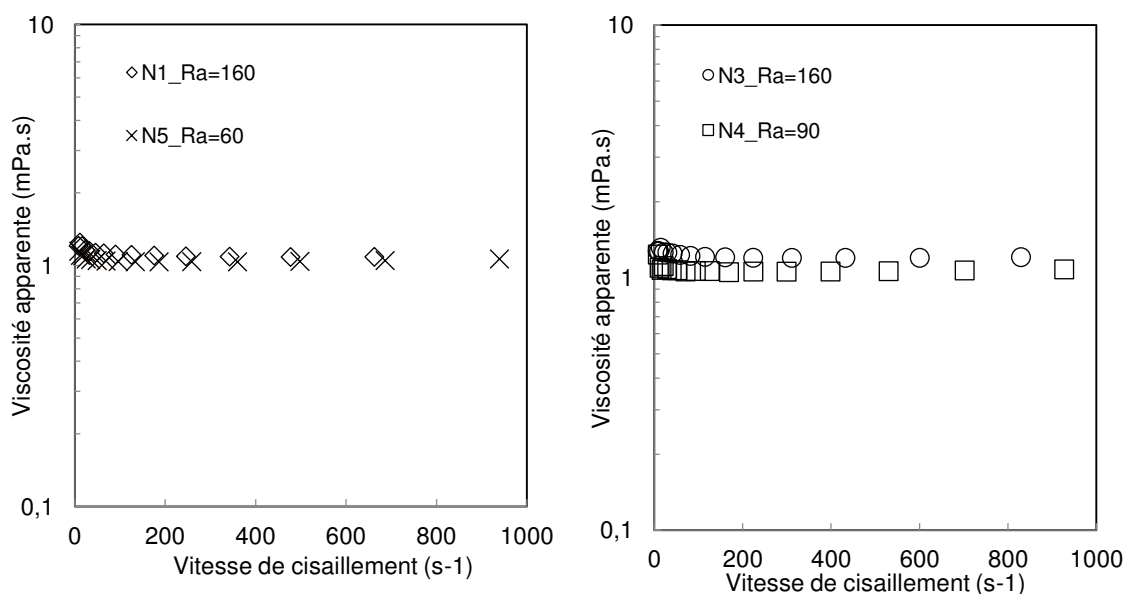


Fig.III. 14 Evolution de la viscosité dynamique apparente à la concentration massique 0.05%

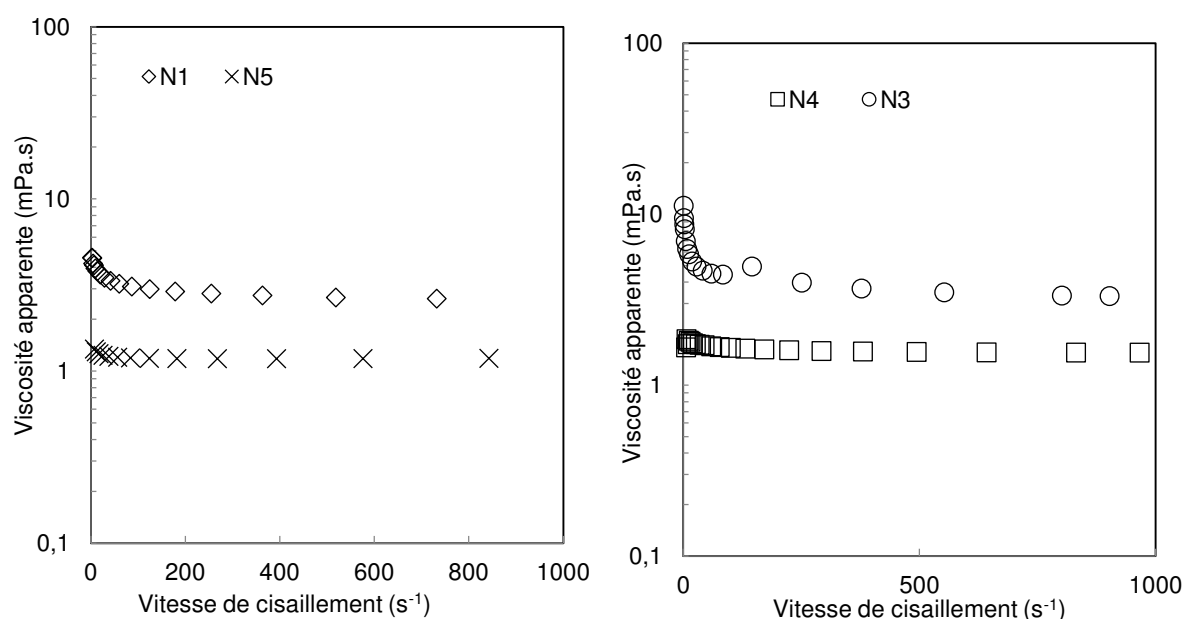


Fig.III. 15 Evolution de la viscosité dynamique apparente à la concentration massique 0.5%

A partir de ces résultats et des évolutions de la viscosité dynamique des nanofluides et des fluides de base associés, on représente sur les figures III.16-a et III.16-b respectivement les évolutions des viscosités relatives des nanofluides N1 et N5, et des nanofluides N3 et N4 en fonction de la fraction massique à fort taux de cisaillement i.e. à la vitesse de cisaillement de 1000s^{-1} .

○ Viscosité relative et modélisation

Les résultats des figures III.16-a et III.16-b confirment qu'à faibles concentrations (inférieures à 0.1% massique), les viscosités relatives des nanofluides testés sont très proches.

Pour des concentrations massiques supérieures à 0.1%, on note un écart entre les courbes qui croît avec la fraction massique des NTC.

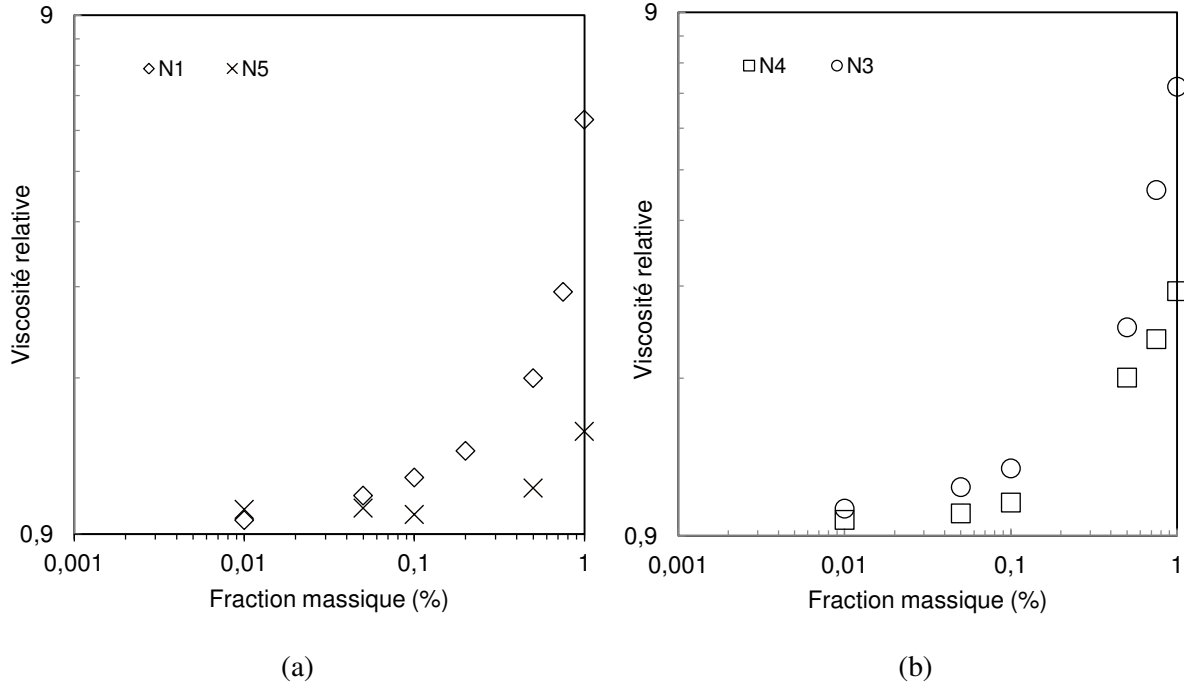


Fig.III. 16 Evolution de la viscosité relative des nanofluides en fonction de la fraction volumique à 20°C (a) Nanofluides N1 ($Ra \cong 160$) et N5 ($Ra \cong 60$); (b) Nanofluides N3 ($Ra \cong 160$) et N4 ($Ra \cong 90$)

○ Modélisation de l'évolution de la viscosité relative

Les résultats précédemment présentés sur la figure III.13 montrent que le modèle de Maron & pierce modifié représente assez bien les évolutions des viscosités relatives mesurées pour les nanofluides N1 et N3. Nous avons testé la validité de ce modèle sur les nanofluides N4 et N5.

Sur les figures III.17-a et III.17-b, on retrace l'évolution de la viscosité relative respectivement du nanofluide N4 et du nanofluide N5 en fonction de la concentration massique des NTC à hautes vitesses de cisaillement à 20°C.

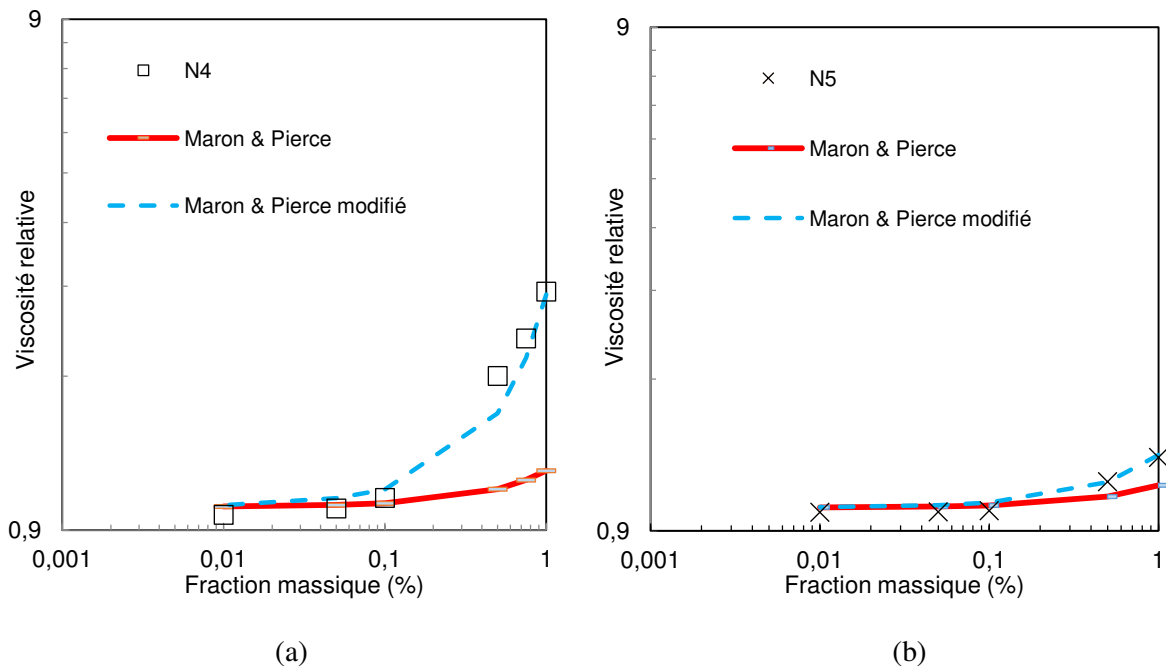


Fig.III. 17 Evolution de la viscosité relative des nanofluides en fonction de la fraction massique (a) Nanofluides N1 et N5; (b) Nanofluides N3 et N4: Modélisation

On remarque que le modèle de Maron & Pierce modifié (équation III.8) permet de reproduire les évolutions de la viscosité expérimentales des deux nanofluides N4 et N5. Ceci montre que les interactions entre les particules ne sont pas négligeables et confirme la présence d'agrégats. Pour les points théoriques du modèle de Maron & Pierce modifié, la fraction volumique maximale ϕ_M est estimée à 0.063 pour le nanofluide N4 et à 0.090 pour le nanofluide N5 du fait des rapports d'aspect des NTC. Ces résultats permettent ainsi d'évaluer la dimension caractéristique des agrégats (équation III.7). Nous obtenons pour le nanofluide N4, un rapport d_a/d_p de l'ordre de 5.6 et de l'ordre de 2.5 pour le nanofluide N5. Par conséquent, en prenant d_p comme la longueur moyenne d'un NTC, la taille maximale des agrégats est d'environ $5.6\mu\text{m}$ pour le nanofluide N4 et d'environ $2.5\mu\text{m}$ pour le nanofluide N5. Ces valeurs concordent avec les résultats de la visualisation SEM présentés dans le chapitre II (figures II.2).

Ces résultats tendent à montrer que l'état de dispersion des nanotubes, associé à la possibilité de formation d'agrégats, est corrélé au rapport d'aspect des nanotubes.

Remarque

Pour le nanofluide N5 initialement envisagé dans cette étude, nous n'avons pas pu aller plus loin car nous avons constaté lors des essais expérimentaux que ce nanofluide n'est pas stable et se déstructure à des températures supérieures à 20°C comme le montrent les clichés de la figure III.18.



Fig.III. 18 Destruction du nanofluide N5 (CNTB/eau+SDBS) à 40°C

III.1.3 Bilan sur la caractérisation du comportement rhéologique

L'étude expérimentale du comportement rhéologique des nanofluides à base de NTC nous a permis de mettre en évidence l'influence de la fraction volumique en NTC, de la température, du type de surfactant et du rapport d'aspect des NTC sur l'évolution de la viscosité des nanofluides à base de NTC testés. On a par ailleurs observé que:

- La viscosité augmente avec la fraction volumique des NTC. Pour des fractions volumiques inférieures à 0.055%, les nanofluides ont un comportement newtonien sur toute la gamme du taux de cisaillement étudiée. Au-delà de cette concentration, le comportement des nanofluides devient rhéofluidifiant à faibles taux de cisaillement, et ce comportement est d'autant plus prononcé que la fraction volumique est élevée.
- La température n'a pas d'effet significatif sur l'augmentation de la viscosité dynamique du nanofluide N1 par rapport à celle du fluide de base. Nous verrons à partir des résultats présentés ici à 20°C et ceux présentés ensuite à 45°C, ce qu'il en est pour les autres nanofluides.
- La viscosité dynamique augmente avec le rapport d'aspect des NTC et plus particulièrement pour des fractions volumiques supérieures à 0.111% ; Pour des fractions inférieures, le rapport d'aspect perd son effet sur la viscosité dynamique.
- Le type de surfactant utilisé a un effet significatif pour des fractions volumiques supérieures à 0.111%.

Ces deux dernières remarques sont principalement associées à l'état de dispersion des nanotubes au sein du fluide de base.

Cette étude nous a, de plus, permis d'analyser précisément les difficultés liées à la pertinence d'un modèle de prédiction de viscosité qui tient compte de l'influence de tous les paramètres évoqués précédemment et surtout du taux de cisaillement appliqué. Nous avons trouvé que le modèle de Maron-Pierce modifié permet de prédire l'évolution de la viscosité dynamique des nanofluides mais cela n'est valable que pour des taux de cisaillement élevés pour lesquels les nanofluides ont un comportement majoritairement newtonien. Il ressort principalement de cette étude que les nanofluides étudiés ont un comportement newtonien pour des

concentrations massiques inférieures à 0.1% quel que soit le taux de cisaillement appliqué, fournissant ainsi des solutions potentielles pour une utilisation dans des échangeurs de chaleur. Cela requiert au préalable d'évaluer leurs propriétés de conductivité thermique, qui fait l'objet de la partie suivante.

III.2 CARACTERISATION DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE DES NANOFLUIDES A BASE DE NTC : RESULTATS ET ANALYSES

Les mesures expérimentales ont été effectuées sur les nanofluides à base de NTC précédemment étudiés et décrits dans le tableau II.2 à trois températures de fonctionnement 20, 30 et 40°C.

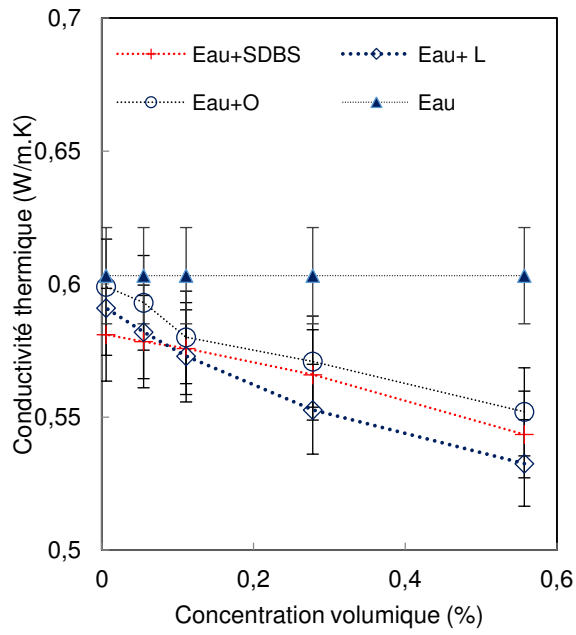
Dans cette partie, et comme nous avons pu le faire pour la viscosité, nous étudions en particulier l'influence de la composition des nanofluides sur leurs conductivités thermiques. L'effet de la fraction volumique des NTC, de la température, du type de surfactant et du rapport d'aspect des NTC est ainsi décrit et discuté dans la suite de cette partie.

III.2.1 Mesures expérimentales de la conductivité thermique des fluides de base

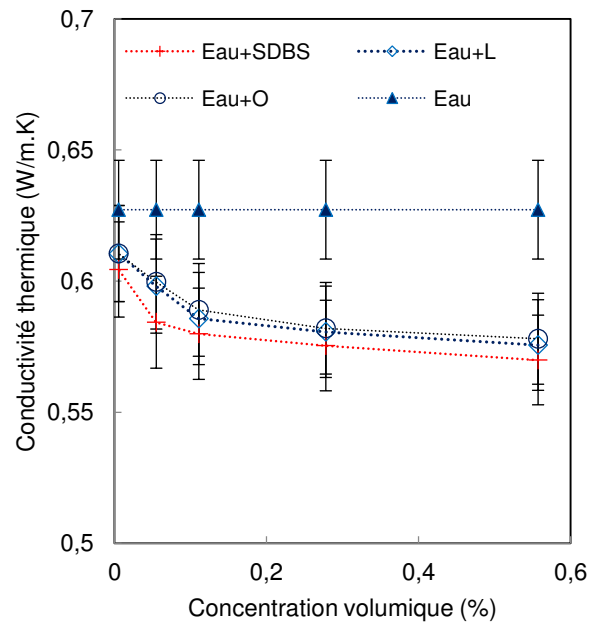
Dans un premier temps, nous avons effectué une série de mesures sur les fluides de base, composés d'un mélange d'eau déminéralisée et des surfactant testés (SDBS, lignine et polycarboxylate de sodium soluble dans l'eau), à différentes fractions volumiques correspondants aux concentrations en NTC des nanofluides associés. Sur les figures III.19, on trace l'évolution de la conductivité thermique des fluides de base en fonction de la fraction volumique en NTC des nanofluides associés à 20°C (a), 30°C (b) et à 40°C (c).

Pour les trois températures de fonctionnement, on remarque que les valeurs des conductivités thermiques des fluides de base sont relativement proches à la même fraction volumique. Ce qui montre que le type de surfactant utilisé n'a pas d'effet significatif sur la conductivité thermique du fluide de base. On constate également que la conductivité des fluides de base augmente avec la température.

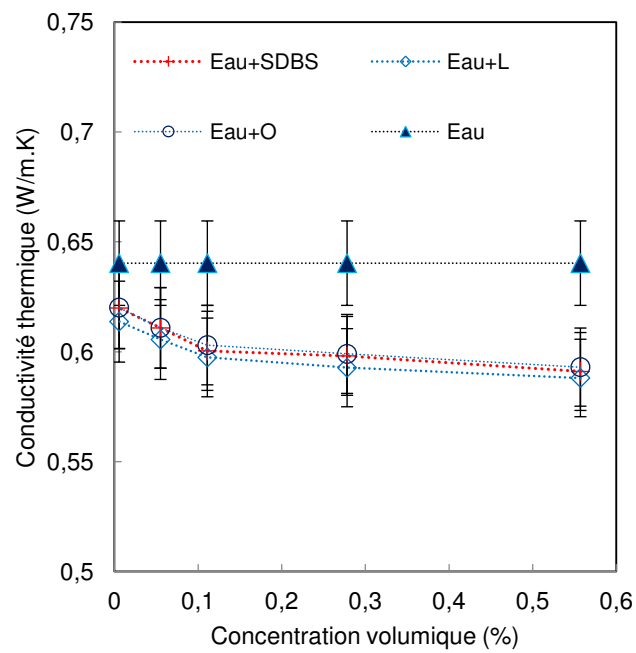
On remarque aussi que la conductivité thermique des fluides de base diminue quand la fraction volumique en surfactant augmente et plus particulièrement à des fractions volumiques équivalentes (en NTC) supérieures à 0.05% (0.1% massique). Pour des faibles fractions volumiques, la conductivité thermique tend vers celle de l'eau déminéralisée (figures III.19) et la présence de surfactant n'a pas d'influence significative sur la conductivité thermique du fluide de base.



(a)



(b)

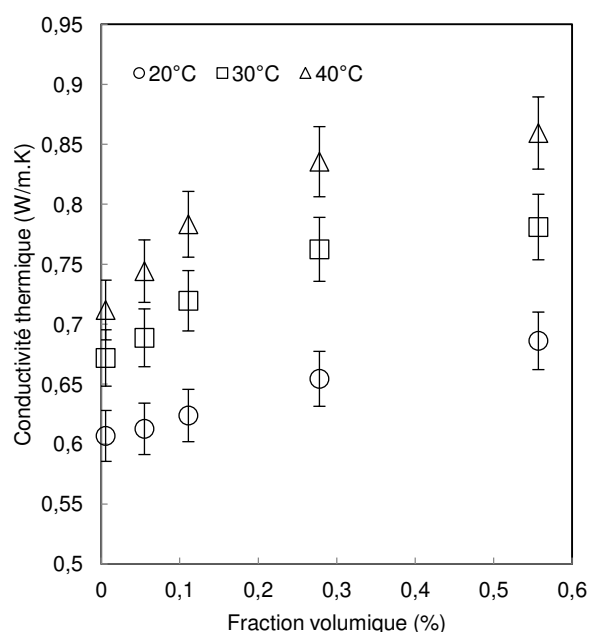


(c)

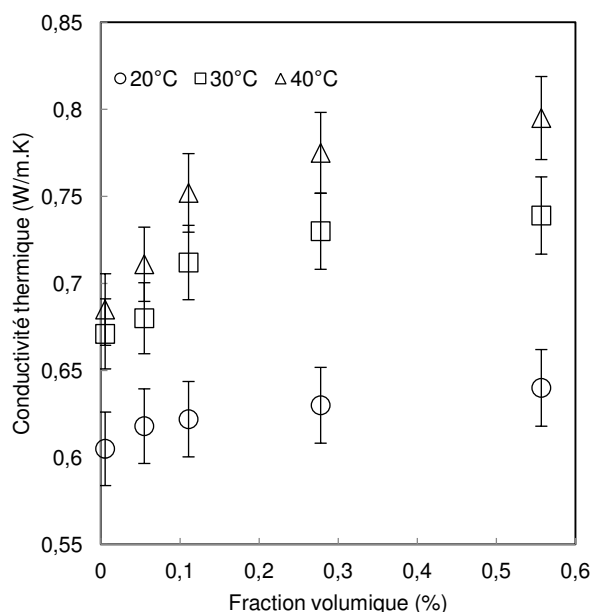
Fig.III. 19 Conductivité thermique des fluides de base en fonction de la concentration volumique en NTC des nanofluides associés (a) à 20°C ; (b) à 30°C ; (c) à 40°C

III.2.2 Effets de la concentration et de la température

Les figures III.20 illustrent l'évolution de la conductivité thermique des nanofluides N1, N2, N3 et N4 en fonction de la fraction volumique aux différentes températures de fonctionnement. Les résultats montrent clairement que la conductivité thermique des nanofluides croît avec la fraction volumique des NTC et avec la température. Cette augmentation est plus prononcée pour les faibles fractions volumiques (inférieures à 0.111%). Les résultats montrent également que pour tous les nanofluides étudiés, la conductivité thermique à 20°C augmente d'une manière quasi-linéaire avec la fraction volumique des NTC. A 30 et à 40°C, l'augmentation de la conductivité thermique des nanofluides se caractérise par une pente plus marquée pour les faibles concentrations.



(a)



(b)

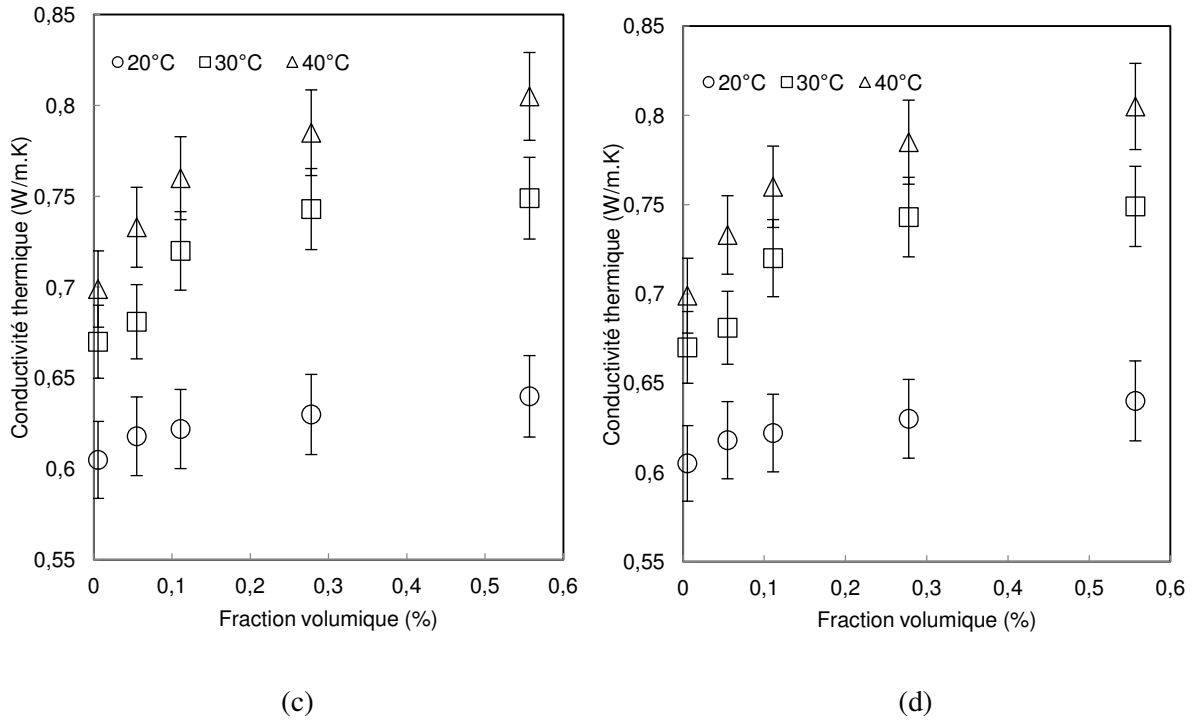


Fig.III. 20 Evolution de la conductivité thermique des nanofluides en fonction de la fraction volumique et la température ; a) N1 ; b) N2 ; c) N3 ; d) N4

A partir des figures III.20 obtenues et des mesures expérimentales de la conductivité thermique des fluides de base (eau+surfactant) associés à chaque nanofluide, nous sommes en mesure de tracer l'évolution de la conductivité thermique relative $\lambda_{nf}/\lambda_{fb}$ en fonction de la fraction volumique des NTC pour les trois températures de fonctionnement. Comme pour la viscosité dynamique, le but de cette partie est d'évaluer la pertinence des modèles de prédiction de la conductivité thermique des nanofluides et des paramètres de composition des solutions.

III.2.3 Conductivité thermique relative et comparaison avec les modèles de la littérature

Comme nous l'avons évoqué dans l'étude bibliographique, un des modèles les plus utilisés pour estimer la conductivité thermique des nanofluides à base de NTC a été initialement proposé par Hamilton et Crosser [HAM/1962].

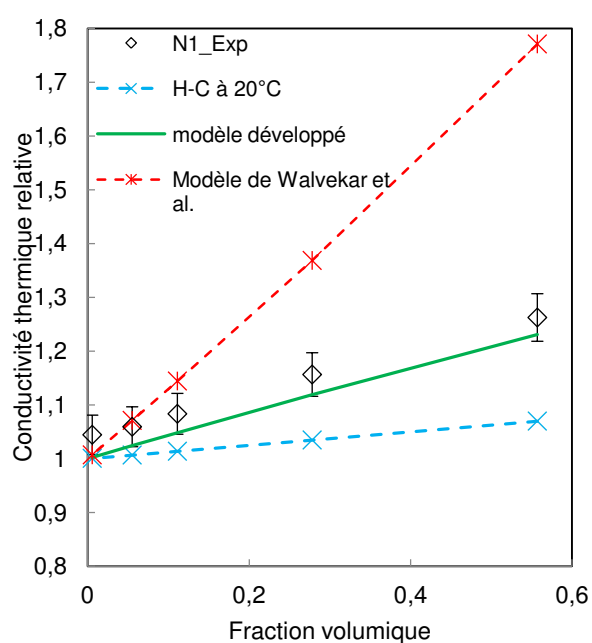
$$\frac{\lambda_{nf}}{\lambda_{fb}} = \frac{\lambda_{np} + (n-1)\lambda_{fb} - (n-1)(\lambda_{fb} - \lambda_{np})\phi_v}{\lambda_{np} + (n-1)\lambda_{fb} + (n-1)(\lambda_{fb} - \lambda_{np})\phi_v} \quad \text{Eq.III. 9}$$

$$\text{Où } n = \frac{3}{\Psi}$$

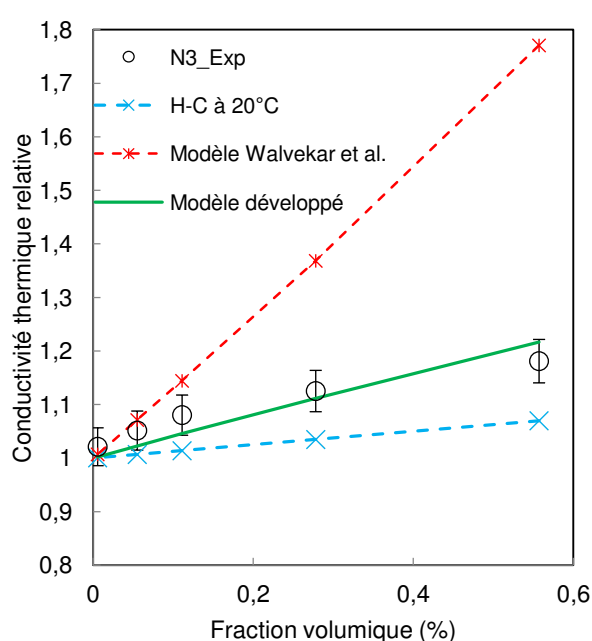
Ψ , rapport de sphéricité, est défini comme étant le rapport de l'aire d'une sphère de même volume que la particule sur l'aire de cette même particule.

Dans le cas des NTC testés, Ψ est calculé à partir du diamètre et de la longueur moyenne des NTC. Ce rapport a été évalué à 0.24 pour les NTC de type NC7000 et à 0.30 pour les NTC type CNTA. Ces valeurs du rapport de sphéricité sont différentes de celle de la littérature pour les particules de forme cylindrique, rapport qui est généralement pris égal à 0.5.

Sur les figures III.21, on représente les évolutions de la conductivité thermique relative des nanofluides N1, N2, N3 et N4 en fonction de la fraction volumique à 20°C. On observe tout d'abord un écart important entre les points expérimentaux et le modèle d'Hamilton-Crosser (H-C) pour les nanofluides N1, N2 et N3. Cet écart augmente d'une manière significative avec la fraction volumique des NTC. Cependant, dans le cas du nanofluide N4 (figure III.31-(d)), on remarque que le modèle de Hamilton-Crosser est assez satisfaisant pour prédire l'évolution de la conductivité relative.



(a)



(b)

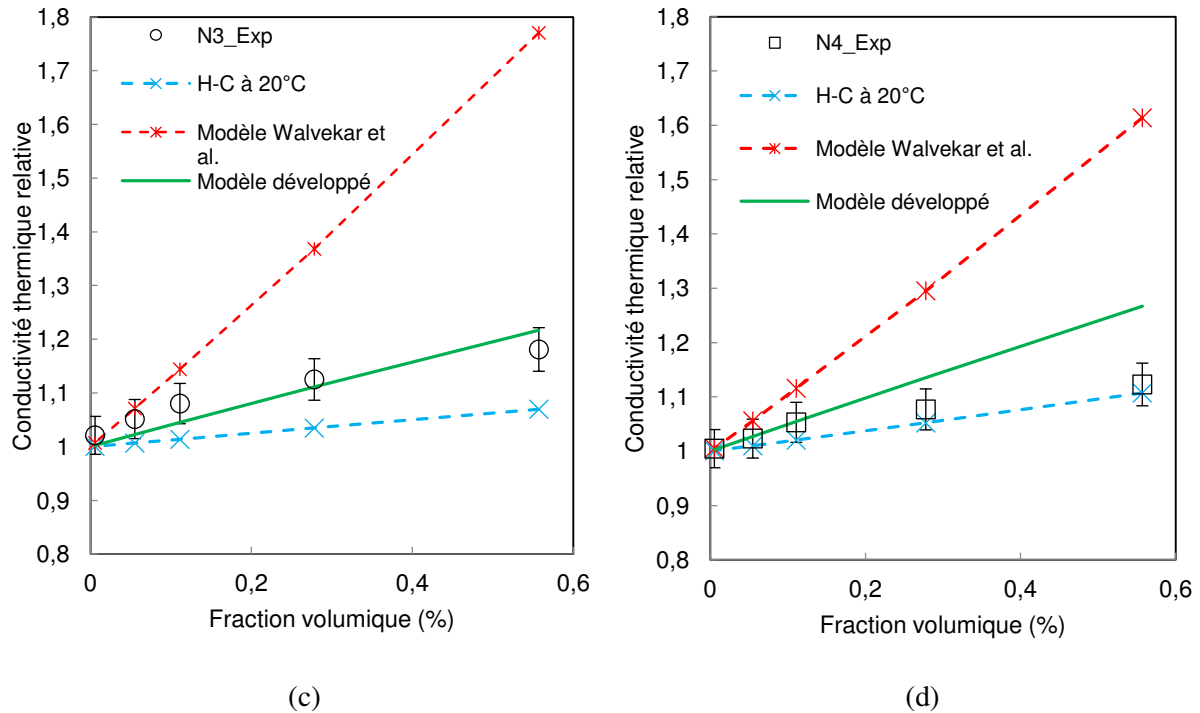


Fig.III. 21 Conductivité relative en fonction de la fraction volumique à 20°C ; (a) N1 ; (b) N2 ; (c) N3 ; (d) N4

L'écart maximal entre les points expérimentaux des courbes des figures III.21 (a)-(c) et le modèle de Hamilton-Crosser [HAM/1962] est d'environ 18%. Cet écart peut être attribué au rapport d'aspect élevé des NTC ($r_a \approx 160$) utilisés pour les nanofluides N1, N2 et N3, comparé à celui des NTC du nanofluide N4 ($r_a \approx 90$). Cet écart peut être dû aussi au mouvement brownien des NTC au sein du fluide de base. Comme nous avons pu voir dans l'étude bibliographique, le mouvement brownien est un déplacement aléatoire des particules qui peut provoquer une augmentation des propriétés thermiques. Ce mouvement s'accroît sous l'effet de l'excitation thermique et devient aussi plus prononcé pour les particules à faibles masses volumiques. Dans le cas des NTC étudiés, la masse volumique des NTC de type NC7000 (N1, N2 et N3) est inférieure à celle du NTC type CNTA (N4). Cette différence est de l'ordre de 14% (tableau II.2 chapitre II). Pour cette raison, nous estimons que le mouvement brownien des NTC n'est pas négligeable au sein des nanofluides N1, N2 et N3 et que pour le nanofluide N4, les NTC sont suffisamment denses pour que la contribution de ce mouvement soit négligeable. Nous proposons par la suite d'étudier la pertinence de ces hypothèses. Pour cela, nous avons comparé nos résultats avec deux modèles. Le premier modèle, introduit précédemment dans l'étude bibliographique, est celui de Walvekar et al. [WAL/2012] (Équation III.10). Ce modèle tient compte de l'effet du diamètre, du rapport d'aspect des NTC ainsi que l'effet du mouvement brownien et de la température.

$$\lambda_{nf} = \lambda_{fb} \left[1 + \frac{\lambda_{np} \left(\frac{2\varphi_v (r_{np} + l_{np})}{r_{np} l_{np}} \right)}{\lambda_{fb} \left(\frac{3(1-\varphi_v)}{r_{fb}} \right)} \right] + \frac{C \varphi_v (T - T_0)}{r_{np}^2 l_{np}^2 \mu_{fb}} \ln \left(\frac{l_{np}}{d_{np}} \right) \quad \text{Eq.III. 10}$$

Le deuxième modèle est un modèle que nous avons développé en se basant sur l'équation de Hamilton-Crosser à laquelle est ajouté la contribution du mouvement brownien des NTC lié à la température et à la viscosité dynamique du fluide de base selon le deuxième terme du modèle de Walvekar et al. [WAL/2012] (Équation III.11).

$$\frac{\lambda_{nf}}{\lambda_{fb}} = \lambda_{fb} \frac{\lambda_{np} + (n-1)\lambda_{fb} - (n-1)(\lambda_{fb} - \lambda_{np})\varphi_v}{\lambda_{np} + (n-1)\lambda_{fb} + (n-1)(\lambda_{fb} - \lambda_{np})\varphi_v} + \lambda_{brownien} \quad \text{Eq.III. 11}$$

$$\text{Avec } \lambda_{brownien} = \frac{C(T - T_0)\varphi_v}{(r_p l_p)^2 \mu_{fb}} \ln \left(\frac{l_p}{r_p} \right) \quad \text{Eq.III. 12}$$

Dans les deux modèles (Eq. III.10 et III.11), T_0 est prise égale à 273 K, qui correspond à la température de référence au-dessous de laquelle le mouvement brownien devient négligeable. C est une constante qui dépend de la constante de Boltzmann [WAL/2012] comme le montre l'équation III.13 :

$$C = \frac{85\kappa_B^2}{72\pi^2} \quad \text{Eq.III. 13}$$

Walvekar et al. [WAL/2012] ont utilisé une valeur de C égale à 2.10^{-27} pour reproduire leurs résultats expérimentaux. Cette valeur permet d'ajuster leurs résultats expérimentaux mais ne correspond pas à l'expression de l'équation III.13. Nous avons testé cette valeur de C, et nous avons obtenu des résultats erronés. En effet, les conductivités thermiques obtenues sont de l'ordre de 10^5 (W/m.K). Aussi, la constante C utilisée par la suite correspond effectivement à l'équation III.13.

Les résultats des figures III. 21 nous montrent que le modèle de Walvekar et al. [WAL/2012] surestime largement l'évolution de la conductivité thermique relative dans le cas des quatre nanofluides testés notamment pour des concentrations volumiques supérieures à 0.055% (0.1% massique). Pour des fractions inférieures à 0.1% massiques, ce modèle semble en bon accord avec nos points expérimentaux.

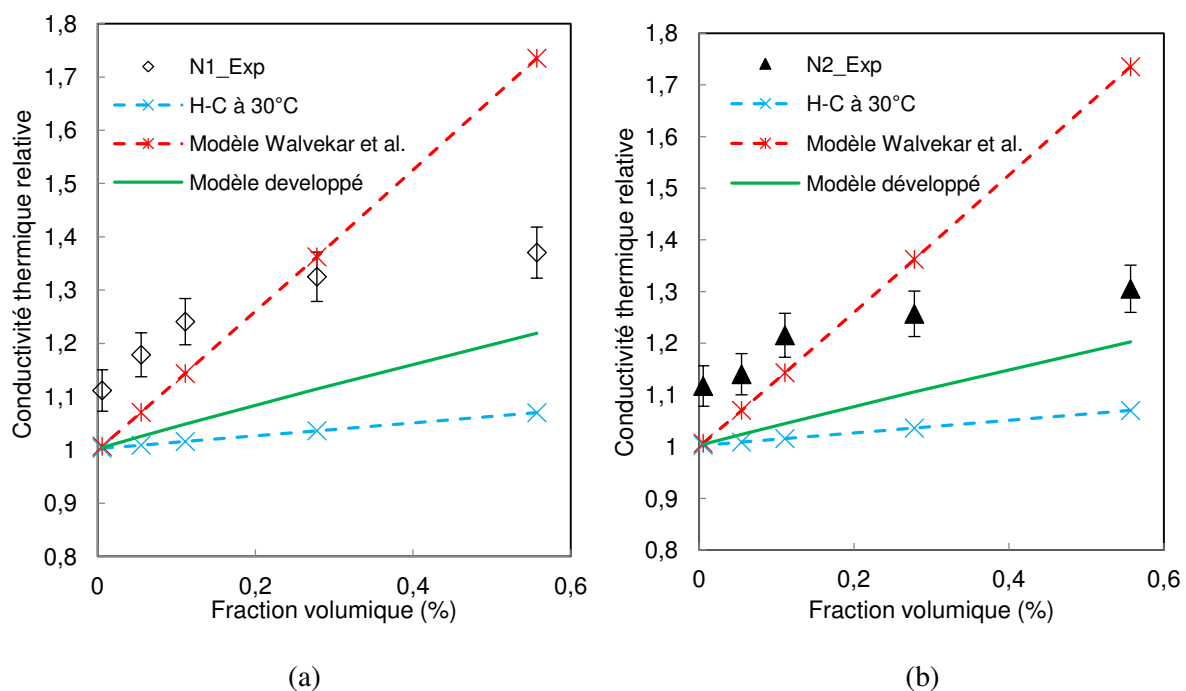
Il est à noter que, dans leur étude, Walvekar et al. [WAL/2012], ont développé ce modèle pour des suspensions à base de NTC à faibles fractions massiques (inférieures à 0.1%). Ceci montre que dans cette gamme de concentration, nos résultats concordent avec les leurs.

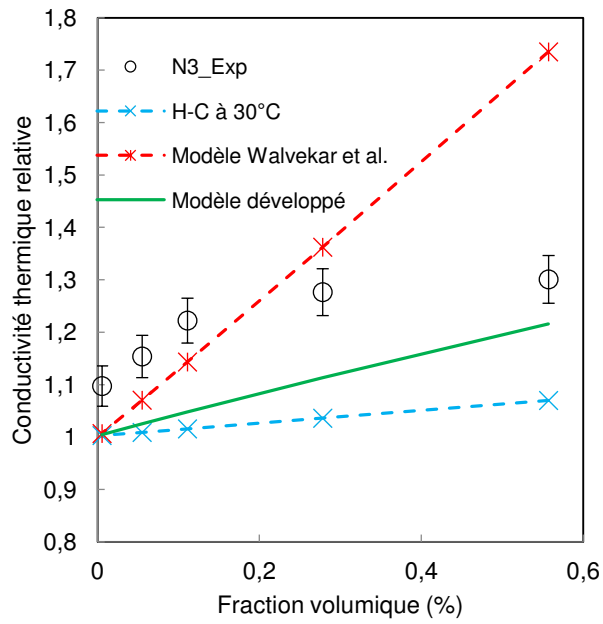
Pour des fractions volumiques élevées, nous pouvons remarquer que le modèle adapté (équation III.11) permet de reproduire nos résultats expérimentaux dans la gamme de fraction

volumique étudiée. Ces résultats confirment nos hypothèses, autrement dit, la contribution du mouvement brownien (équation III.12) à l'amélioration de la conductivité thermique est non négligeable dans le cas des nanofluides N1, N2 et N3. Il est important de signaler que pour aboutir à cet ajustement, la constante C a été finalement prise égale à 1.2×10^{-32} .

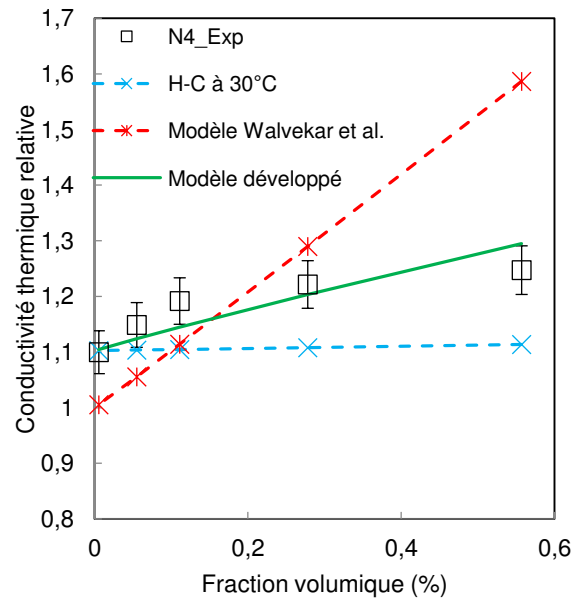
Le mouvement des NTC augmente sous excitation thermique et peut avoir des conséquences sur les performances thermiques ainsi que sur les interactions entre les particules. Nous allons, dans cette partie, présenter les résultats de la modélisation à 30 et à 40°C.

Les figures III.22 et III.23 représentent respectivement les évolutions des conductivités thermiques relatives des nanofluides testés à 30 et à 40°C. On remarque un comportement similaire des nanofluides, composés de NTC de type NC7000, vis-à-vis de l'effet de la température. Les conductivités thermiques relatives évoluent d'une manière non linéaire avec la fraction volumique des NTC. Comme pour la température 20°C, le modèle de Walvekar et al. [WAL/2012] surestime largement la conductivité thermique pour des fractions supérieures à 0.055% en volume. Pour des fractions volumiques inférieures, ce modèle sous-estime la conductivité thermique.



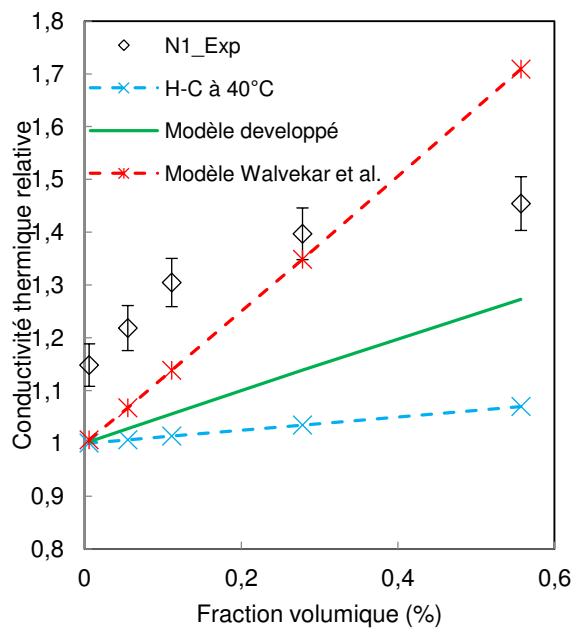


(c)

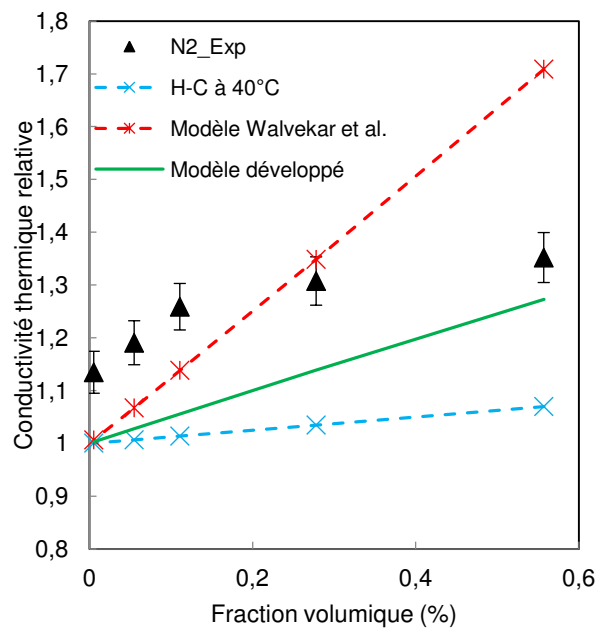


(d)

Fig.III. 22 Conductivité relative en fonction de la fraction volumique à 30°C ; (a) N1 ; (b) N2 ; (c) N3 ; (d) N4



(a)



(b)

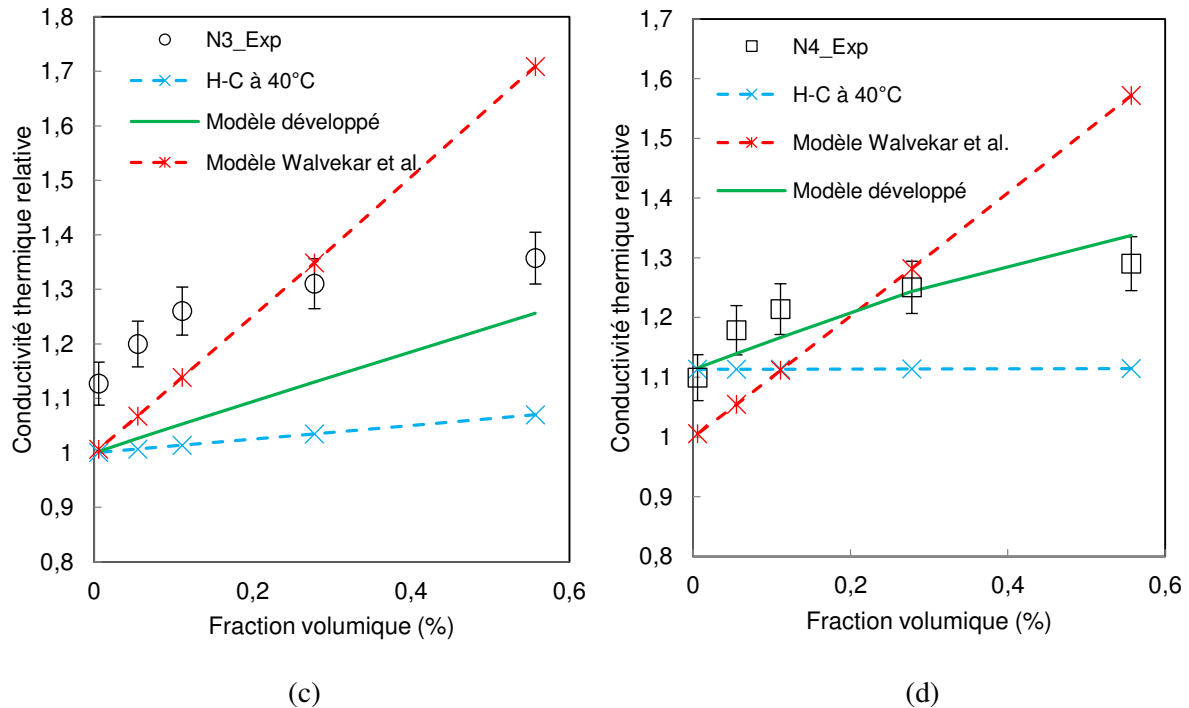


Fig.III. 23 Conductivité relative en fonction de la fraction volumique à 40°C ; (a) N1 ; (b) N2 ; (c) N3 ; (d) N4

Le modèle précédemment développé (équation III.11) et le modèle de Hamilton Crosser sous-estiment la conductivité thermique des nanofluides N1, N2 et N3.

Pour le nanofluide N4, on observe que le modèle développé (équation III.11) est en bon accord avec nos résultats expérimentaux à 30 et à 40°C. Nous pouvons donc constater que pour ce nanofluide, le mouvement brownien devient non négligeable pour des températures supérieures à 20°C.

L'écart entre le modèle de l'équation III.11 et nos résultats expérimentaux pour les autres nanofluides (N1, N2 et N3) peut être dû à d'autres paramètres dont les interactions entre les NTC, le réarrangement des NTC sous l'effet de l'excitation thermique et le rapport d'aspect élevé des NTC. En effet, quand le rapport d'aspect augmente (NTC plus long ou plus étroit), cela permet de consolider au mieux les liaisons entre les NTC qui se comportent comme des ponts thermiques. A haute température, la contribution de ces liaisons peut devenir non négligeable. Ceci pourrait expliquer les évolutions non linéaires des conductivités thermiques et les écarts observés.

Enfin, Les figures III.22 montrent un gain en conductivité thermique maximal pour le nanofluide N1 à la fraction volumique 0.557% (1% massique) de l'ordre de 45% par rapport au fluide de base à la température de fonctionnement 40°C. Pour les autres nanofluides, on obtient à la même concentration un gain de l'ordre de 35% pour N2, 30% pour N3 et environ 25% pour N4. Il est ainsi mis en évidence qu'en plus de l'effet de la fraction volumique des

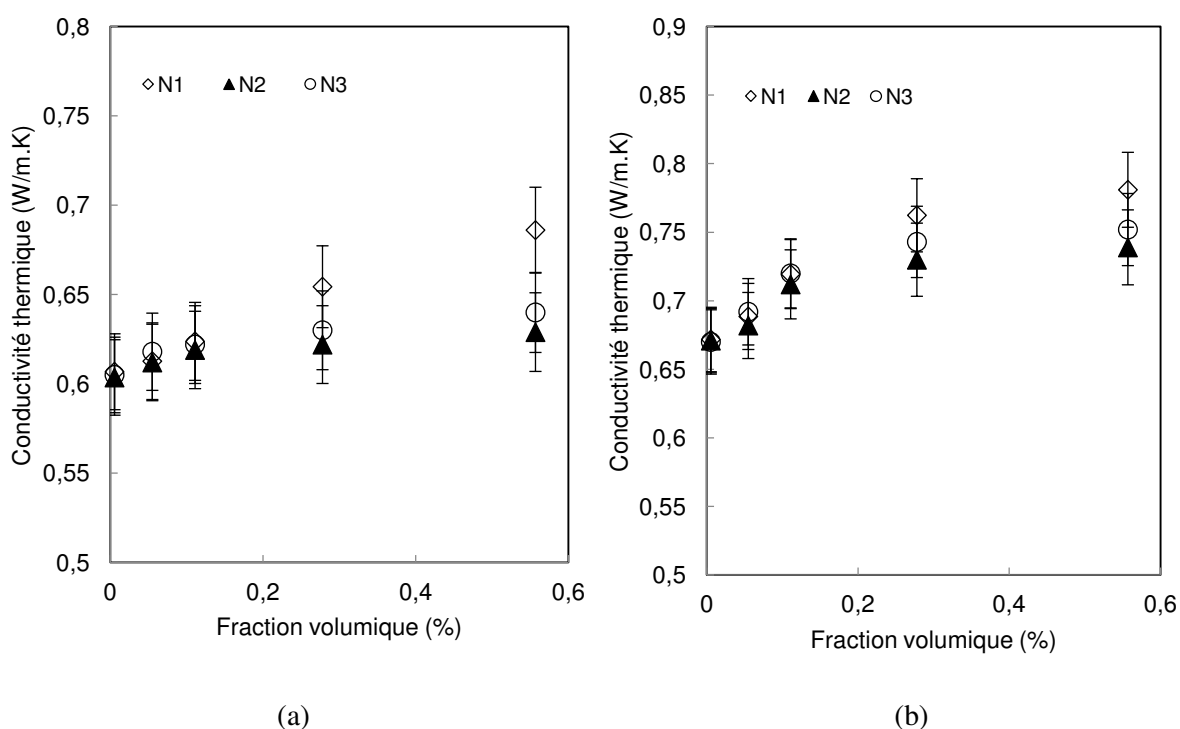
NTC et de la température, le comportement thermique des nanofluides peut potentiellement dépendre également du type de surfactant utilisé et du rapport d'aspect des nanotubes.

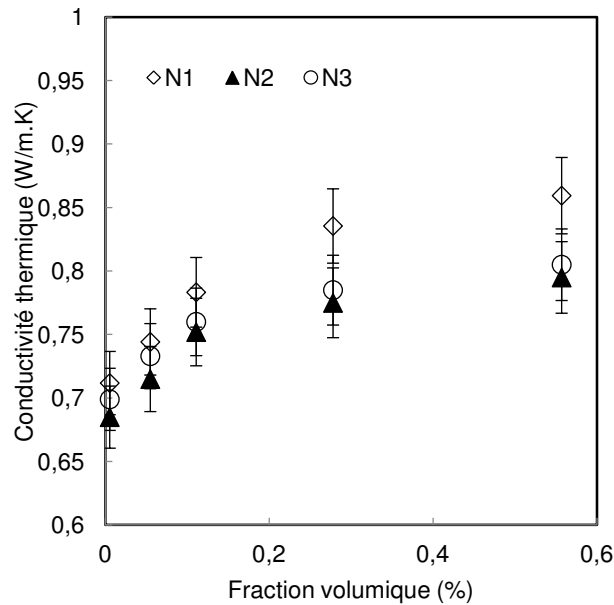
III.2.4 Effets du type de surfactant et du rapport d'aspect

III.2.4.1 Effet du type de surfactant

Comme pour la viscosité dynamique, pour étudier l'effet du type de surfactant sur la conductivité thermique des nanofluides, nous comparons le comportement des trois nanofluides N1, N2 et N3. Ces nanofluides sont constitués du même type de NTC et diffèrent par le type de surfactant utilisé.

Sur les figures III.24, nous présentons l'évolution de la conductivité thermique des nanofluides N1, N2 et N3 en fonction de la fraction volumique des NTC pour les trois températures de fonctionnement (a) 20°C, (b) 30°C et (c) 40°C. Ces figures montrent que l'écart entre les courbes des évolutions des conductivités thermiques des trois nanofluides est relativement négligeable (inférieur à 3.5%) sur toute la gamme des concentrations étudiées. Ceci confirme que le type de surfactant utilisé n'a pas d'effet significatif sur la conductivité thermique. Ces résultats sont en accord avec ceux d'Asseal et al. [ASS/2005] qui ont étudié l'effet de deux types de surfactants (CTAB (*Hexadecyltrimethyl Ammonium Bromide*) et un autre surfactant commercial AQ (inconnu) sur la conductivité thermique de nanofluides composés de MWCNT/eau et DWCNT/eau pour une gamme de concentration volumique qui varie entre 0.1 et 0.6%.





(c)

Fig.III. 24 Conductivité thermique des nanofluides N1, N2 et N3 fonction de la concentration volumique en NTC (a) à 20°C ; (b) à 30°C ; (c) à 40°C

III.2.4.2 Effet du rapport d'aspect

Les figures III.25 représente les évolutions de la conductivité thermique des nanofluides N3 et N4 en fonction de la fraction volumique des NTC associées au nanofluide N3 pour les trois températures de fonctionnement. Ces deux nanofluides ont le même fluide de base avec la même concentration de surfactant à base de polycarboxylate de sodium soluble dans l'eau (O) et différent seulement par le type de NTC (tableau II.2).

On note une amélioration de la conductivité thermique relativement meilleure pour le nanofluide N3 par rapport au nanofluide N4 pour des fractions volumiques supérieures à 0.055% (0.1% en masse) à 30 et à 40°C. Ainsi, on obtient à la fraction volumique 0.557% (1% en masse), une augmentation de l'ordre de 30% pour N3 et de l'ordre de 25% pour le nanofluide N4 à la température 40°C.

L'écart entre les courbes des conductivités thermiques des nanofluides N3 et N4 est inférieur à 3.5%, ce qui montre que l'effet du rapport d'aspect peut être considéré négligeable à 20°C.

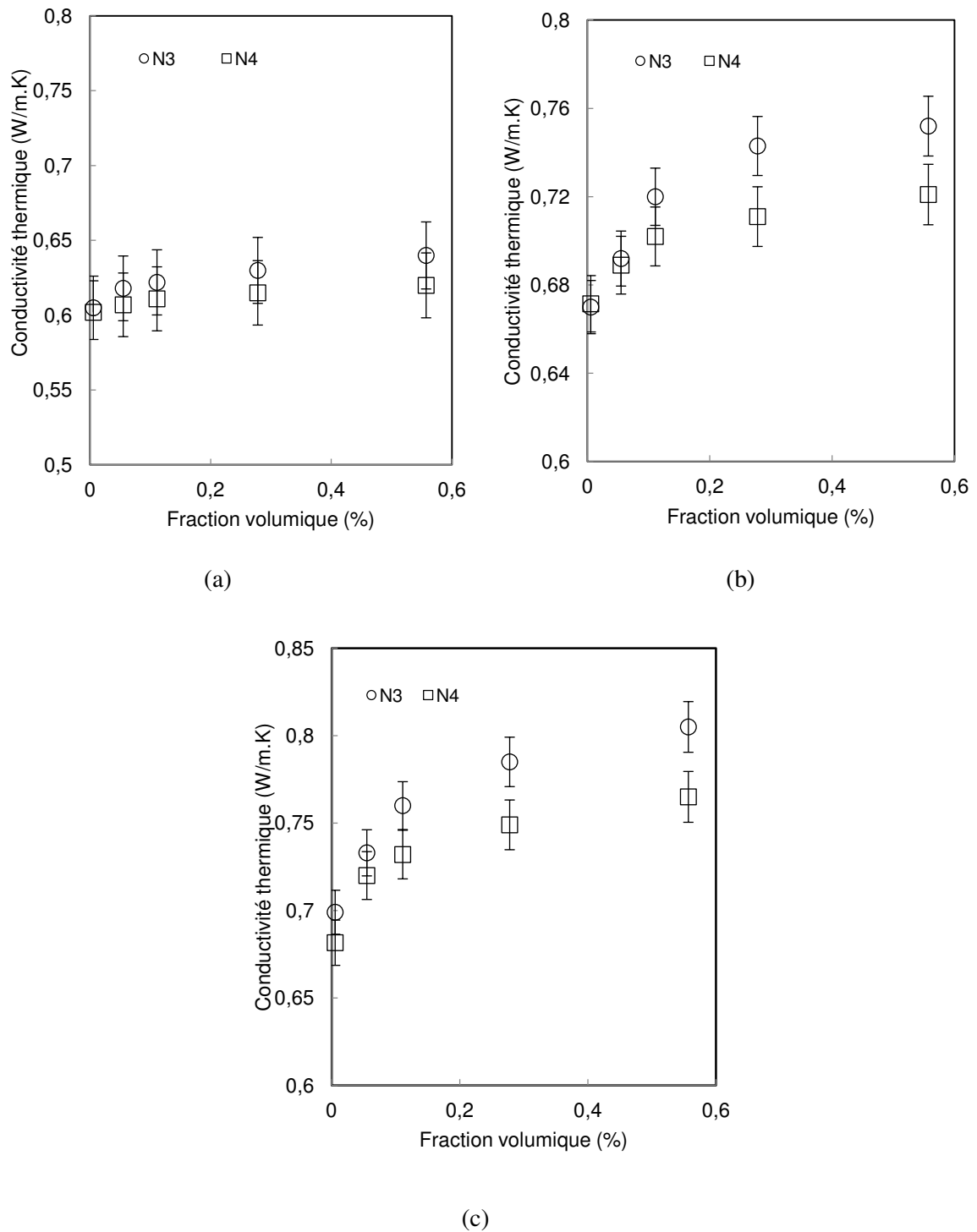


Fig.III. 25 Conductivité thermique des nanofluides N3 et N4 fonction de la concentration volumique en NTC (a) à 20°C ; (b) à 30°C ; (c) à 40°C

Cet écart est plus important lorsqu'on augmente la température et met en évidence dans ce cas l'effet du rapport d'aspect sur la conductivité thermique des nanofluides. Comme nous l'avons mentionné précédemment, quand le rapport d'aspect augmente (NTC plus long ou plus étroit), cela permet de consolider au mieux les liaisons entre les NTC qui se comportent

comme des ponts thermiques et facilite ainsi la diffusion de la chaleur. Ce résultat confirme ce qui a été montré précédemment par Asseal et al. [ASS/2005], Yang et al. [YAN/2006] et Jiang et al. [JIA/2009] sur des suspensions contenant des NTC (voir partie I.3.1.2 chapitre I).

III.2.5 Bilan sur la caractérisation expérimentale de la conductivité thermique

L'analyse des résultats expérimentaux sur la conductivité thermique des nanofluides à base de NTC nous montrent que :

- La température a un effet important sur l'amélioration de la conductivité thermique notamment pour des faibles concentrations des NTC pour lesquelles cet effet est plus prononcé. Cette amélioration augmente avec la température.
- Les types de surfactant utilisés n'ont pas d'effet significatif sur la conductivité thermique.
- Les modèles de la littérature ne permettent pas de reproduire nos résultats expérimentaux notamment à 30 et à 40°C à hautes fractions volumiques (supérieures à 0.055%). Ceci peut être dû à plusieurs paramètres dont les interactions entre les NTC, le réarrangement des NTC sous l'effet de l'excitation thermique et le rapport d'aspect élevé des NTC, et la présence d'agrégats.

III.3 CARACTERISATION EXPERIMENTALE DE LA MASSE VOLUMIQUE DES NANOFLUIDES A BASE DE NTC : RESULTATS ET ANALYSES

L'objectif de cette partie est de caractériser expérimentalement la masse volumique des nanofluides afin d'étudier la validité de la loi de mélange utilisée dans la littérature pour estimer la masse volumique des nanofluides en général, et des suspensions à base de NTC en particuliers, en l'absence de données expérimentales. Dans cette loi, comme nous l'avons évoqué dans le chapitre 1, sont considérées les caractéristiques des nanoparticules et celles du fluide de base sans que la contribution du surfactant soit clairement identifiée. Les mesures présentées ici ont été effectuées au Laboratoire de Recherche en Microgravité de l'Université Libre de Bruxelles (ULB) sur le nanofluide N1 constitué de NTC dispersés dans l'eau déminéralisée et du surfactant SDBS (Sodium Dodecyl Benzène Sulfonate). Sur la base de ces résultats, la masse volumique des autres nanofluides pourra être évaluée à partir de lois adaptées à la concentration en NTC et à la proportion de surfactant.

III.3.1 Mesure de la masse volumique : résultats et discussion

Comme nous l'avons évoqué dans le premier chapitre bibliographique, en l'absence de mesures expérimentales, la masse volumique des nanofluides est souvent calculée à partir de la loi de mélange (équation III.14) [PAK/1998].

$$\rho_{nf} = \varphi_v \rho_p + (1 - \varphi_v) \rho_{fb} \quad \text{Eq.III. 14}$$

Dans ce cadre, les nanoparticules sont supposées bien dispersées et d'une façon uniforme, formant ainsi une suspension stable en équilibre thermique avec le fluide de base. Dans cette partie, nous allons étudier les limites de validité de cette loi de mélange en fonction de la concentration des NTC et de la température. Pour cela, nous avons mesuré expérimentalement la masse volumique du nanofluide N1 avec le surfactant SDBS (figure III.26) pour une gamme de température entre 20 et 40°C, selon le protocole décrit au chapitre 2. La fraction massique des suspensions testée est comprise entre 0.01 et 1%, ce qui correspond à une fraction volumique entre 0.0055 et 0.557% (tableau III.1).



Fig.III. 26 Echantillons étudiés

Afin d'étudier l'effet du surfactant sur la masse volumique du nanofluide, nous avons mesuré indépendamment la masse volumique du surfactant SDBS en poudre par la méthode du pycnomètre en utilisant un flacon de 100ml et une balance de précision $\pm 0,001\text{g}$. Les mesures ont été effectuées pour trois températures, 20, 30 et 40°C.

De l'eau distillée et du toluène ont été utilisés comme liquides d'essai. La validité de la mesure est vérifiée en comparant la masse volumique mesurée de ces deux liquides à leur valeur théorique. A titre d'exemple, à 20°C on obtient une valeur de 1.03g/cm^3 pour l'eau et de 0.806 g/cm^3 pour le toluène. Ce qui représente un écart maximum de l'ordre de 3.5% pour l'eau et de 0.5% pour le toluène par rapport aux valeurs théoriques [HAL2/2014].

III.3.2 Effet de la fraction volumique et la température

Les mesures expérimentales de la masse volumique de nos échantillons en fonction de la température et à différentes fractions volumiques ont été comparées à deux modèles. Le premier modèle est la loi de mélange classique [PAK/1998] dans laquelle la masse volumique des particules est considéré comme constante dans la gamme de température utilisée alors que la variation de la masse volumique de l'eau en fonction de la température est prise en compte. La présence de surfactant est ici négligée (Equation III.15). Les molécules de surfactant sont supposées adsorbées au niveau de la surface des NTC et l'eau distillée constitue à elle seule le fluide de base. Dans le deuxième modèle, que l'on peut appeler loi de mélange corrigée, nous prenons en compte la présence de surfactant (équation III.17), le fluide de base est alors un mélange de l'eau distillée et du surfactant, dont les masses volumiques dépendent de la température, ainsi la masse volumique du surfactant vaut 1.18 kg/l à 20°C, 1.11kg/l à 30°C et

1.05 kg/k à 40°C. Nous avons développé cette équation à partir de l'équation III.16 [GLA/2010] :

$$(\rho_{nf})_{th} = (1 - \varphi_v) \rho_f + \varphi_v \rho_p \quad \text{Eq.III. 15}$$

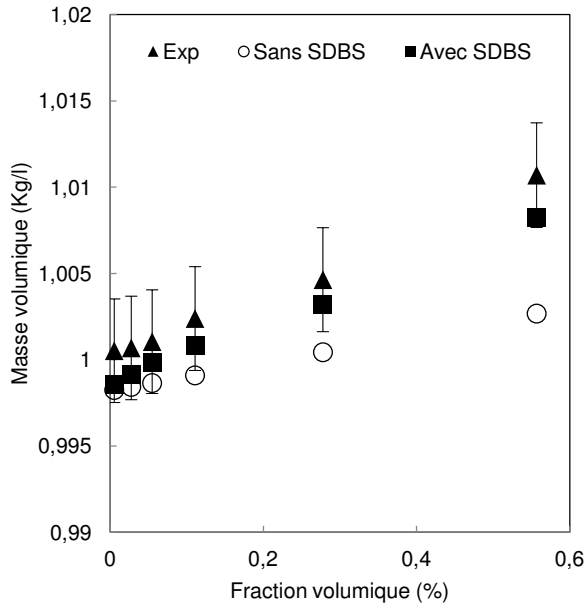
$$(\rho_{nf})_{th} = \left(\frac{m}{V} \right)_{nf} = \frac{m_p + m_s + m_{bf}}{V_p + V_s + V_{bf}} \quad \text{Eq.III. 16}$$

$$(\rho_{nf})_{th} = (1 - \varphi_{vp} - \varphi_{vs}) \rho_{bf} + \varphi_{vp} \rho_p + \varphi_{vs} \rho_s \quad \text{Eq.III. 17}$$

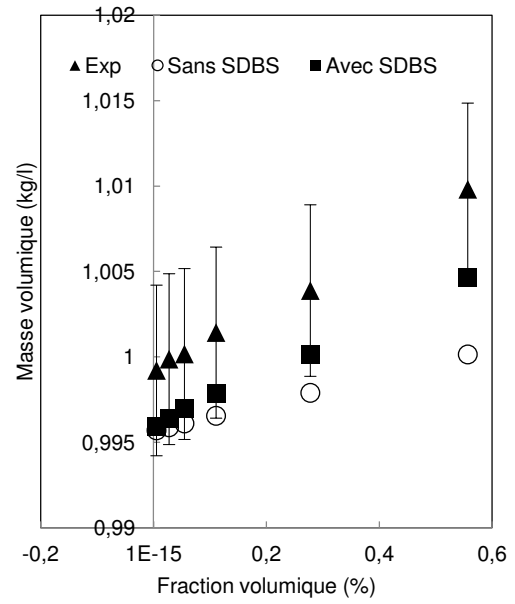
Les figures III.27 représentent respectivement l'évolution de la masse volumique du nanofluide étudié en fonction de la fraction volumique à 20, 30 et 40°C. Les résultats expérimentaux nous montrent, pour chaque température d'essai, une croissance de la masse volumique du nanofluide avec l'augmentation de la fraction volumique des NTC et du surfactant. On observe une tendance similaire de l'évolution de la masse volumique prédite par les modèles des équations III.15 et III.17.

Le premier modèle (loi de mélange classique) permet d'estimer et de prédire correctement l'évolution de la masse volumique des suspensions à des fractions volumiques inférieures à 0.111%. Au-delà de cette concentration, on observe un écart entre les points expérimentaux et théoriques. Ceci peut être expliqué par l'effet du surfactant. En effet, le modèle de l'équation III.17 intégrant la présence de surfactant permet de reproduire les points expérimentaux pour l'ensemble des fractions volumiques étudiées, et en particulier pour des fractions volumiques supérieures à 0.111%, avec une erreur relative de l'ordre de 0.5%.

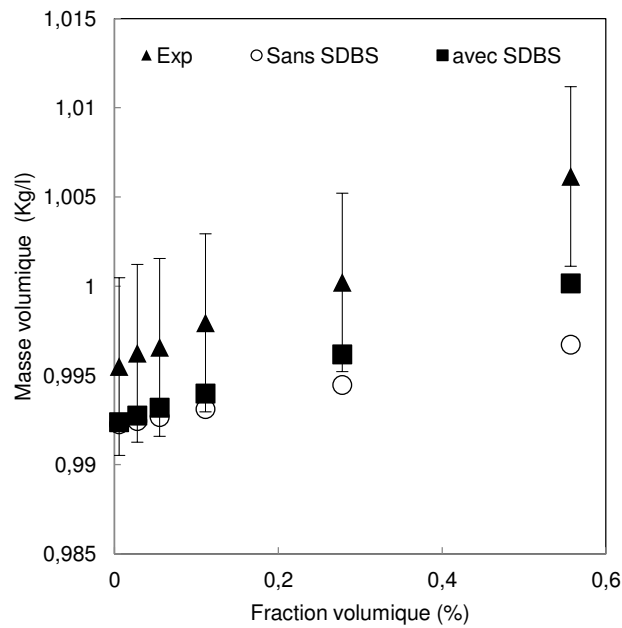
Ainsi, on peut en déduire que la loi de mélange classique reste valable à des faibles fractions volumiques pour lesquelles la présence du surfactant n'a pas d'effet significatif sur la masse volumique du nanofluide. Au-delà d'une concentration critique (ici, 0.111%), le modèle corrigé est mieux adapté. Les masses volumiques sont exprimées en kg/l.



(a)



(b)



(c)

Fig.III. 27 Evolution de la masse volumique du nanofluide N1 en fonction de la fraction volumique en nanotubes à 20 (a), 30 (b) et 40°C (c)

A partir des figures III.27 ci-dessus, on peut tracer l'évolution de la masse volumique relative, définie comme étant le rapport entre la masse volumique du nanofluide et celle du fluide de base associé, en fonction de la fraction volumique et de la température (figure III.28).

Il est à noter que la masse volumique du fluide de base est calculée à partir de l'équation de la loi de mélange (équation III.18), en supposant que les particules de surfactant sont bien

dispersées d'une façon uniforme, formant ainsi une suspension stable en équilibre thermique avec l'eau déminéralisée.

$$\rho_{fb} = (1 - \varphi_{vs}) \rho_{eau} + \varphi_{vs} \rho_s \quad \text{Eq.III. 18}$$

φ_{vs} la fraction volumique du surfactant ; ρ_s la masse volumique du surfactant (kg/m^3)

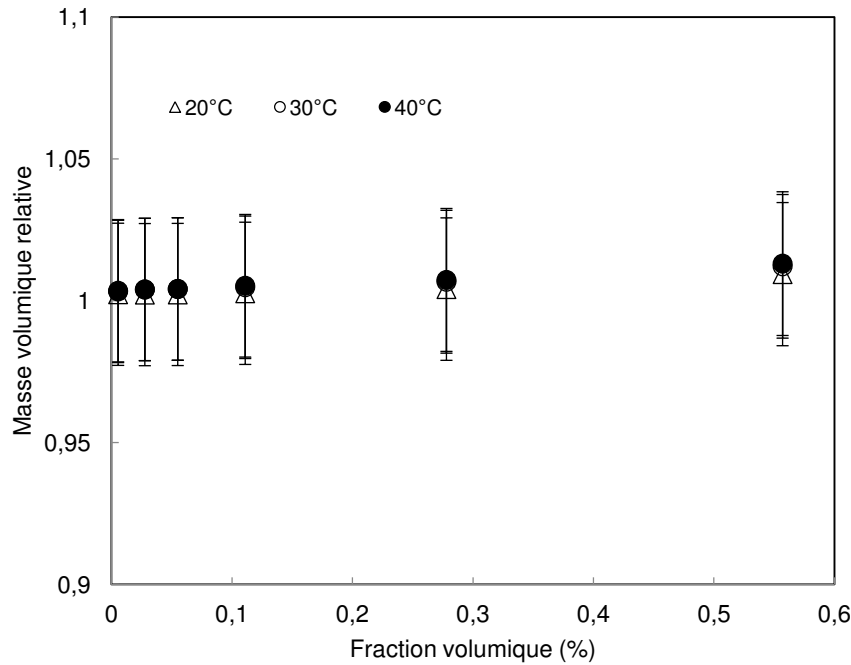


Fig.III. 28 Evolution de la masse volumique relative en fonction de la température et de la fraction volumique

On note une évolution quasi-linéaire de la masse volumique relative en fonction de la fraction volumique des NTC. Autrement dit, la température n'a pas d'effet significatif sur l'évolution de la masse volumique relative.

Sur la base de ces résultats et des conclusion précédentes, la masse volumique des nanofluides est calculée à partir de l'équation III.17 dans la suite de ce travail. Dans cette équation, la masse volumique du nanofluide dépend de la masse volumique du fluide de base, des NTC, et celle du surfactant utilisé ainsi que la fraction volumique des NTC.

Sur les figures III.29, nous traçons les évolutions des masses volumiques des nanofluides N1, N2, N3 et N4 en fonction de la fraction volumique des NTC (type NC7000) pour les trois températures de fonctionnement 20, 30 et 40°C.

Les évolutions des masses volumiques des nanofluides N1, N2, N3 et N4 sont relativement similaires. Ceci montre que le type de surfactant utilisé et le rapport d'aspect des NTC ont un effet négligeable sur la masse volumique des nanofluides aux concentrations étudiées.

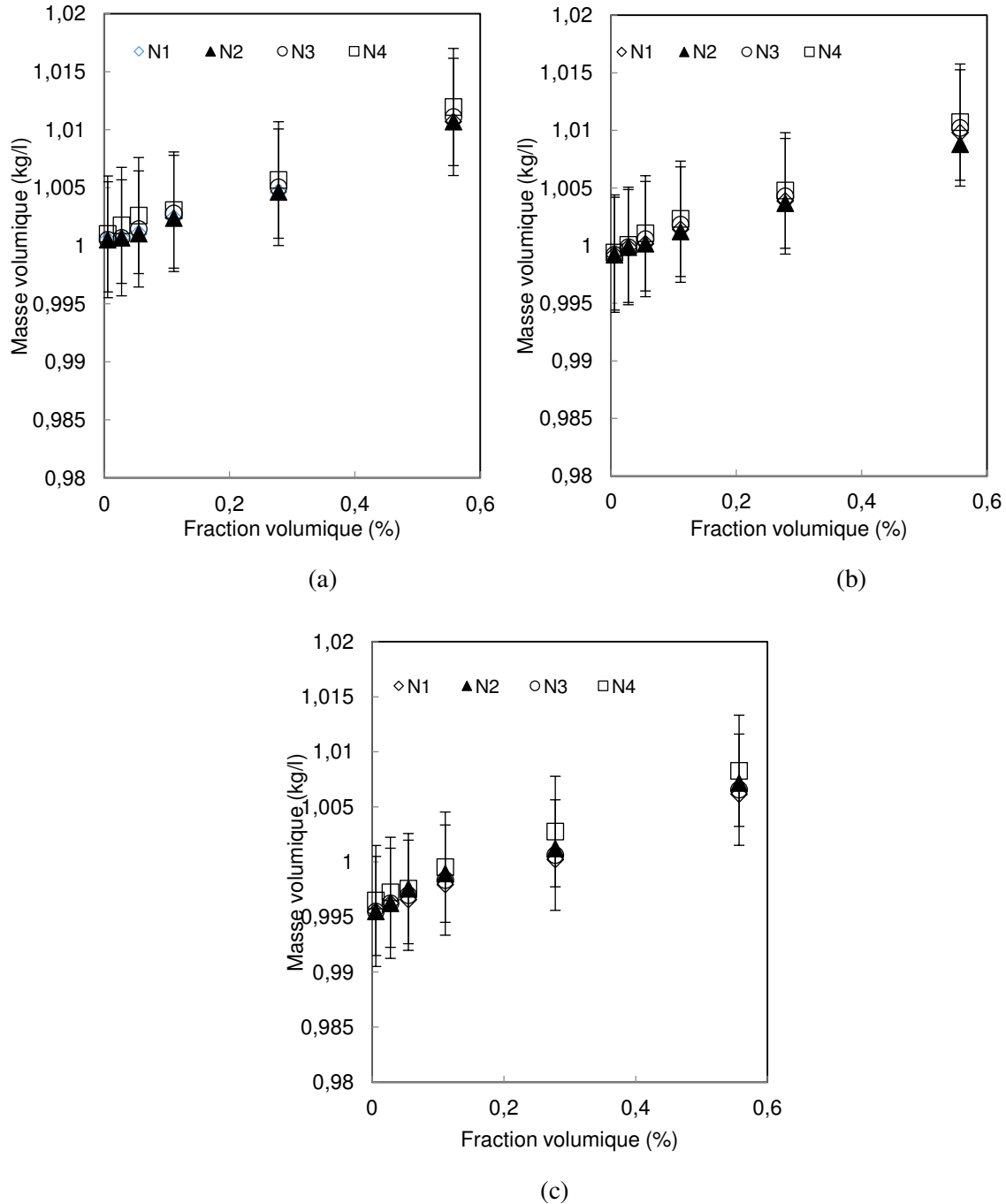


Fig.III. 29 Masse volumique des nanofluides en fonction de la fraction volumique en NTC type NC7000 (a) 20°C ; (b) 30°C ; (c) 40°C

III.4 CHALEUR SPECIFIQUE DES NANOFLUIDES : RESULTATS ET ANALYSES

Dans le cadre de ce travail, et en absence de dispositif expérimental adapté, nous n'avons pas caractérisé expérimentalement la chaleur spécifique des nanofluides utilisés. Les résultats de la littérature ont largement montré que la chaleur spécifique des nanofluides peut être estimée

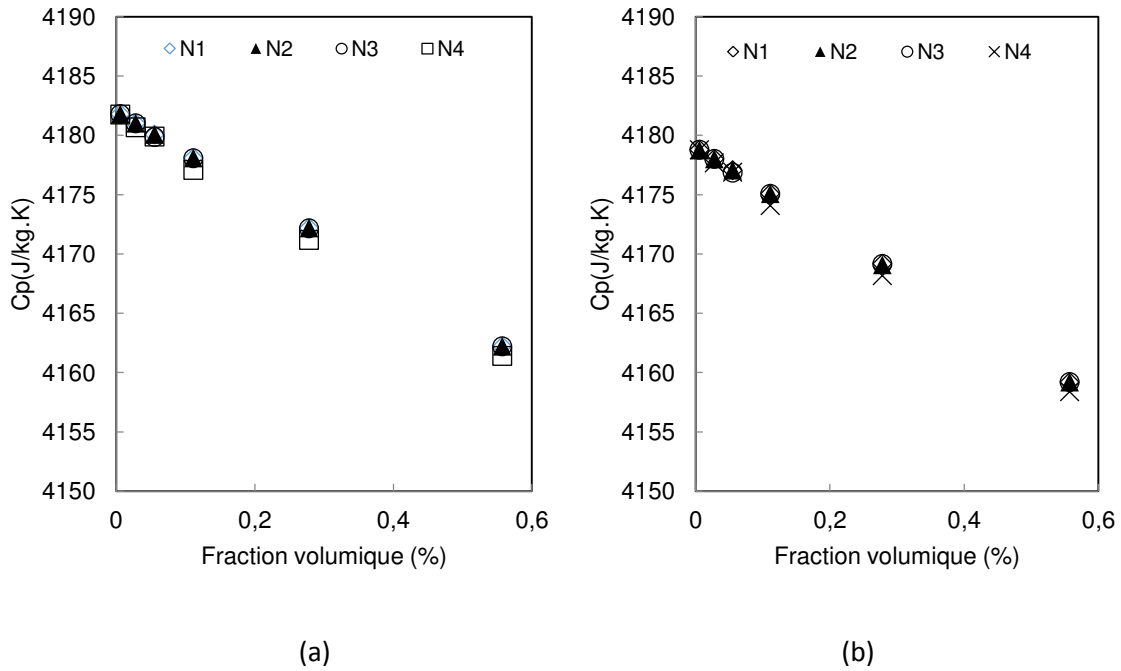
avec le modèle de l'équation III.18 précédemment décrit dans l'étude bibliographique [O'HA/2012]. Nous avons donc utilisé ce modèle pour déterminer la chaleur spécifique des nanofluides testés afin d'étudier l'influence de la fraction volumique des NTC et de la température. Au vu des résultats précédents sur la densité des nanofluides, ce modèle sera d'autant plus adapté que la concentration en surfactant est faible. Il est également nécessaire de considérer que la chaleur spécifique du surfactant est négligeable devant celles des autres constituants.

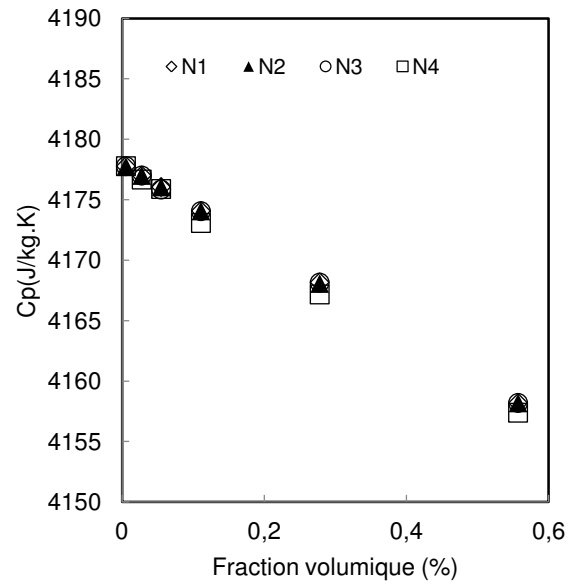
$$C_{p,nf} = \frac{\varphi_v (\rho C_p)_{np} + (1 - \varphi_v) (\rho C_p)_{fb}}{\varphi_v \rho_{np} + (1 - \varphi_v) \rho_{fb}} \quad \text{Eq.III. 19}$$

III.4.1 Effet de la fraction volumique

Les figures III.30 montrent l'évolution de la chaleur spécifique des nanofluides N1, N2, N3 et N4 en fonction de la fraction volumique pour les trois températures 20, 30 et 40°C. Lorsque la fraction volumique des NTC croît, cela se traduit par une légère dégradation de la chaleur spécifique des nanofluides. Ce comportement est dû aux faibles valeurs de la chaleur spécifique des NTC comparées à l'eau déminéralisée.

On note aussi que les courbes des chaleurs spécifiques sont similaires pour les quatre nanofluides étudiés.



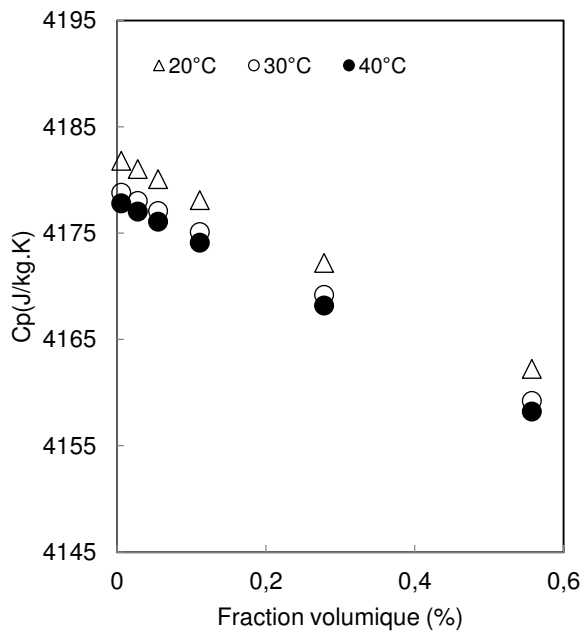


(c)

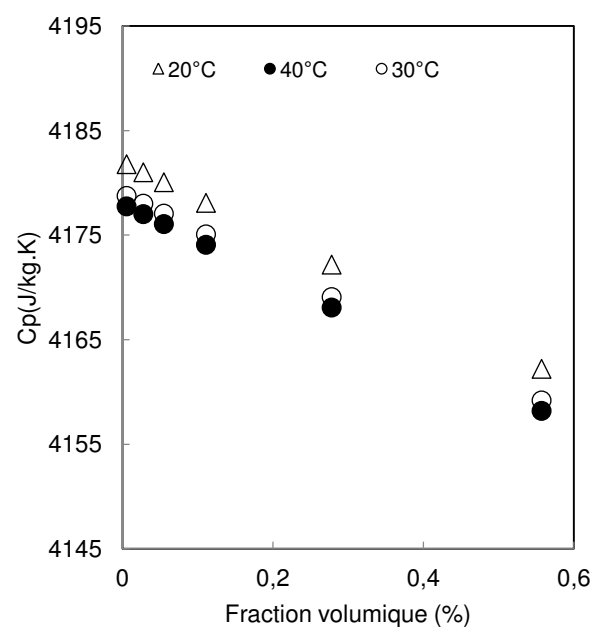
Fig.III. 30 Chaleur spécifique en fonction de la fraction volumique en NTC type NC7000 (a) 20°C ; (b) 30°C ; (c) 40°C

III.4.2 Effet de la température

Sur les figures III.31, on représente l'évolution de la chaleur spécifique en fonction de la fraction volumique et de la température pour les différents nanofluides : (a) N1, (b) N2, (c) N3 et (d) N4.



(a)



(b)

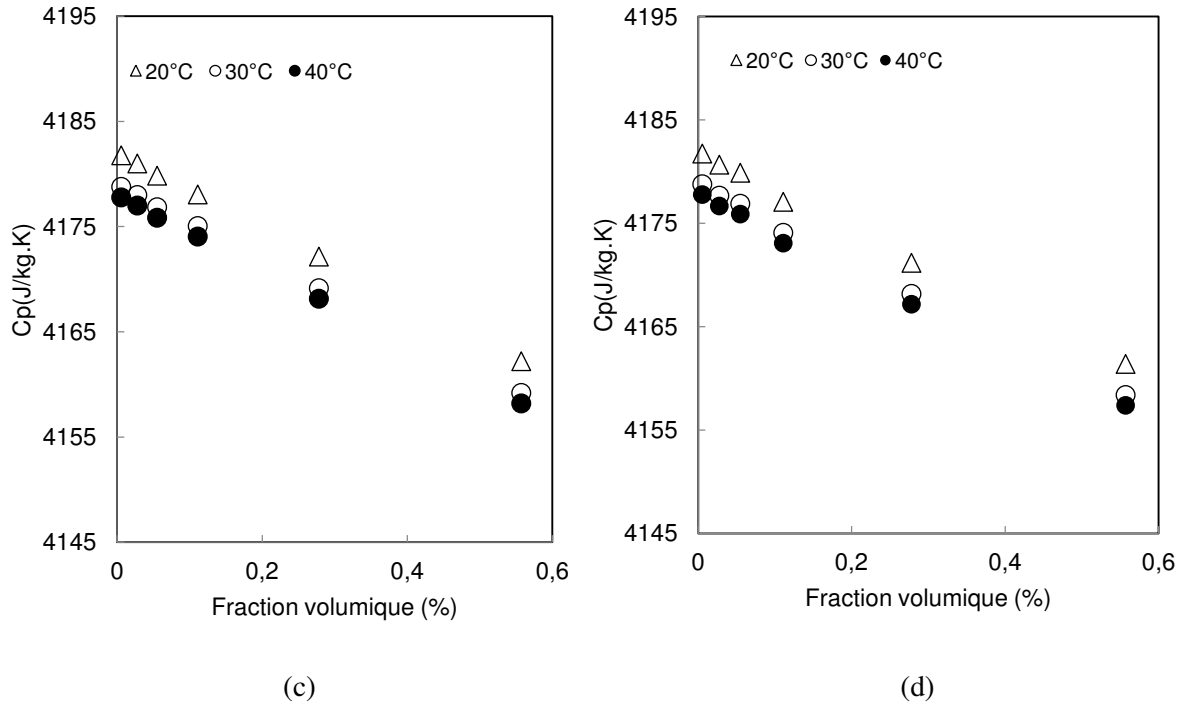


Fig.III. 31 Chaleur spécifique en fonction de la fraction volumique en NTC type NC7000 (a) N1 ; (b) N2 ; (c) N3 ; (d) N4

On remarque un comportement similaire des quatre nanofluides vis-à-vis de l'effet de la température. Les valeurs calculées de la chaleur spécifique à 20°C sont légèrement supérieures par rapport à celles des températures 30 et 40°C.

III.5 BILAN ET CONCLUSIONS SUR LES MESURES DES PROPRIETES THERMOPHYSIQUES DES NANOFLUIDES A BASE DE NTC

La caractérisation des propriétés thermo-physiques des nanofluides à base de NTC étudiés nous a permis de mettre en évidence l'influence de la fraction volumique, de la température, du type de surfactant et du rapport d'aspect des NTC. Les résultats montrent qu'à faibles concentrations, inférieures à 0.1% massique (ou 0.055% volumique pour les nanofluides à base de NTC type NC7000), on observe que :

- Le comportement rhéologique des nanofluides est newtonien quel que soit le taux de cisaillement appliqué et il est indépendant du type de surfactant utilisé et du rapport d'aspect.
- La température n'a pas d'effet significatif sur l'évolution de la viscosité relative (pour le nanofluide N1).
- Les valeurs des viscosités dynamiques des nanofluides sont proches de celles des fluides de base associés.
- La température a un effet important sur l'amélioration de la conductivité thermique et cette amélioration est plus prononcée à faibles concentrations.

-
- La chaleur spécifique est plus importante à faibles concentrations en NTC et elle diminue quand cette concentration croît.

Pour l'ensemble de ces raisons, la suite de ce travail se focalise principalement sur l'utilisation des nanofluides à base de NTC pour de faibles concentrations. Nous étudierons deux fractions massiques 0.01 et 0.05%. Ce choix, d'un point de vue pratique, permet de s'affranchir ou de réduire les problèmes de pertes de charge dans les échangeurs de chaleur associés à la viscosité des suspensions liés à la présence des NTC et qui peuvent compenser les gains thermiques obtenus par des fluides adaptés. Ce choix permet néanmoins comme nous l'avons montré de garantir une augmentation assez importante de la conductivité thermique. Vis-à-vis des températures étudiées, les meilleurs résultats sont obtenus pour la température de fonctionnement la plus élevée.

Dans l'objectif d'une exploitation de ces nanofluides dans les échangeurs thermiques liés à l'habitat (capteurs solaires, capteurs thermiques, plancher chauffant, ...), le choix d'une température de fonctionnement dans un système thermique doit s'appuyer à la fois sur les performances thermo-physiques des nanofluides et de leur stabilité en fonction de cette même température. Sur la base de nos résultats, une température de 45°C semble propice.

Aussi, les propriétés thermo-physiques des nanofluides (aux deux fractions massiques 0.01 et 0.05%) sont ainsi évaluées à cette température et les principaux résultats sont présentés en première partie du prochain chapitre. On s'intéressera ensuite à l'étude des performances thermiques de ces nanofluides dans les échangeurs décrits au chapitre 2.

Chapitre IV :

Etude du comportement thermique des nanofluides dans un échangeur de chaleur

INTRODUCTION

Après une étude complète sur la caractérisation des propriétés thermo-physiques des nanofluides à base de NTC, il s'agit à présent de les tester dans une boucle thermique dans le but d'évaluer leurs performances thermiques. Ce chapitre propose une étude expérimentale sur deux types d'échangeurs. Nous avons d'abord étudié le comportement thermique des nanofluides, antérieurement présentés et caractérisés dans les chapitres précédents, dans un échangeur à tubes concentriques (en U) à une seule fraction massique 0.01% (étude préliminaire). Cette première étude nous a permis, en s'appuyant sur les tendances observées, de mettre en évidence le potentiel thermique des nanofluides étudiés par rapport aux fluides de base associés.

Ensuite, et dans le but de raffiner et consolider les résultats obtenus, nous avons caractérisé le comportement thermique des nanofluides dans le banc d'essai composé d'un échangeur thermique coaxial que nous avons conçu (voir section II.5.3.1 chapitre II). Cette étude permet une détermination plus précise des flux échangés et des coefficients d'échange convectifs locaux et donne lieu à des nouvelles interprétations reposant sur : les effets des différents paramètres qui peuvent influencer le comportement thermique des nanofluides dans un échangeur de chaleur.

IV.1 ETUDE PRELIMINAIRE : COMPORTEMENT THERMIQUE DANS UN ECHANGEUR EN U : RESULTATS ET ANALYSES

Cette étude s'est intéressée particulièrement à l'évolution des propriétés thermiques globales (coefficient d'échange convectif moyen) des nanofluides par rapport à celles du fluide de base. Ceci est dans le but de mettre en évidence les gains thermiques que peut procurer l'application des nanofluides dans un échangeur de chaleur. Pour cela, nous avons choisi de tester trois nanofluides à une seule fraction massique en NTC (0.01%) :

- *N1 (à base de NC7000 dispersés dans de l'eau déminéralisée et stabilisé avec le surfactant SDBS)*
- *N3 (à base de NC7000 dispersés dans de l'eau déminéralisée et stabilisé avec le surfactant Polycarboxylate de sodium soluble dans l'eau (O))*
- *N4 (à base de CNTA dispersés dans de l'eau déminéralisée et stabilisé avec le surfactant Polycarboxylate de sodium soluble dans l'eau (O))*

Au sein de l'échangeur, la température moyenne entre l'entrée et la sortie du fluide chaud dans le tube central, où circulent les nanofluides, est d'environ 45°C. Ainsi, les propriétés thermo-physiques (masse volumique, chaleur spécifique, conductivité thermique et viscosité dynamique) ont été évaluées suivant les procédures détaillées dans le chapitre II à cette température moyenne.

Le tableau IV.1 résume les propriétés thermo-physiques des nanofluides étudiés à la fraction massique 0.01%.

Tableau IV. 1 Propriétés thermo-physiques des nanofluides à la température moyenne

Nanofluide	Masse volumique (kg/m ³)	Chaleur spécifique (J/kg.K)	Conductivité thermique (W/m.K)	Viscosité dynamique (mPa.s)
N1	990.25	4179.7	0.720	0.604
N3	990.25	4179.7	0.710	0.604
N4	990.26	4179.6	0.695	0.602

IV.1.1 Variation des températures à l'entrée/sortie de l'échangeur

Cette première méthode d'analyse « qualitative » consiste à comparer et à analyser les températures de l'échangeur de chaleur avec et sans utilisation des nanofluides. En effet, lorsque le régime permanent est atteint, on lance l'acquisition des températures correspondantes de l'entrée/sortie des tubes annulaire et central pendant 30 minutes. On calcule ensuite la moyenne de l'évolution temporelle pour chaque température. Le tableau IV.2 représente les résultats obtenus dans le tube annulaire à 40l/h et dans le tube central à 20l/h. On a choisi de représenter les températures à un débit relativement faible dans l'espace central pour pouvoir visualiser les écarts de température.

Tableau IV. 2 Variation des températures à l'entrée sortie de l'échangeur

Différence de T° dans l'espace annulaire (°C)				Différence de T° dans l'espace central (°C)			
Eau	N1	N3	N4	Eau	N1	N3	N4
3.83	5.86	5.35	5.02	7.73	9.95	9.35	8.99

On observe que les températures de sortie de l'échangeur sont modifiées par la présence des nanofluides comparées à l'eau déminéralisée. En effet, l'utilisation des nanofluides dans le tube central illustre une augmentation de la température de sortie dans l'espace annulaire par rapport à l'eau. Cette augmentation est maximale pour le nanofluide N1 et minimale pour le nanofluide N3. Ceci peut être expliqué par l'amélioration de la conductivité thermique des nanofluides N1, N3 et N4 (tableau IV.1).

Il est à noter que cette méthode d'analyse est seulement qualitative. Elle ne permet pas de quantifier les améliorations liées à l'évolution des températures dans l'échangeur. Cependant, les tendances observées des profils de température aux sorties de l'échangeur sont très utiles pour approfondir et consolider l'étude. Pour cette raison, on s'intéresse maintenant aux performances thermiques (flux de chaleur échangé et coefficient d'échange convectif) de chaque fluide.

IV.1.2 Bilans énergétiques

La figure IV.1 montre l'évolution du flux de chaleur transféré du fluide chaud (espace central) vers le fluide froid (espace annulaire) en fonction du débit du fluide chaud. Ce flux a été évalué en intégrant les résultats obtenus de la caractérisation expérimentale des propriétés thermo-physiques à la température moyenne (tableau IV.1). En observant la figure VI.1, on s'aperçoit que le flux de chaleur transféré en présence des nanofluides dans l'espace central est légèrement supérieur à celui de l'eau déminéralisée notamment à forts débits volumiques.

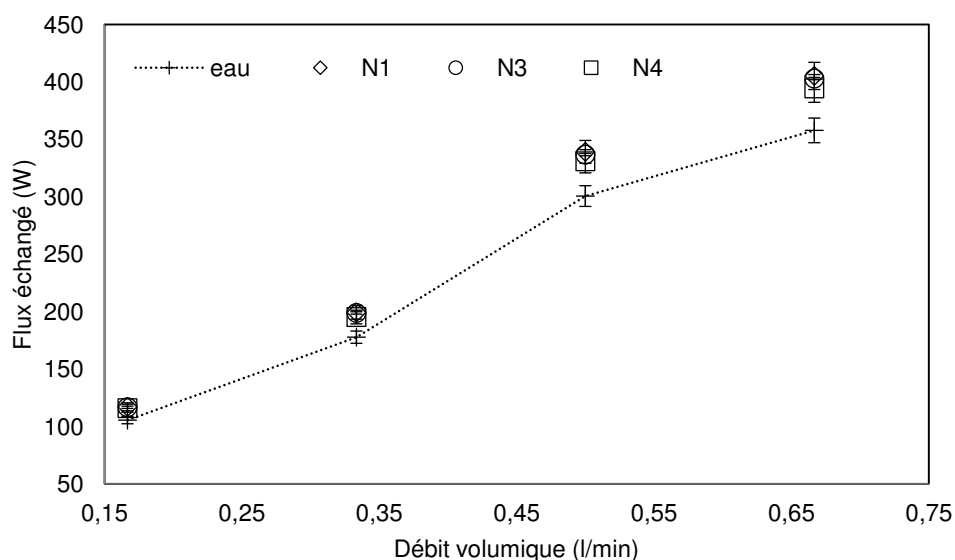


Fig.IV. 1 Evolution du flux transféré en fonction du débit du fluide chaud

Dans les conditions de fonctionnement de l'échangeur et les conditions de l'expérience fixées, la figure IV.2 illustrant l'amélioration du flux échangé des nanofluides N1, N3 et N4 par rapport à l'eau en fonction nombre de Reynolds dans le tube central, montre pour les trois nanofluides un gain sur le flux échangé. Ce gain thermique varie entre 11 et 13% pour le nanofluide N1, entre 10 et 12.5% pour le nanofluide N3 et il est de l'ordre de 10% pour le nanofluide N4. Cette amélioration du flux échangé est en adéquation avec celle évaluée par les mesures de la conductivité thermique (tableau IV.1).

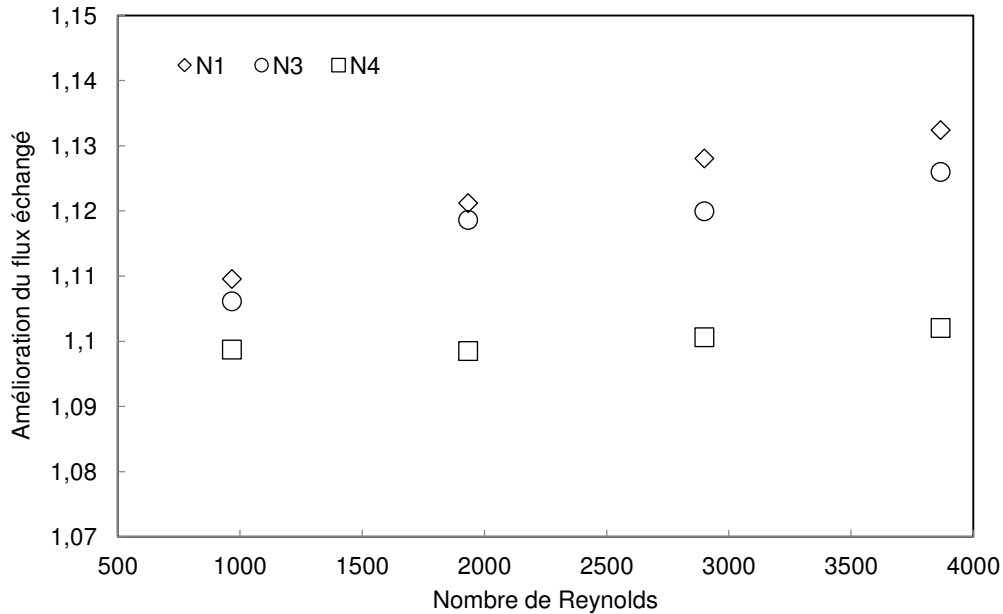


Fig.IV. 2 Amélioration du flux échangé en fonction du nombre de Reynolds dans l'espace central

Ces résultats confirment que la modification de la conductivité thermique d'un fluide caloporteur par l'ajout des NTC intensifie proportionnellement les transferts thermiques dans l'échangeur de chaleur étudié.

Dans le but de quantifier et raffiner l'analyse sur l'amélioration des échanges thermiques apportée par l'utilisation des nanofluides étudiés, on s'intéressera maintenant à l'évolution du coefficient d'échange convectif et au nombre de Nusselt associé au niveau du tube central.

IV.1.3 Coefficient d'échange convectif

La figure VI.3 représente l'évolution du coefficient d'échange convectif global au niveau du tube central en fonction du nombre de Reynolds. On constate tout d'abord que les valeurs expérimentales du coefficient d'échange convectif augmentent régulièrement avec le nombre de Reynolds et surtout, cette augmentation a la même allure pour les nanofluides que pour l'eau déminéralisée. Ensuite, on s'aperçoit, comme pour le flux transmis, une légère amélioration du coefficient d'échange des nanofluides N1, N3 et N4 par rapport à celui de l'eau notamment à fort nombre de Reynolds (supérieur à 2500), c'est-à-dire en régime turbulent.

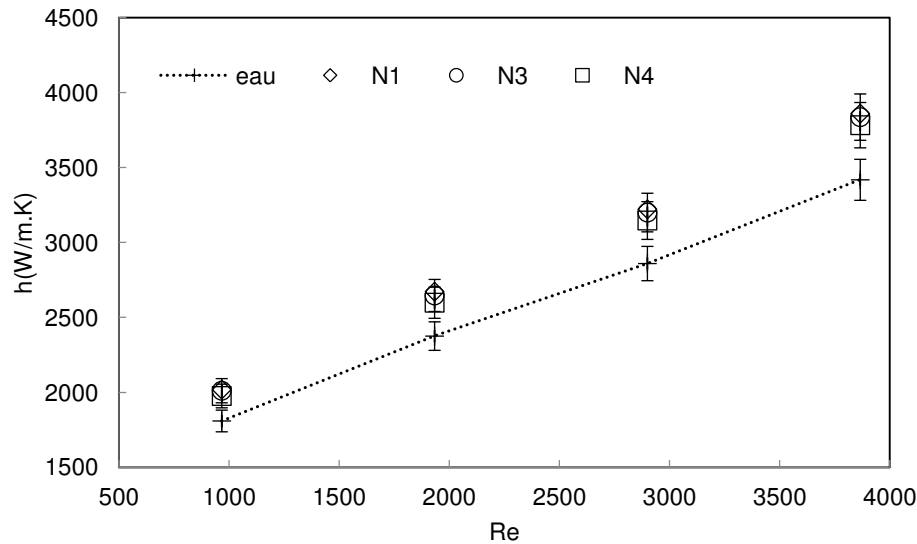


Fig.IV. 3 Evolution du coefficient d'échange convectif en fonction du nombre de Reynolds dans l'espace central

Sur la figure IV.4, on représente l'évolution du coefficient d'échange relatif, défini comme étant le rapport du coefficient d'échange convectif du nanofluide sur celui de l'eau déminéralisée, en fonction du nombre de Reynolds.

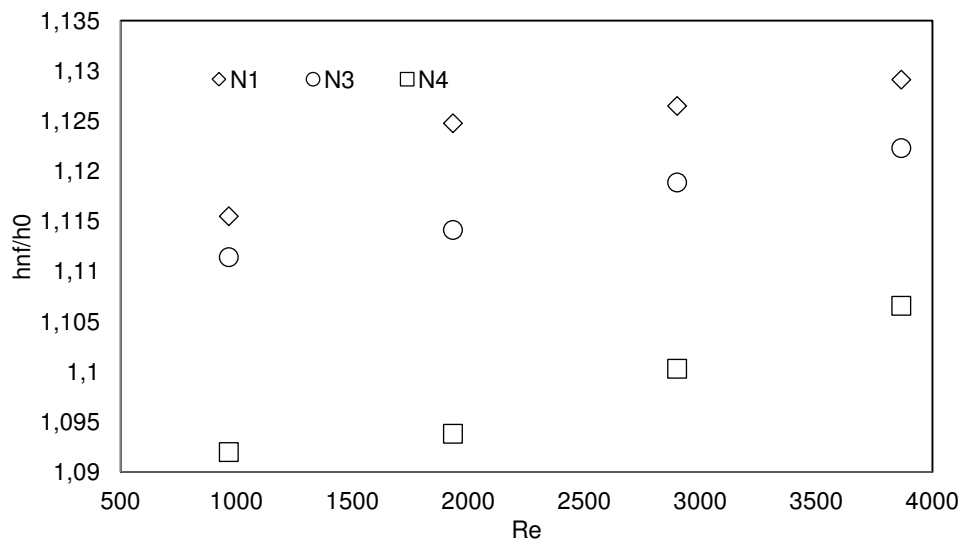


Fig.IV. 4 Evolution du coefficient d'échange relatif en fonction du nombre de Reynolds

On constate que les valeurs expérimentales du coefficient d'échange convectif relatif augmentent très légèrement avec le nombre de Reynolds dans l'espace central. Les résultats sur l'amélioration du coefficient d'échange convectif montrent une tendance similaire vis-à-vis des résultats présentés précédemment sur le gain des flux thermiques. Ainsi, on note une amélioration du coefficient d'échange convectif, par rapport à celui de l'eau dans les mêmes conditions, qui varie entre 11.5 et 13% pour le nanofluide N1 ; entre 11 et 12% pour le nanofluide N3 et enfin entre 9 et 10% pour le nanofluide N4.

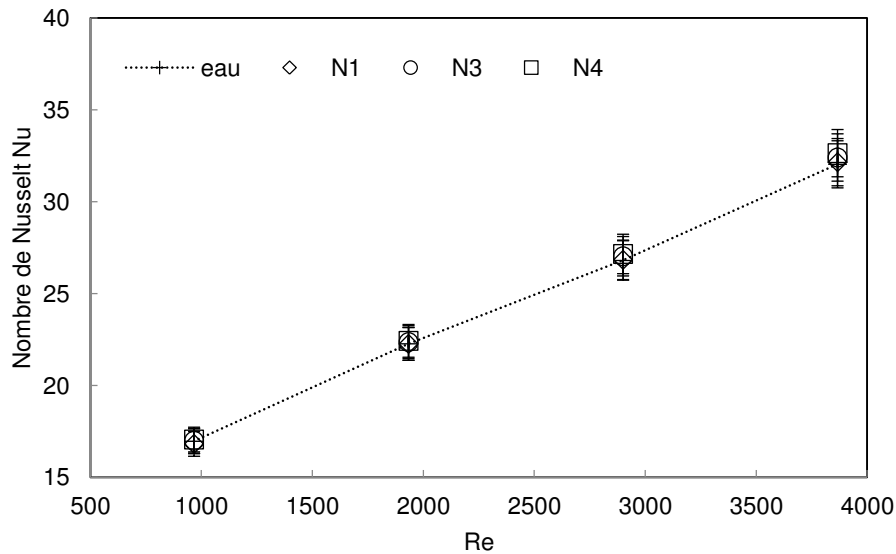


Fig.IV. 5 Evolution du nombre de Nusselt dans le tube central en fonction de Re

La figure IV.5 représente l'évolution des nombres de Nusselt expérimentaux dans le tube central en fonction du nombre de Reynolds. On constate qu'il n'y a pas d'écart significatif entre les valeurs de Nusselt de l'eau et celles des nanofluides testés. Ceci peut être expliqué par le fait que l'augmentation du coefficient d'échange convectif des nanofluides est similaire à celle de la conductivité thermique.

Les résultats de cette section montrent que l'ajout d'une faible quantité de NTC (0.01% en concentration massique), permet d'améliorer relativement les propriétés thermiques de l'eau. Cette amélioration, dans le cas étudié, peut être purement attribuée à la conductivité thermique des nanofluides. Ces résultats rejoignent ceux d'Ashtiani et al. [ASH/2012]. Tandis que pour d'autres travaux de la littérature le taux d'amélioration des échanges thermiques est nettement supérieur à celui de la conductivité thermique [DIN/2006] [WEN/2004] [KUM/2012]. Par exemple pour Ding et al. [DIN/2006], l'amélioration des échanges thermiques atteint jusqu'à 350% par rapport au fluide de base à la fraction volumique 0.5% pour un nanofluide composé de NTC dispersé dans de l'eau et stabilisé par le surfactant GA (*Gum Arabic*) circulant dans un tube cylindrique chauffé uniformément. D'après leurs résultats, cette augmentation ne peut pas être due seulement à l'amélioration de la conductivité thermique qui est de l'ordre de 47%, mais s'explique aussi par le réarrangement des NTC en écoulement, par le rapport d'aspect élevé des NTC, par la couche limite réduite au sein de tube ainsi que par l'effet du cisaillement.

Xuan et Li [XUA/2003] et Kumaresen et al. [KUM/2012] ont observé que l'amélioration des échanges thermiques peut être due aussi au mouvement chaotique (brownien) des NTC. Il est à noter que les concentrations des NTC utilisées dans ces travaux varient entre 0.4 et 1%. Comparées à notre étude, ces concentrations sont trop élevées et les effets des paramètres évoqués ci-dessus s'intensifient avec la concentration des NTC.

Cette différence alors entre nos résultats et ceux de la littérature [XUA/2003] [DIN/2006] [KUM/2012] provient de la très faible concentration des NTC utilisée dans cette étude.

IV.1.4 Comparaison avec les modèles usuels

Dans cette partie, on se propose de comparer les valeurs expérimentales des coefficients d'échanges avec les valeurs théoriques issues des corrélations classiques initialement introduites dans le chapitre II (section II.5.2.2). On rappelle que les nombres de Nusselt théoriques dans le tube central sont calculés à partir des équations II.28 (en régime laminaire) et II.29 (en régime turbulent).

On représente sur la figure IV.6, l'évolution des coefficients d'échange convectifs théoriques et expérimentaux des nanofluides en fonction du nombre de Reynolds. On observe un écart entre les valeurs théoriques et les valeurs expérimentales qui augmentent avec le régime d'écoulement. Ainsi, on peut noter qu'en régime laminaire (pour des nombres de Reynolds inférieurs à 2000), l'écart entre le modèle théorique (équation III.19) et nos points expérimentaux est de l'ordre de 10%. Quant aux nombres de Reynolds plus élevés (supérieurs à 3000), en régime turbulent, cet écart devient plus important et il est de l'ordre de 15%.

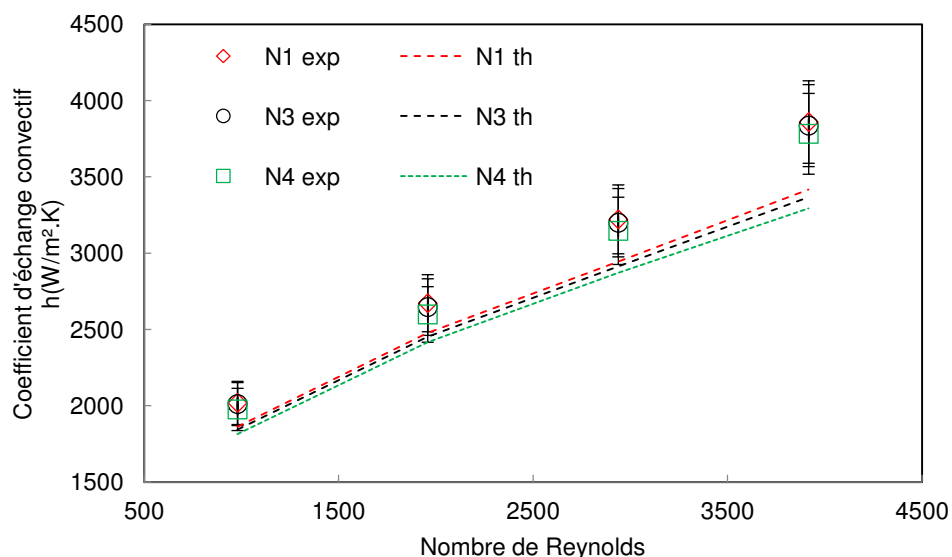


Fig.IV. 6 Evolution des coefficients d'échange théorique et expérimental des nanofluides en fonction du nombre de Re

Les coefficients d'échange convectifs expérimentaux des nanofluides sont supérieurs à ceux calculés à partir des modèles théoriques. Il faut donc trouver une explication à ce constat. L'écart observé entre les points expérimentaux et théoriques peut être expliqué par :

- Dans les modèles théoriques utilisés et dans le calcul des points expérimentaux, on ne tient pas compte de ce qui se passe localement d'un point de vue thermique. L'échange thermique peut être effectué à l'entrée de l'échangeur et les longueurs d'établissement de l'écoulement sont plus courtes.

- Lors de l'estimation du coefficient d'échange convectif des nanofluides, il faut intégrer le comportement local des nanofluides dans l'échangeur de chaleur.

Le dispositif expérimental présenté précédemment dans cette partie nous a permis de mettre en évidence que l'utilisation des nanofluides à base de NTC comme agent thermique dans un échangeur de chaleur permet d'intensifier les échanges thermiques même à très faible fraction massique (ici 0.01%) où la viscosité dynamique des nanofluides restes similaires à celle de l'eau déminéralisée. Cependant, ce dispositif expérimental ne nous permet pas d'étudier plus finement le comportement thermique des nanofluides. Pour cela, nous avons conçu un prototype d'échangeur thermique coaxial où nous avons mené la seconde étude.

Enfin, et avant de présenter la seconde partie expérimentale, dans le paragraphe suivant, on représente les résultats sur la stabilité des nanofluides testés après passage dans l'échangeur de chaleur.

IV.1.5 Etude de la stabilité des nanofluides

Dans cette partie, on se propose d'étudier un problème majeur concernant la stabilité des nanofluides dans le temps après le passage dans l'échangeur de chaleur sous les conditions de fonctionnement fixées. Notre méthodologie consiste à récupérer les nanofluides étudiés après passage dans l'échangeur et remesurer leurs propriétés thermo-physiques, notamment la conductivité thermique. Le tableau IV.3 représente les résultats de la conductivité thermique avant et après passage des nanofluides dans l'échangeur de chaleur à 45°C :

Tableau IV. 3 Conductivité thermique des nanofluides avant et après passage dans l'échangeur

Nanofluide	Conductivité thermique (W/m.K) (Avant)	Conductivité thermique (W/m.K) (Après)
N1	0.720	0,610
N3	0.710	0,708
N4	0.695	0,697

D'après les résultats du tableau IV.3, on peut noter que :

- **La conductivité thermique** des nanofluides N3 et N4 est restée **pratiquement constante** avant et après le passage dans l'échangeur. Ceci confirme que les nanofluides N3 et N4 sont stables et que les conditions de fonctionnement n'ont pas influencé sur la stabilité des deux nanofluides.
- **La conductivité thermique** du nanofluide N1 **s'est dégradée** après le passage dans l'échangeur. En effet, le nanofluide N1 a subi une transformation et il s'est déstructuré à cause de la température élevée imposée dans la boucle chaude (50°C). Ce résultat confirme que le surfactant utilisé pour stabiliser le nanofluide N1 (SDBS) n'est pas fiable à haute température.

Pour ces raisons, et dans la suite de ce travail, le nanofluid N1 ne sera plus utilisé. Et on s'intéressera plus particulièrement aux autres nanofluides initialement présentés dans le chapitre II et pour deux concentrations massiques 0.01 et 0.05%. Afin de caractériser thermiquement les nanofluides en conditions réelles, i-e avec l'ajout d'antigel, un nouveau nanofluid composé d'un mélange d'eau et d'éthylène glycol comme fluide de base sera aussi étudié.

IV.2 PERFORMANCES THERMIQUES DES NANOFLUIDES DANS UN ECHANGEUR COAXIAL HORIZONTAL: RESULTATS ET DISCUSSION

On se propose dans cette seconde partie d'étudier localement le comportement thermique des nanofluides à base de NTC dans le banc d'essai que nous avons conçu et initialement introduit et validé dans le chapitre II. Les nanofluides étudiés dans cette partie sont rappelés dans le tableau IV.4 :

Tableau IV. 4 Liste des nanofluides étudiés

Nanofluid	Type de NTC	fluide de base	Surfactant
N2	NC7000 $R_a \approx 160$	Eau distillée	Lignine
N3	NC7000 $R_a \approx 160$	Eau distillée	Polycarboxylate de Sodium soluble dans l'eau (O)
N4	CNTA $R_a^2 \approx 90$	Eau distillée	Polycarboxylate de Sodium soluble dans l'eau (O)
N6	NC7000 $R_a \approx 160$	Ethylène Glycol (50%) + Eau distillée (50%)	Lignine

Les nanofluides sont testés pour deux fractions massiques : 0.01 et 0.05%.

Au sein de l'échangeur, la température moyenne entre l'entrée et la sortie du fluide chaud dans le tube central, où circulent les nanofluides, est d'environ 45°C. Ainsi, les propriétés thermo-physiques (masse volumique, chaleur spécifique, conductivité thermique et viscosité dynamique) ont été évaluées suivant les procédures détaillées dans le chapitre II à cette température moyenne.

² R_a rapport d'aspect des NTC

Les tableaux IV.5 et IV.6 résument les résultats des propriétés thermo-physiques des nanofluides respectivement aux concentrations massiques 0.01 et 0.05% à la température moyenne entre la température d'entrée et la température de sortie du tube central, où circulent les nanofluides, qui est de l'ordre de 45°C.

Tableau IV. 5 Propriétés thermo-physiques des nanofluides à 0.01%

Nanofluide	Masse volumique (kg/m ³)	Chaleur spécifique (J/kg.K)	Amélioration de la conductivité thermique par rapport au fluide de base (%)	Viscosité dynamique (mPa.s)
N2	990,25	4179.7	9.7	0,604
N3	990,25	4179.7	10.9	0,604
N4	990,26	4179.6	8.6	0,602
N6	1038.84	3368.6	13.2	2.18

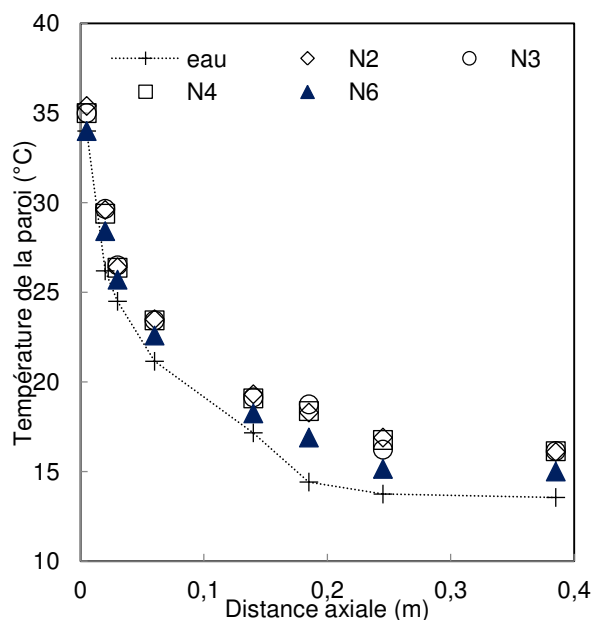
Tableau IV. 6 Propriétés thermo-physiques des nanofluides à 0.05%

Nanofluide	Masse volumique (kg/m ³)	Chaleur spécifique (J/kg.K)	Amélioration de la conductivité thermique par rapport au fluide de base (%)	Viscosité dynamique (mPa.s)
N2	990,44	4178.25	11.3	0.632
N3	990,44	4178.25	11	0.640
N4	990,48	4178.21	9.6	0.633
N6	1039.01	3367.6	15.4	2.35

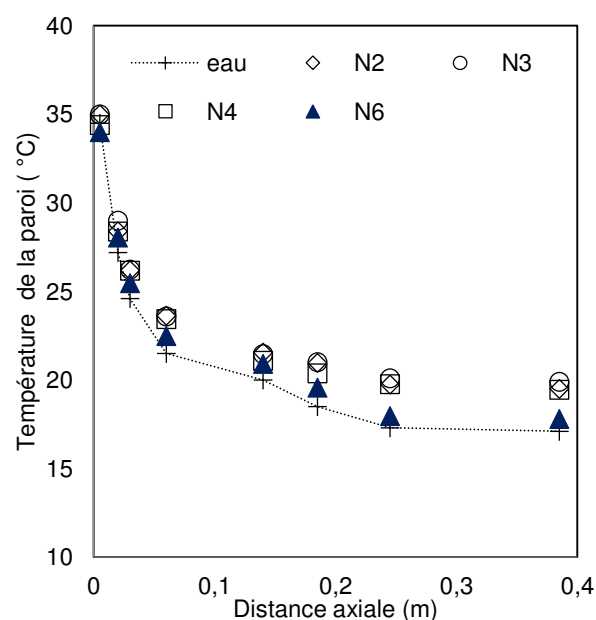
IV.2.1 Observation des températures au niveau de la surface d'échange

Les figures IV.7 et IV.8 illustrent l'évolution de la température au niveau de la surface d'échange en fonction de la distance axiale du tube central dans la zone d'entrée thermique des différents nanofluides étudiés pour quatre nombres de Reynolds (600 ; 950 ; 1890 et 3420) respectivement aux fractions massiques 0.01 et 0.05%. On constate une forte diminution de la température de la paroi à faibles distances axiales. Cette variation de la température diminue avec la distance axiale et se stabilise à des distances axiales élevées. D'après ces observations, on peut supposer que le transfert thermique entre les deux fluides s'effectue majoritairement à la zone d'entrée de l'échangeur de chaleur (à faibles distances axiales). On observe également que pour tous les fluides testés, les écarts de température diminuent en fonction du nombre de

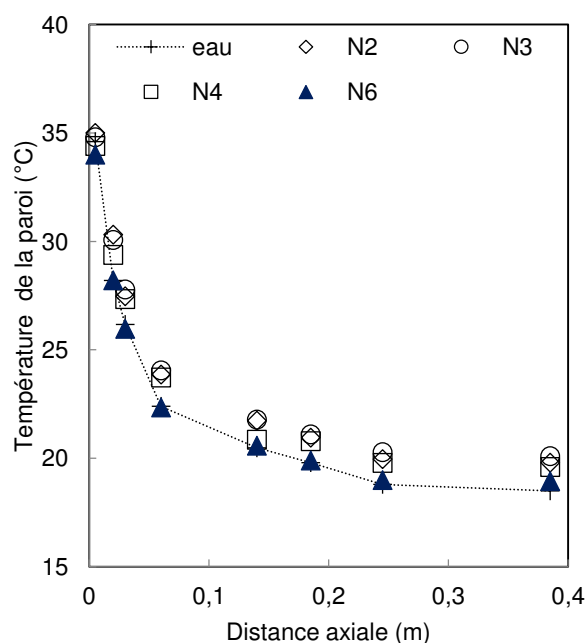
Reynolds à cause des débits élevés. Il est à noter que sur les figures IV.7 (d) et IV.8 (d), nous avons représenté la distribution de la température de la paroi en régime turbulent ($Re=3420$) pour les trois nanofluides (N2, N3 et N4). Nous n'avons pas pu désormais obtenir des résultats sur le nanofluid N6 à hauts débits, car ce nanofluid est beaucoup plus visqueux comparés aux fluides étudiés (à cause de la présence de l'éthylène glycol) et nous étions cependant limités par rapport à la capacité de la pompe de circulation.



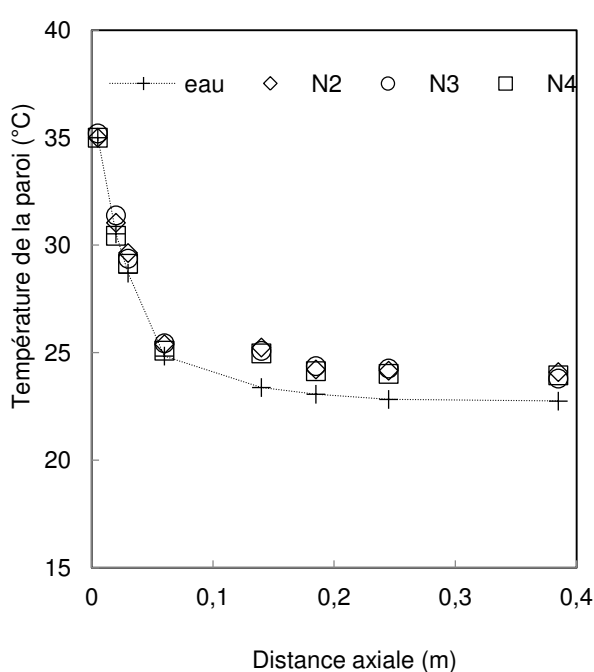
(a)



(b)

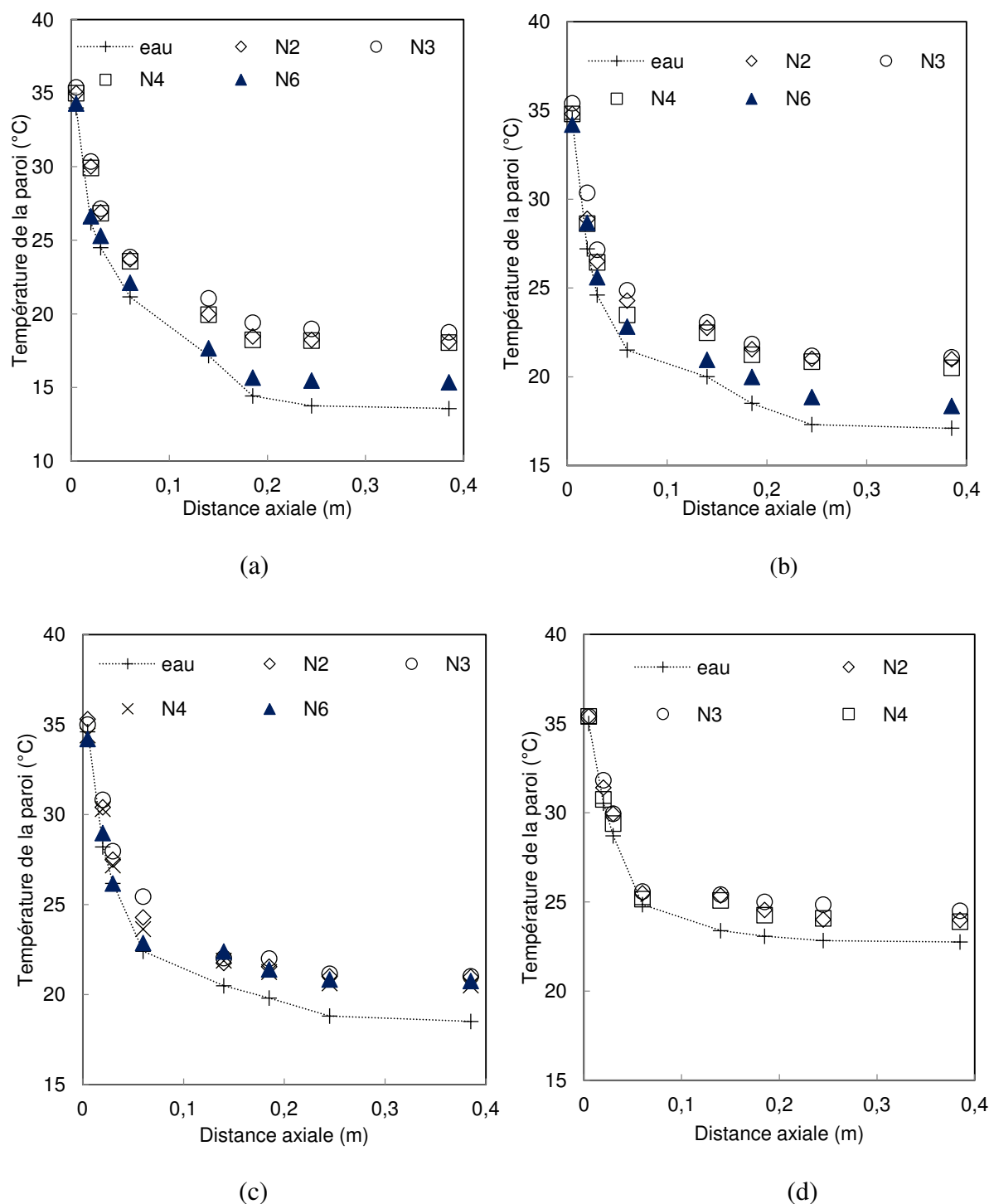


(c)



(d)

**Fig.IV. 7 Distribution de la température à la surface d'échange en fonction de la distance axiale ;
(a) $Re=600$; (b) $Re=950$; (c) $Re=1890$; (d) $Re=3420$**



**Fig.IV. 8 Distribution de la température à la surface d'échange en fonction de la distance axiale ;
(a) $Re=600$; (b) $Re=950$; (c) $Re=1890$; (d) $Re=3420$**

On remarque également que l'utilisation des nanofluides provoque une légère augmentation de la température au niveau de la surface d'échange en comparaison avec l'eau déminéralisée dans le tube central dans le cas des nanofluides N2, N3 et N4. Ces tendances observées sur les

évolutions des températures au niveau de la surface d'échange restent cependant qualitatives. Elles nous montrent que l'échange thermique s'effectue majoritairement à l'entrée de l'échangeur de chaleur (zone d'entrée thermique) et ne permettent en aucun cas de quantifier les améliorations liées à l'utilisation des nanofluides. Par contre, ces évolutions de température observées sont très utiles pour approfondir l'étude. Il s'agit maintenant de s'intéresser à l'évolution des grandeurs thermiques locales (le coefficient d'échange local) en s'appuyant sur les résultats de la distribution de la température à la surface d'échange et sur la caractérisation des propriétés thermo-physiques. Cette étude, complétant celle présentée dans le chapitre III, a pour objectif de caractériser les performances thermiques afin d'étudier les effets des différents paramètres qui peuvent influencer le comportement thermique des nanofluides dans l'échangeur de chaleur. On citera :

- L'effet de la distance axiale ou la zone d'entrée thermique
- L'effet du régime d'écoulement ou le nombre de Reynolds
- Les effets liés à la composition des nanofluides précédemment étudiés dans le chapitre sur la caractérisation des propriétés thermo-physiques des nanofluides (chapitre III), à savoir : la concentration des NTC ; le type de surfactant utilisé.

On peut également étudié dans cette partie l'effet du fluide de base ou l'effet de l'ajout de l'antigel lié à l'utilisation d'un mélange de l'eau déminéralisée et de l'éthylène glycol dans la composition du nanofluide N6.

IV.2.2 Effet de la distance axiale

Les figures IV.9 et IV.10 montrent les évolutions des nombres de Nusselt locaux respectivement aux fractions massiques 0.01 et 0.05% en régime laminaire ($Re=950$ pour les figures (a)) et en régime turbulent ($Re=3420$ pour les figures (b)). Deux tendances principales apparaissent sur les graphiques. Tout d'abord, le nombre de Nusselt local est très élevé dans la zone d'entrée (à faible distance axiale), ce qui confirme que les échanges thermiques avec le fluide dans l'espace annulaire se font principalement à la zone d'entrée. Ensuite, il est intéressant d'observer que les valeurs de Nusselt diminuent graduellement avec la distance axiale et ont tendance à se stabiliser à des distances axiales élevées.

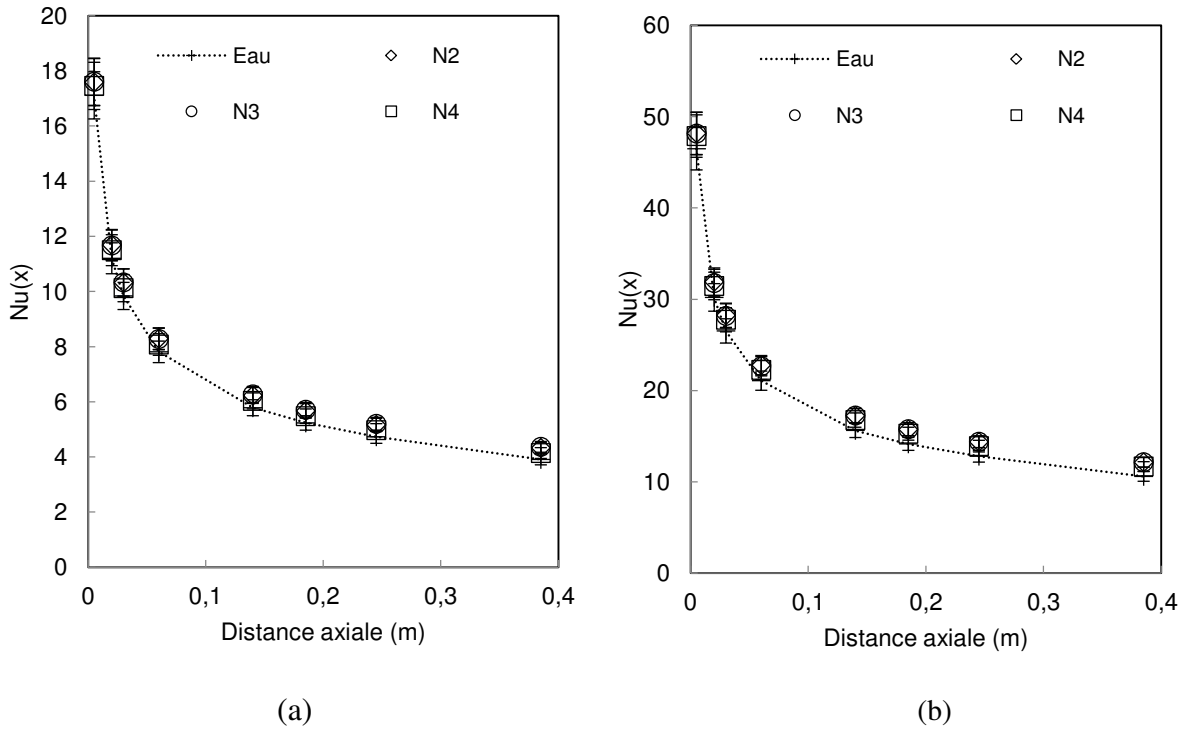


Fig.IV. 9 Evolution du Nombre de Nusselt local à la fraction massique 0.01% en fonction de la distance axiale ; (a) Régime laminaire $Re=950$; (b) Régime turbulent $Re=3420$.

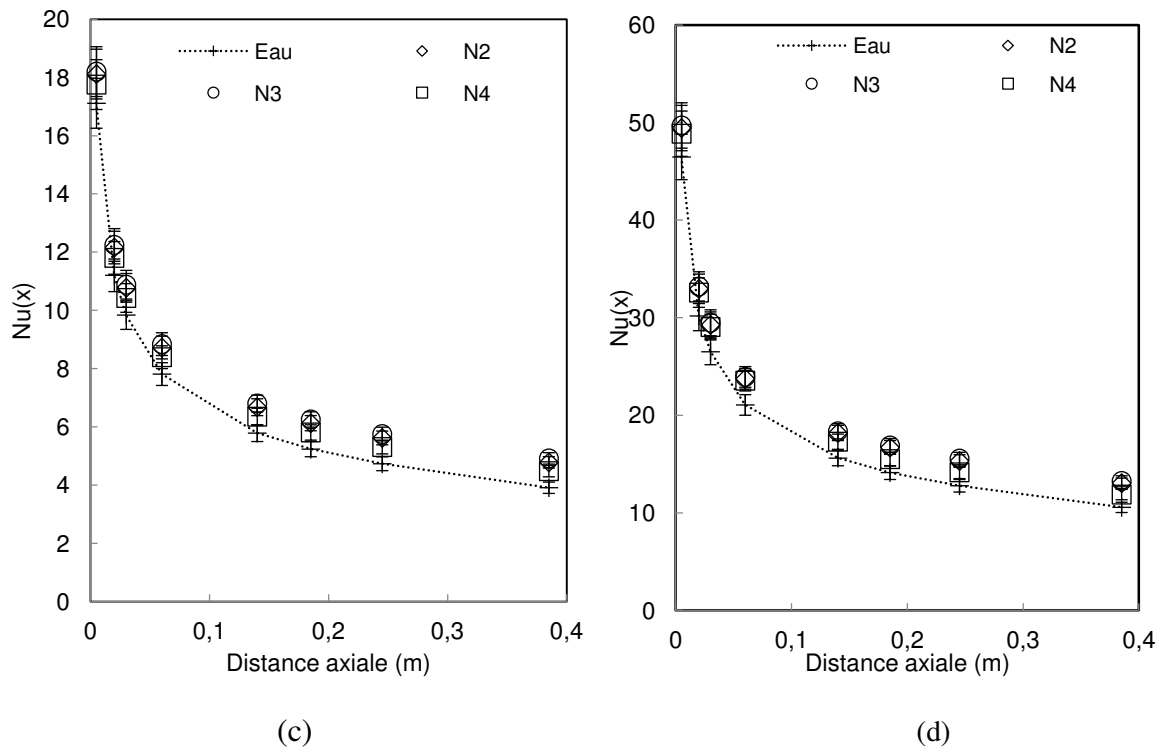


Fig.IV. 10 Evolution du nombre de Nusselt local à la fraction massique 0.05% en fonction de la distance axiale ; (a) Régime laminaire $Re=950$; (b) Régime turbulent $Re=3420$

On observe également que les évolutions des nombres de Nusselt de l'eau déminéralisée et des nanofluides sont très proches. Les valeurs de Nusselt des nanofluides enregistrées sont très légèrement supérieures à celles de l'eau, notamment à la fraction massique 0.05%. Ceci reste désormais qu'une tendance, et on ne peut rien troncher à ce constat car ces valeurs restent dans le domaine d'incertitude.

L'utilisation des nanofluides ne semble pas avoir d'influence notable sur les évolutions des nombres de Nusselt.

Sur les figures IV.11 et IV.12 on représente les évolutions des coefficients d'échange convectifs locaux respectivement aux fractions massiques 0.01 et 0.05% en régime laminaire ($Re=950$ pour les figures (a)) et en régime turbulent ($Re=3420$ pour les figures (b)). On observe, comme pour les évolutions des nombres de Nusselt, que le coefficient d'échange convectif local est très élevé dans la zone d'entrée à faible distance axiale et a tendance à se stabiliser à des distances axiales élevées.

Le coefficient d'échange des nanofluides testés est toujours légèrement supérieur à celui de l'eau déminéralisée.

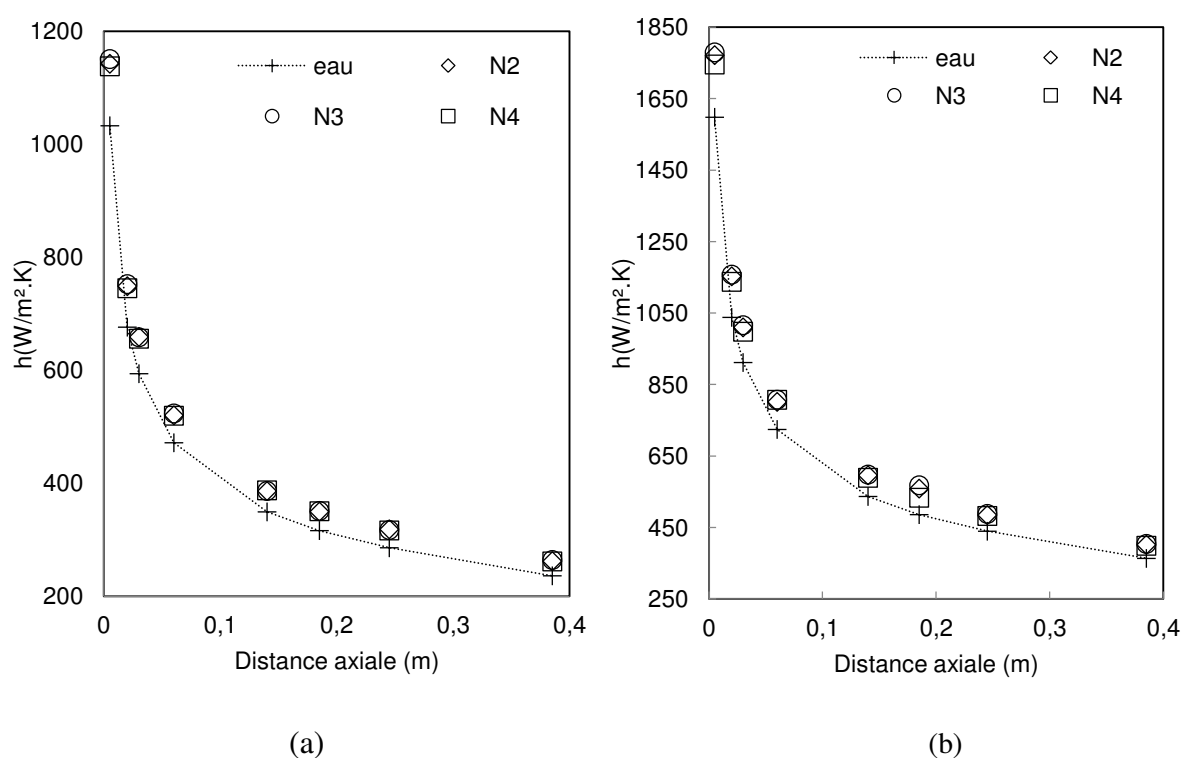


Fig.IV. 11 Evolution du coefficient d'échange convectif local à la fraction massique 0.01% en fonction de la distance axiale ; (a) Régime laminaire $Re=950$; (b) Régime turbulent $Re=3420$.

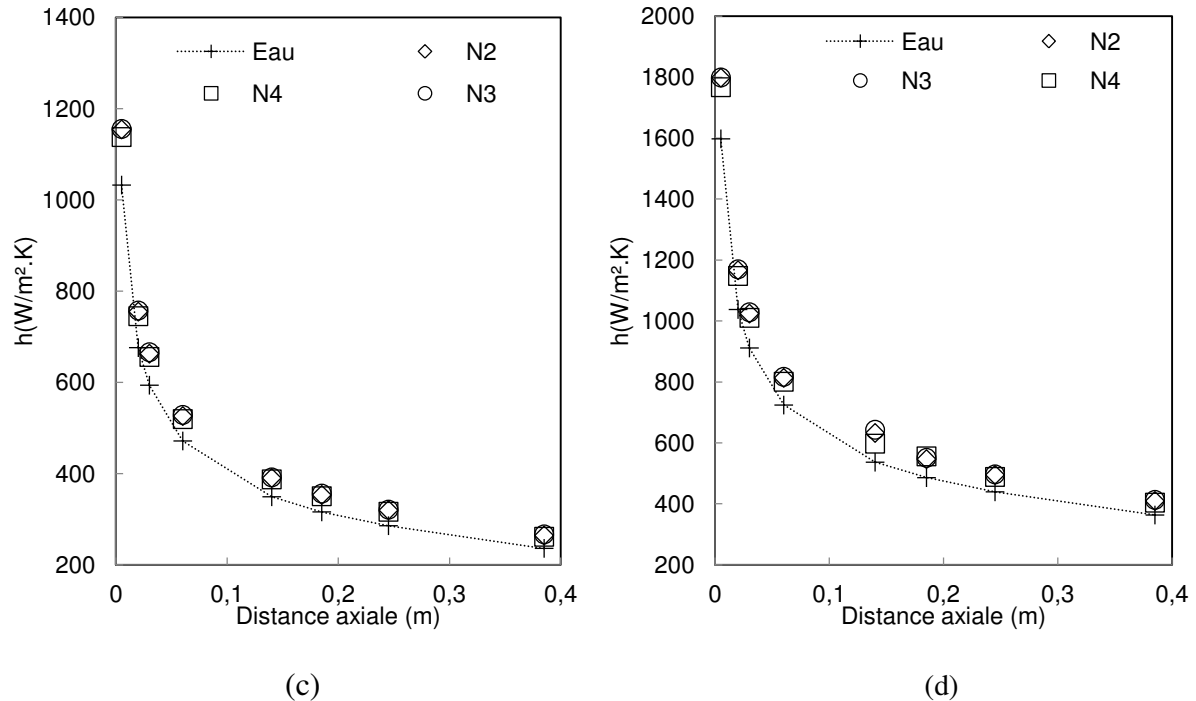


Fig.IV. 12 Evolution du coefficient d'échange convectif local à la fraction massique 0.05% en fonction de la distance axiale ; (a) Régime laminaire $Re=950$; (b) Régime turbulent $Re=3420$

Afin d'illustrer l'amélioration des coefficients d'échange convectifs locaux apportée par l'utilisation des nanofluides en fonction de la distance axiale, les figures IV.13 et IV.14 proposent les évolutions des coefficients d'échange relatifs (h_{nf}/h_{fb}) respectivement aux fractions massiques 0.01 et 0.05% en régime laminaire (figures (a)) et en régime turbulent (figure (b)).

On remarque qu'à la fraction massique 0.01%, en régime laminaire ($Re=950$), l'amélioration du coefficient d'échange convectif par rapport à l'eau augmente très légèrement avec la distance axiale pour les nanofluides N2 et N3. Tandis que pour le nanofluide N4, cette amélioration est quasi-constante en fonction de la distance axiale. On note un gain thermique de l'ordre de 12% pour le nanofluide N3, de l'ordre de 11% pour le nanofluide N2 et de l'ordre de 9% pour le nanofluide N4.

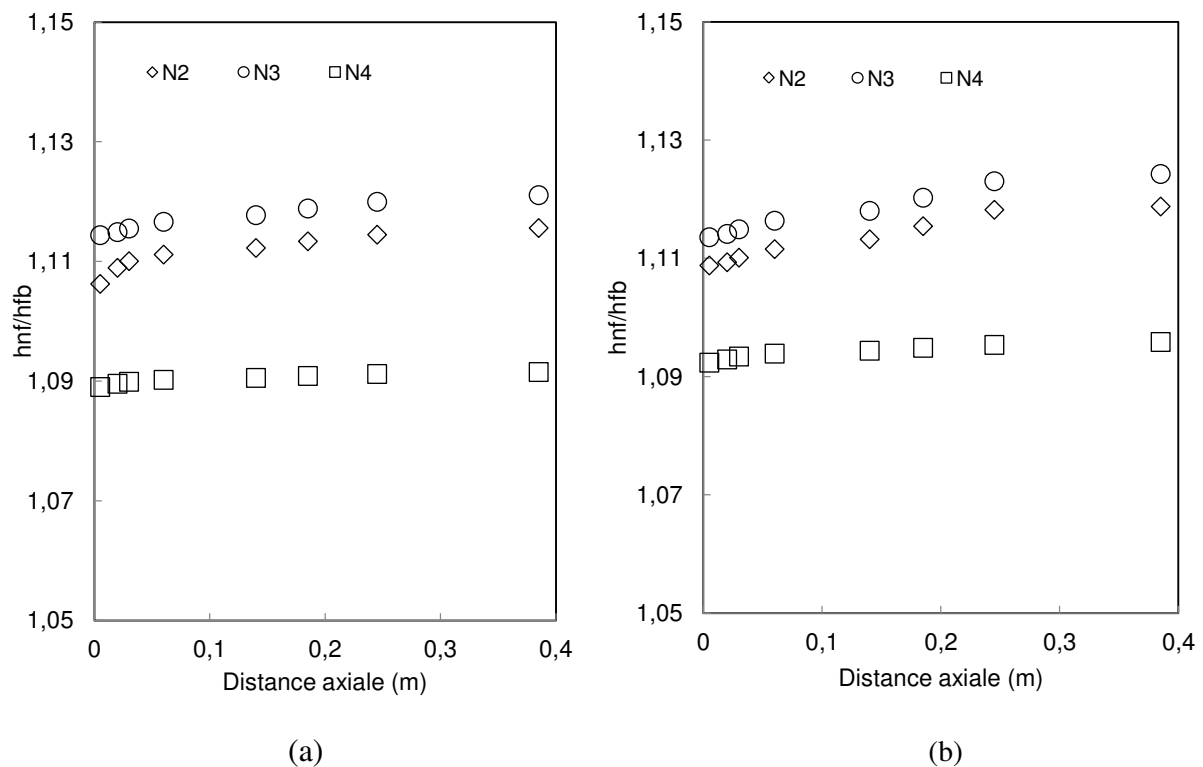


Fig.IV. 13 Evolution du coefficient d'échange relatif à la fraction massique 0.01% en fonction de la distance axiale ; (a) Régime laminaire $Re=950$; (b) Régime turbulent $Re=3420$

En régime turbulent, on constate des tendances similaires à celles du régime laminaire avec un gain thermique légèrement prononcé. On note une amélioration du coefficient d'échange convectif qui varie entre 11.5 et 12.5% pour le nanofluide N3, entre 11 et 12% pour le nanofluide N2 et de l'ordre de 10% pour le nanofluide N4.

De manière similaire, on représente les évolutions du coefficient d'échange relatif en fonction de la distance axiale à la fraction massique 0.05% pour deux nombres de Reynolds, $Re=950$ (figure IV.14 (a)) et $Re=3420$ (figure IV.14 (b)). Par rapport à la figure précédente (figure IV.13), on constate simplement que l'amélioration du coefficient d'échange convectif est plus intéressante notamment pour le nombre de Reynolds égal à 3420 (régime turbulent). Cette amélioration augmente avec la distance axiale et elle varie entre 12.5 et 13.5% pour le nanofluide N2, entre 13 et 15% pour le nanofluide N3 et entre 11 et 12.5% pour le nanofluide N4.

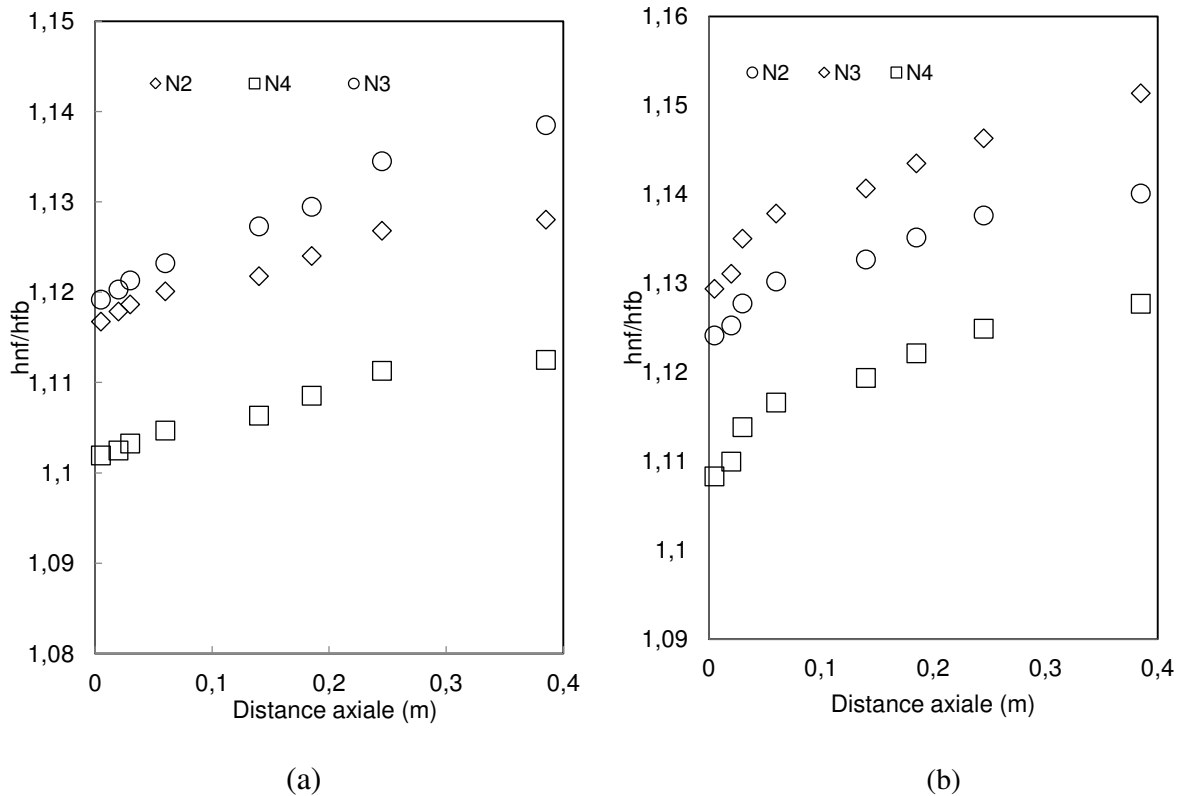


Fig.IV. 14 Evolution du coefficient d'échange relatif à la fraction massique 0.05% en fonction de la distance axiale ; (a) Régime laminaire $Re=950$; (b) Régime turbulent $Re=3420$

En comparant l'amélioration de la conductivité thermique des nanofluides testés (tableau IV.6) avec celle du coefficient d'échange convectif on s'aperçoit que les gains thermiques apportés par l'utilisation des nanofluides en écoulement sont légèrement supérieurs à ceux évalués pour la conductivité thermique notamment à fort nombre de Reynolds. Ceci montre que l'augmentation de la conductivité thermique des nanofluides n'est pas la seule responsable à l'intensification constatée des échanges thermiques dans l'échangeur de chaleur notamment à la fraction massique 0.05%. Cette intensification peut éventuellement être due à d'autres paramètres dont le réarrangement des NTC en écoulement, le mouvement chaotique des NTC qui s'intensifie avec la vitesse de l'écoulement, le rapport d'aspect élevé des NTC, la couche limite réduite au sein de tube ou et l'augmentation de la surface d'échange liée au dépôt des NTC sur le tube [WEN/2004] [DIN/2007] [PAR/2012].

IV.2.3 Effet du régime d'écoulement

Sur la figure IV.15 (a)-(b), le coefficient d'échange relatif a été tracé en fonction du nombre de Reynolds pour les deux concentrations étudiées 0.01 et 0.05% à une seule distance axiale ($x/D \approx 10$) pour permettre d'étudier l'influence du régime d'écoulement sur le gain thermique apporté par l'utilisation des nanofluides. On note un comportement similaire des trois nanofluides en fonction du nombre de Reynolds. A la fraction massique 0.01%, l'amélioration du coefficient d'échange convectif augmente légèrement à faibles nombres de Reynolds (inférieur à 1000), et se stabilise pour des nombre de Reynolds supérieur à 1000. Tandis qu'à

la fraction massique 0.05%, cette amélioration augmente en fonction du nombre de Reynolds, elle varie entre 11.5 et 13% pour le nanofluide N2, entre 12.5 et 14% pour le nanofluide N3 et entre 10,5 et 12% pour le nanofluide N4.

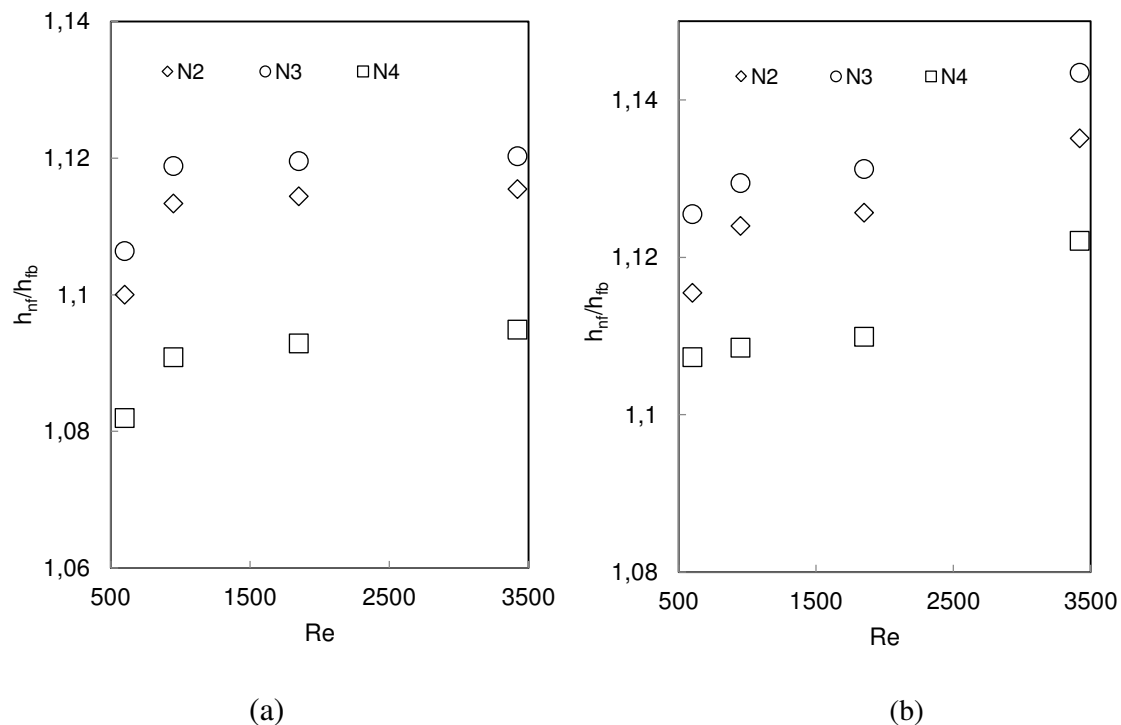


Fig.IV. 15 Evolution du coefficient d'échange relatif en fonction du nombre de Reynolds à $x/D=10$; (a) fraction massique 0.01% ; (b) fraction massique 0.05%

Il apparaît d'après ces résultats que l'influence du nombre de Reynolds est plus prononcée pour la fraction massique la plus élevée (0.05%). Ceci peut être expliqué par l'intensification des mouvements browniens dus à la présence des NTC et aux forts débits d'écoulement [AMR/2012].

Des résultats similaires (non présentés ici) ont été obtenus aux différentes distances axiales.

IV.2.4 Effets liés à la composition des nanofluides

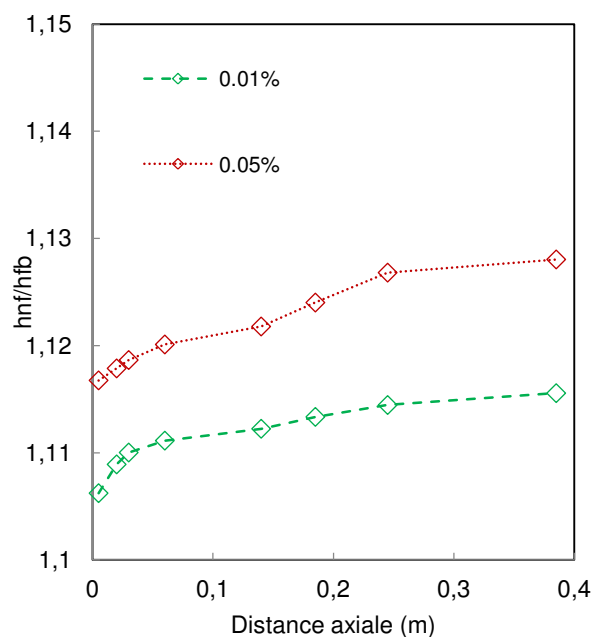
Il s'agit à présent d'analyser, sur le comportement thermique dans l'échangeur de chaleur étudié, les effets liés à la composition des nanofluides. On s'intéressera en particulier à :

- L'effet de la concentration des NTC (deux concentrations sont testées 0.01 et 0.05%)
- L'effet du rapport d'aspect étudié sur les deux nanofluides N3 et N4 qui diffèrent seulement de leur rapport d'aspect (même fluide de base et même type de surfactant).
- L'effet du type de surfactant étudié sur les nanofluides N2 et N3. Ces nanofluides ont le même type de NTC et le même fluide de base et diffèrent seulement du type de surfactant utilisé.
- L'effet du fluide de base étudié sur les nanofluides N2 et N6 où le nanofluide N6 a la même composition que N2, à laquelle on a rajouté de l'éthylène glycol (50/50). Ceci

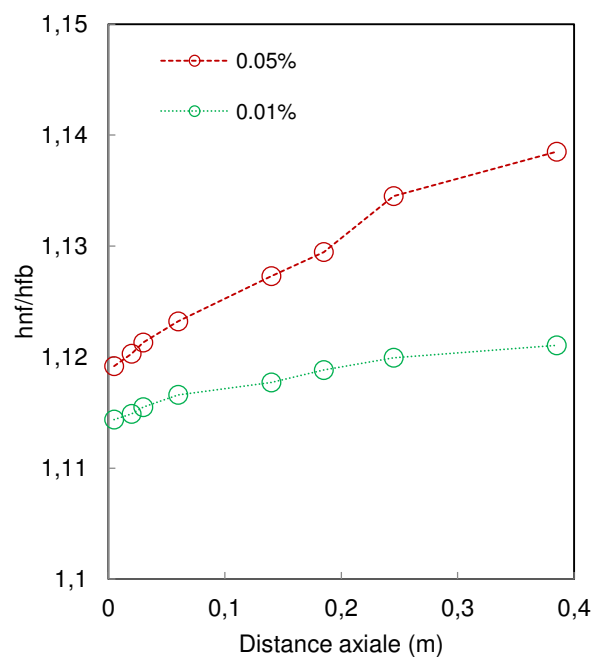
est dans le but de pouvoir caractériser thermiquement en plus le comportement du nanofluide en conditions réelles (avec antigel).

IV.2.4.1 Effet de la concentration des NTC

Comme nous avons montré expérimentalement dans le chapitre III, la conductivité thermique des nanofluides augmente avec la concentration des NTC. Cette augmentation peut engendrer une amélioration des performances thermiques. Les résultats des figures IV.16 (a)-(d) confirment ce constat quel que soit le nanofluide utilisé.



(a)



(b)

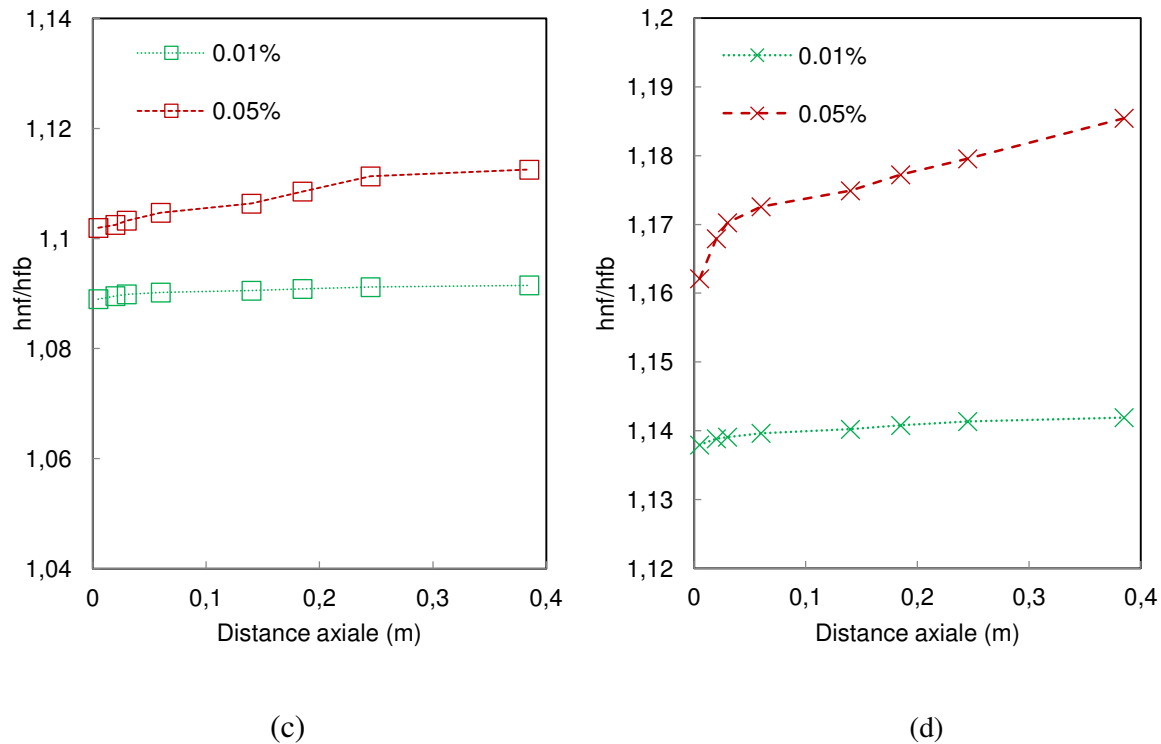


Fig.IV. 16 Evolution du coefficient d'échange relatif local en fonction de la distance axiale à $Re=950$ (a) N2 ; (b) N3 ; (c) N4 ; (d) N6

Comme nous l'avons déjà évoqué précédemment, nous avons choisi de caractériser le comportement thermique seulement pour deux concentrations massiques 0.01 et 0.05%. Ce choix, d'un point de vue pratique, relève les problèmes de pertes de charge liés à la présence des NTC qui peuvent compenser les gains thermiques. Nous avons montré également qu'à ces deux concentrations massiques, la viscosité dynamique des nanofluides est très proche de celle du fluide de base et qu'il est plus avantageux de travailler à faibles concentrations des NTC. Ces choix rejoignent ceux de Kumaresen et al. [KUM/2012] qui ont présenté une étude expérimentale des propriétés thermiques d'un nanofluide composé de MWCNT dispersés dans un mélange de l'eau et de l'éthylène glycol (70/30) et stabilisé par le surfactant SDBS dans un échangeur de chaleur tubulaire pour une gamme de concentration volumique en MWCNT comprise entre 0.15 et 0.45%. D'après leurs résultats, le coefficient d'échange convectif croît considérablement avec la fraction volumique des MWCNT. Il atteint son maximum qui est de l'ordre de 160% à la fraction volumique 0.45%. Cependant, compte tenu des pertes de charge dues à la présence des nanoparticules, Kumaresen et al. [KUM/2012] ont montré qu'il est plus avantageux de travailler à la plus faible fraction volumique 0.15% où les gains thermiques ne sont pas totalement compensés par les pertes de charge.

Pour résumer, les résultats et les explications de cette section concernant les fractions massiques étudiées indiquent que l'ajout d'une très faible quantité des NTC peut engendrer une amélioration considérable des performances thermique sans avoir des conséquences significatives sur les pertes de charge par rapport aux fluides de base.

Le tableau IV.7 récapitule les résultats de l'amélioration du coefficient d'échange convectif local des nanofluides étudiés en fonction de la fraction massique des NTC. Il est notable que cette amélioration est toujours plus élevée à la fraction massique 0.05%. Prenons l'exemple du nanofluide N6, l'augmentation du coefficient d'échange convectif du nanofluide par rapport à celui du fluide de base varie entre 13.8 et 14% à la fraction massique 0.01%, tandis qu'à la fraction massique 0.05%, cette augmentation varie entre 16 et 18.5%.

Tableau IV. 7 Amélioration du coefficient d'échange en fonction de la fraction massique des NTC

Amélioration du coefficient d'échange convectif (%)				
Fraction massique (%)	N2	N3	N4	N6
0.01	10.5-11.5%	11-12%	8.9-9.2%	13.8-14%
0.05	11.5-12.8%	12-13.85%	10.2-11.2%	16-18.5%

Les résultats du tableau IV.7 montrent qu'à la même concentration massique, les gains thermiques varient d'un nanofluide à un autre. Ceci peut être dû aux autres effets liés à la composition du nanofluide.

IV.2.4.2 Effet du rapport d'aspect

Les résultats expérimentaux des mesures de la conductivité thermique des nanofluides N3 et N4 présentés dans le chapitre III ont montré que la conductivité thermique du nanofluide N3 est meilleure par rapport à celle du nanofluide N4. La conductivité thermique augmente avec le rapport d'aspect des NTC. On constate d'après les figures IV.17 (a) et (b) que les valeurs expérimentales du coefficient d'échange convectif local suivent les mêmes tendances vis-à-vis de l'effet du rapport d'aspect. En effet, l'amélioration du coefficient d'échange convectif apportée par l'utilisation du nanofluide N3 est meilleure par rapport à celle du nanofluide N4. On note d'après le tableau IV.7 que le gain thermique maximal observé pour le nanofluide N3 est de l'ordre de 12% à la fraction massique 0.01% et de l'ordre de 13.85% à la fraction massique 0.05%. Tandis que pour le nanofluide N4, le gain thermique maximal est seulement de l'ordre de 9% à la fraction massique 0.01% et de l'ordre de 11.2% à la fraction massique 0.05%.

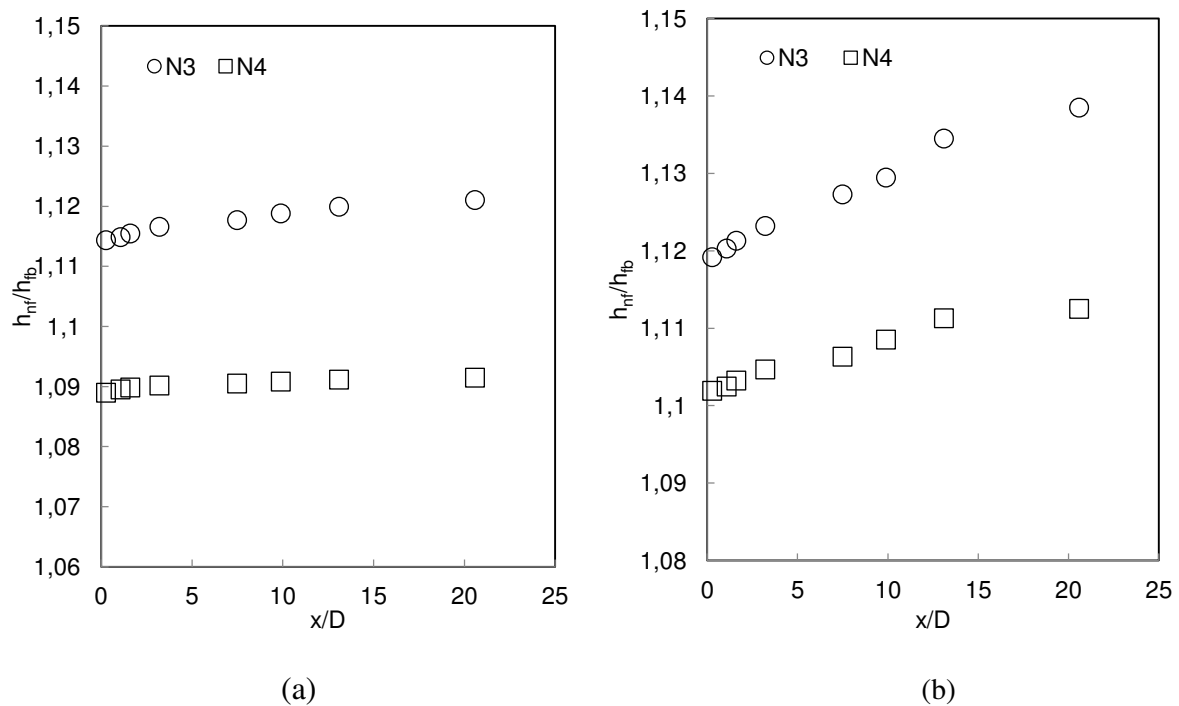


Fig.IV. 17 Evolution du coefficient d'échange relatif local en fonction de la distance axiale à $Re=950$ pour les nanofluides N3 et N4 (a) 0.01% ; (b) 0.05%

Enfin, l'augmentation des performances thermiques des nanofluides en fonction du rapport d'aspect peut être expliquée par le fait que quand le rapport d'aspect des NTC augmente (NTC plus long ou plus étroit), cela permet de consolider au mieux les liaisons entre les NTC qui se comportent comme des ponts thermiques ce qui se traduit par la suite à une propagation de la chaleur plus efficace comme on le montre sur le schéma de la figure IV.18

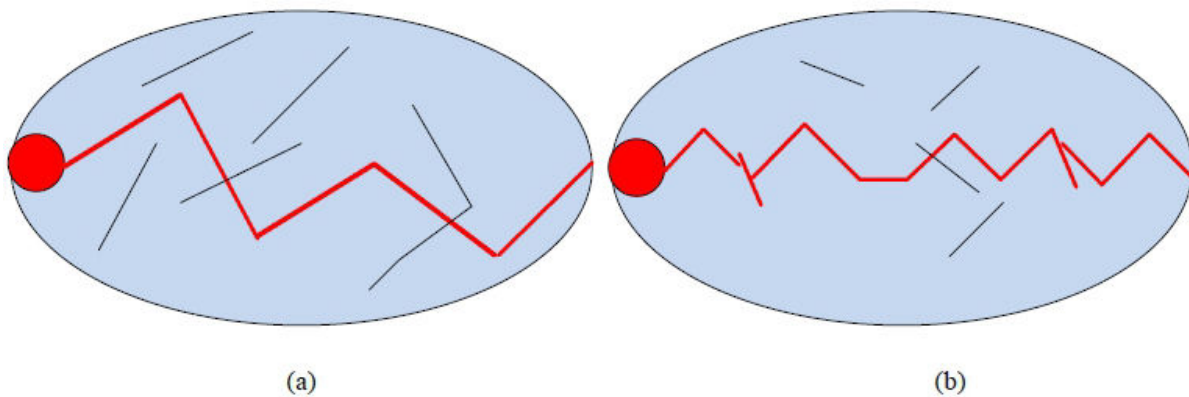


Fig.IV. 18 Schéma d'un réseau de ponts thermiques (trait rouge) créé par une dispersion de NTC ; (a) NTC avec rapport d'aspect élevé ; (b) NTC avec rapport d'aspect faible

IV.2.4.3 Effet du type de surfactant

Les résultats de la caractérisation des propriétés thermo-physiques des nanofluides nous ont montré qu'à faibles concentrations massiques (inférieures à 0.1%), l'effet du type de surfactant sur la conductivité thermique et sur la viscosité dynamique n'est pas significatif. La figure IV.19 propose l'évolution du coefficient d'échange relatif des nanofluides N2 et N3 en fonction de la distance axiale respectivement à 0.01 et à 0.05%.

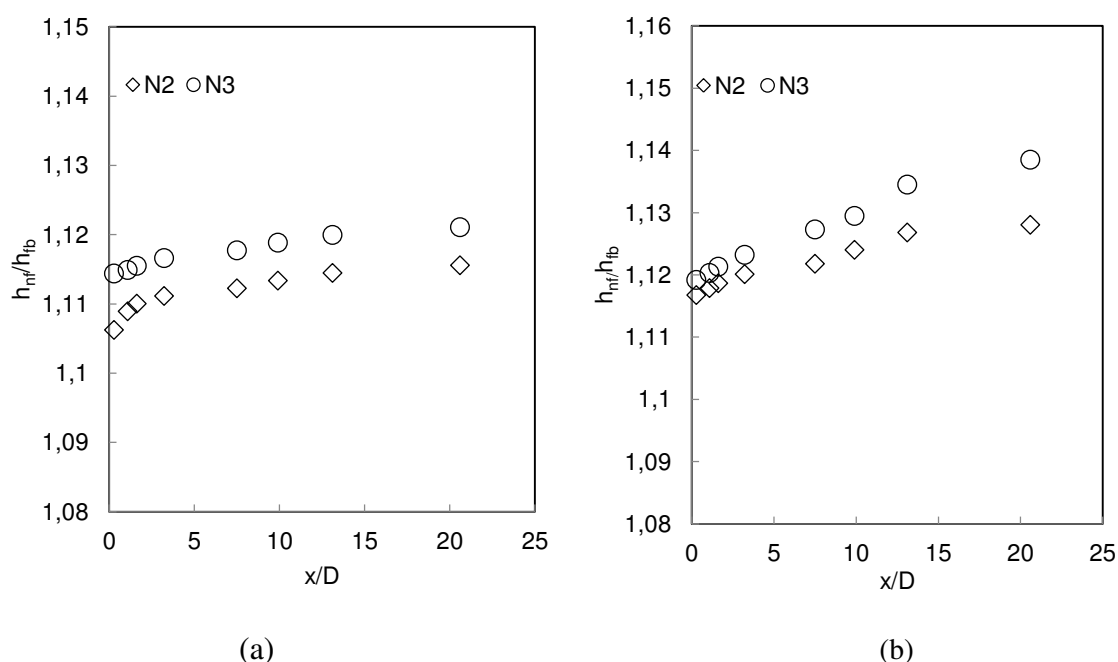


Fig.IV. 19 Evolution du coefficient d'échange relatif local en fonction de la distance axiale à $Re=950$ pour les nanofluides N2 et N3 (a) 0.01% ; (b) 0.05%

On note un écart très réduit entre les courbes représentatives des nanofluides N2 et N3. Cet écart n'est pas aussi marqué que pour la figure IV.18 (entre les nanofluides N3 et N4). Les valeurs du gain thermique apporté par le nanofluide N3 sont très légèrement supérieures à celles du nanofluide N2. On observe par exemple à la fraction massique 0.01%, un gain maximal de l'ordre de 12% pour le nanofluide N3 et de l'ordre de 11.5% pour le nanofluide N2. Ce qui semble indiquer que le type de surfactant n'a pas un effet très significatif sur les performances thermiques des nanofluides comparé à l'effet du rapport d'aspect ou encore celui de la concentration des NTC.

IV.2.4.4 Effet de l'ajout de l'antigel

Pour évaluer les performances thermiques des nanofluides formulés pour un fonctionnement en conditions réelles (avec antigel), on se propose dans cette dernière partie de présenter les résultats des gains thermiques apportés par l'ajout des NTC dans un fluide de base composé d'un mélange d'eau déminéralisée et d'éthylène glycol (50/50) (nanofluide N6). Les résultats ont été comparés avec ceux du nanofluide N2 de la même composition et auquel on n'a pas ajouté d'antigel.

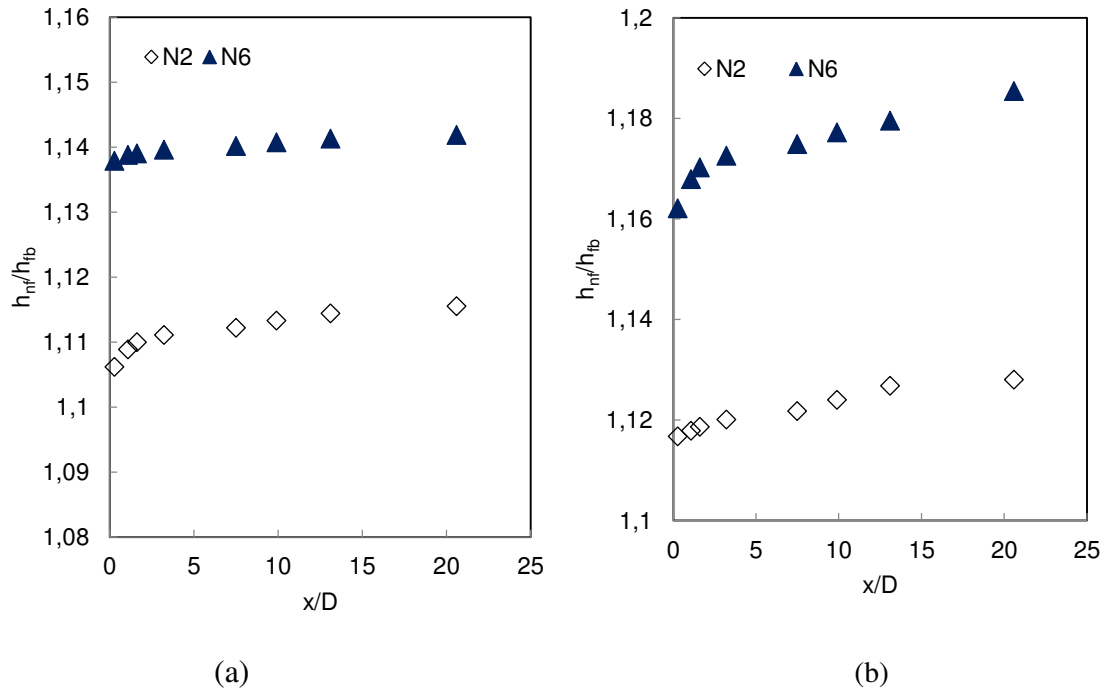


Fig.IV. 20 Evolution du coefficient d'échange relatif local en fonction de la distance axiale à $Re=950$ pour les nanofluides N2 et N6 (a) 0.01% ; (b) 0.05%

Le graphique de la figure IV.20 retrace les évolutions du coefficient d'échange relatif en fonction de la distance axiale pour les nanofluides N2 et N6 aux fractions massiques 0.01 et 0.05%.

On remarque, pour les deux fractions massiques étudiées, que l'amélioration du coefficient d'échange convectif local pour le nanofluide N6 est nettement supérieure à celle du nanofluide N2. On note un gain maximal de l'ordre de 18.5% pour le nanofluide N6 à la fraction massique 0.05%. Ce gain thermique est seulement de l'ordre de 11.8% pour le nanofluide N2 à la même concentration.

Ces résultats nous montrent que l'ajout de la même quantité des NTC dans un fluide de base composé d'un mélange d'eau et d'éthylène glycol (conductivité thermique réduite), permet d'intensifier d'avantage les échanges thermiques comparées à un fluide de base composé seulement d'eau déminéralisée (sans ajout d'antigel). Ces résultats confirment les observations de Chen et al. [CHE/2008] et celles de John et Shima [JOH/2012] qui ont trouvé que l'augmentation des performances thermiques est plus prononcée pour des nanofluides à base de NTC dispersées dans l'éthylène glycol comparée à celle des nanofluides à base de NTC dispersés dans l'eau déminéralisée. L'amélioration du transfert thermique par convection est réduite par une augmentation de la conductivité thermique du fluide de base.

CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons présenté d'abord une étude préliminaire sur les échanges thermiques dans un échangeur de chaleur à tube concentrique (en U) utilisant des nanofluides à base de NTC comme agents thermiques. Les premiers résultats obtenus ont été très encourageants montrant que l'ajout d'une très faible quantité des NTC (0.01% en masse) permet d'intensifier d'une manière significative les échanges thermiques.

Ensuite, nous avons mené une étude expérimentale pour caractériser plus finement les performances thermiques de quatre types de nanofluides dans un échangeur à tubes coaxiaux que nous avons conçu et instrumenté. Dans le but de compléter l'étude sur la caractérisation des propriétés thermo-physiques des nanofluides présentée dans le chapitre III, nous avons étudié l'influence de la composition des nanofluides (rapport d'aspect, type de surfactant et ajout d'antigel) sur les gains thermiques apportés par l'utilisation des nanofluides. Les évolutions de la température axiale au niveau de la surface d'échange dans la zone d'entrée thermique ont été présentées et analysées en fonction de la distance axiale et en fonction du nombre de Reynolds. L'intensification des échanges thermiques en fonction du rapport d'aspect, du type de surfactant et du fluide de base a été étudiée pour deux fractions massiques 0.01 et 0.05% par rapport à la distance axiale et le régime d'écoulement.

Conclusion générale et perspectives

Les travaux et les actions menés au cours de cette étude ont permis d'étudier en détail les comportements thermiques et rhéologiques des nanofluides à base de NTC afin de comprendre et d'analyser les différents mécanismes qui semblent conditionner leurs propriétés thermo-physiques ainsi que leurs performances thermiques au sein d'un échangeur de chaleur.

Cette étude a été décomposée en quatre grands chapitres, dont les principales conclusions sont reprises ci-dessous :

La première partie a présenté le contexte des nanofluides et a donné un aperçu bibliographique de l'ensemble des thématiques et les travaux en voie de développement concernant la caractérisation des propriétés thermo-physiques des nanofluides à base de NTC et de leur utilisation comme fluide caloporteur dans les systèmes thermiques. Cette analyse de la littérature nous a permis de mettre en évidence les principaux problèmes liés aux propriétés des nanofluides à base de NTC. On retient que les résultats de la littérature diffèrent d'une publication à une autre. Plusieurs facteurs peuvent être à l'origine ces différences constatées. Un meilleur contrôle des propriétés thermo physiques est nécessaire afin d'étudier d'une façon rigoureuse les nanofluides en vue de la détermination de leurs performances thermiques.

Cette étude nous a permis de quantifier expérimentalement et d'analyser les effets des différents paramètres qui peuvent influencer les propriétés thermo-physiques des nanofluides à base de NTC, à savoir la concentration des NTC, la température, le type de surfactant, le rapport d'aspect et le taux de cisaillement (pour le comportement rhéologique). Nous avons montré que l'ajout des NTC permet d'améliorer considérablement la conductivité thermique, cependant, cela peut aussi contribuer à une augmentation défavorable de la viscosité dynamique et surtout à un comportement rhéologique plus complexe au-delà d'une certaine concentration critique que nous avons déterminé expérimentalement. Pour cette raison, nous nous sommes intéressés, pour l'étude des performances thermiques des nanofluides, aux faibles concentrations (inférieures à cette concentration critique).

Enfin dans la dernière partie, la mise en pratique des nanofluides dans des systèmes thermiques permet de faire apparaître plusieurs critères pour une meilleure intensification de leurs performances thermiques. Deux études ont été proposées, la première sur un échangeur de chaleur à tubes concentrique en U, nous a permis, en s'appuyant sur les tendances observées, de mettre en évidence le potentiel thermique des nanofluides étudiés par rapport aux fluides de base associés. Ensuite, et dans le but de raffiner et consolider les résultats obtenus, la seconde étude a été menée sur un échangeur thermique coaxial finement instrumenté donnant lieu à des nouvelles interprétations reposant sur les effets des différents paramètres qui peuvent influencer le comportement thermique des nanofluides dans un échangeur de chaleur.

Pour la suite de ce travail, il serait aussi pertinent de confronter par des essais complémentaires sur d'autres sections d'essais avec d'autres matériaux (cuivre, rylsan...), voire même la possibilité de travailler sur des sections d'essai transparentes ou démontables pour visualiser les éventuels dépôts des NTC qui conduisent à la modification de la surface d'échange.

Cette étude peut être complétée aussi par une simulation numérique des échanges thermiques et des écoulements afin de pouvoir modéliser localement les profils de vitesse, pression et température des nanofluides.

Références Bibliographiques

- [AJA/1997] **Ajayan P. M., Ebbesen T. W.**, Nanometer-size tubes of carbon, Rep. Prog. Phys, 60(1997), 1025–1062.
- [ALA/2012] **Aladag B., Halelfadl S., Doner N., Maré T., Duret S., Estellé P.**, Experimental investigations of the viscosity of nanofluids at low temperatures, App. Energy, 97 (2012) 876-880.
- [AMR/2008] **Amrollahi A., Hamidi A. A., Rashidi A. M.**, the effect of temperature, volume fraction and vibration time on the thermo-physical properties of carbon nanotubes suspensions (carbon nanofluid), Nanotechnology 19 (2008), 315701.
- [AMR/2010] **Amrollahi A., Hamidi A. A., Rashidi A. M., Meibodi M. E., Kashefi K.**, Convection heat transfer of functionalized MWNT in aqueous fluids in laminar and turbulent flow at the entrance region, International Communications in Heat and Mass Transfer 37 (2010) 717–723.
- [ANO/2009] **Anoop K.B., Kabelac S., Sundararajan T., Das S.K.**, Rheological and flow characteristics of nanofluids: influence of electroviscous effects and particle agglomeration, J. Appl. Phys. 106/3 (2009), 034909.
- [ASH/2012] **Ashtiani D., Akhavan-Behabadi M. A., Pakdaman M. F.**, An experimental investigation on heat transfer characteristics of multi-walled CNT-heat transfer oil nanofluid flow inside flattened tubes under uniform wall temperature condition, International Communications in Heat and Mass Transfer, 39 (2012), 1404–1409.
- [ASS/2005] **Assael M.J., Metaxa I., Arvanitidis J., Christofilos D., Liouostas C.**, Thermal conductivity enhancement in aqueous suspensions of carbon multi-walled and double-walled nanotubes in the presence of two different dispersants, Int. J. Thermophys. 26/3 (2005) 647–664.
- [ASS/2006] **Assael M.J., Metaxa I.N., Kakosimos K., Constantinou D.**, Thermal Conductivity of Nanofluids – Experimental and Theoretical. Int J Thermophys, 27 (2006), 999–1017.
- [BAK/1997] **Baklouti Malika**, Thèse, Détermination de la conductivité thermique effective de milieux poreux granulaires par la méthode du fil chaud transitoire: modélisation et expériences, Institut national polytechnique de Lorraine, 1997.
- [BAN/2005] **Bang I. C., Chang S. H.**, boiling heat transfer performance and phenomena of Al₂O₃-Water nanofluids from a plan surface in a pool, International Journal of heat and Mass Transfer, 48 (2005), 2407-2419.
- [BAT/1977] **Batchelor G.**, The effect of Brownian motion on the bulk stress in a suspension of spherical particles., J. of Fluid Mech., 83 (1977), 97-117.
- [BEJ/2003] **Bejan A., Kraus, A.D.**, 2003, Heat Transfer Handbook. J. Wiley.

-
- [BER/1990] **Bergles A.E., Bar-Cohen A.**, Direct Liquid Cooling of Microelectronic Components, Advances in Thermal Modeling of Electronic Components and Systems, 2 (1990), eds., ASME Press, New York, NY.
- [BER/2000] **Berber S., Kwon Y. K., Tomanek D.**, Unusually high thermal conductivity of carbon nanotubes, Phys. Rev. Lett., 84 (2000), 4613–4616.
- [BER/2003] **Bergles A. E.**, Evolution of Cooling Technology for Electrical, Electronic, and Microelectronic Equipment, IEEE Transactions on Components and Packaging Technologies, 26/1 (2003), 6-15.
- [BON/1994] **Bontemps A., Garrigue, Goubier, Huetz, Marvillet, Mercier, Vidil**, Echangeur de chaleur définition et architecture générale, Technique de l'ingénieur (1994), B 2340.
- [BOZ/2009] **Bozlar B.**, Modification de surface des nanotubes de carbone par un polymère conducteur électrogénéré pour la réalisation de nanocomposites multifonctionnels, thèse doctorat, Ecole Normale Supérieure de Cachan (2009).
- [BOY/2011] **Boyer F.**, Suspensions concentrées : Expériences originales de rhéologie, thèse de doctorat, Université d'Aix-Marseille (2011).
- [BRI/1952] **Brinkman H. C.**, The viscosity of concentrated suspensions and solutions. J Chem. Phys., 20 (1952), 571–581.
- [BRU/1935] **Bruggeman G.**, Calculation of Various Physics Constants in Heterogeneous Substances I Dielectricity Constants and Conductivity of Mixed Bodies from Isotropic Substances, *Annalen der Physik*, Vol. 416, No. 7, 1935, pp.636-664. doi:10.1002/andp.19354160705
- [CHE/2007] **Chen H., Yang W., He Y., Ding Y., Zhang L., Tan C., Lapkin A. A., Bavykin D. V.**, Heat transfer and flow behaviour of aqueous suspensions of titanate nanotubes (nanofluids), Powder Technology, 183 (2008), 63-72.
- [CHE/2008] **Chen L, Xie H, Li Y, Yu W.**, Nanofluids containing carbon nanotubes treated by mechanochemical reaction, Thermochim Acta, 477(2008), 4-21.
- [CHE1/2009] **Chen H., Witharana S., Jin Y., Kim C., Ding Y.**, Predicting thermal conductivity of liquids suspensions of nanoparticles (nanofluids) based on rheology, Particuology, 7 (2009), 151-157, 2009.
- [CHE2/2009] **Chen L, Xie H**, Silicon oil based multiwalled carbon nanotubes nanofluid with optimized thermal conductivity enhancement, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 352 (2009), 136-140.
- [CHE3/2009] **Chen H., Ding Y., Lapkin A. A., Fan X.**, Rheological behavior of ethylene glycol-titanate nanotube nanofluid, Journal Nanopart, Res. 11 (2009), 1513-1520

-
- [CHE1/2010] **Chen L., Xie H.**, Surfactant-free nanofluids containing double- and single-walled carbon nanotubes functionalized by a wet-mechanochemical reaction, *Thermochim. Acta*, 497 (2010) 67-71.
- [CHE2/2010] **Chen L., Xie H.**, Properties of carbon nanotube nanofluids stabilized by cationic gemini surfactant, 506 (2010) 62–66.
- [CHE/2013] **Chen F. L., Yang J. C., Zhou W., He Y., Huang Y., Jiang B.**, Experimental study on the characteristics of thermal conductivity and shear viscosity of viscoelastic-fluid-based nanofluids containing multiwalled carbon nanotubes, *Thermochimica Acta*, 556 (2013), 47-53.
- [CHO/1995] **Choi S.U.S., Eastman J. H.**, Enhancing thermal conductivity of fluids with nanoparticles, *Developments Applications of Non -Newtonians Flows*, American society of Mechanical Engineers, 66 (1995), 99-105.
- [CHV/2008] **Chevalier, J.**, Etude de la Rhéologie de Nanofluides soumis à de très forts Taux de Cisaillement à l'aide de Microsystèmes Fluidiques, Thèse de Doctorat, Université Grenoble I-Joseph Fourier (2008).
- [CHV/2009] **Chevalier J., Tillement O., F. Ayela**^{1,3}, Structure and rheology of SiO₂ nanoparticle suspensions under very high shear rates, *PHYSICAL REVIEW E* 80, 051403 2009
- [CRO/1975] **Cross M. M.**, Viscosity-concentration-shear rate relations for suspensions, *Rheological Acta*, 14(1975), 402-403.
- [DAS/2008] **Das S., Choi S., Yu W., Pradeep T.**, *Nanofluids: Science and Technology*, Wiley, 2008.
- [WIN/2004] **Wen D., Ding Y.**, Experimental investigation into convective heat transfer of nanofluids at the entrance region under laminar flow conditions, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 47 (2004), 5181-5188.
- [DIN/2006] **Ding Y., Alias H., Wen D., Williams R.A.**, Heat transfer of aqueous suspensions of carbon nanotubes (CNT nanofluids), *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 49/1-2 (2006), 240-250.
- [EBB/1993] **Ebbesen, Hiura H., Fujita J., Ochiai Y., Matsui S., Tanigaki K.**, Patterns in the bulk growth of carbon nanotubes, *Chem. Phys. Lett.*, 209 (1993), 83–90.
- [EIN/1906] **Einstein A.**, Eine neue Bestimmung der Moleküldimensionen, *Annalender Physik* 19 (1906) 289–306.
- [END/1995] **Endo M., Takeuchi K., Kobort K., Takahashi K.**, Pyrolytic carbon nanotubes from vapor grown carbon fibers, *Carbon* 33 (1995), 873-881.

-
- [EST/2013] **Estellé P., Halelfadl S., Doner N., Maré T.**, Shear history effect on the viscosity of carbon nanotubes water based nanofluid, accepted for publication in Current Nanoscience.
- [ETA/2009] **Etarajan E., Sathish R.**, Role of nanofluids in solar water heater international journal of advanced manufacturing technology, 2009.
- [FAU/2004] **Faulkner D., Rector D. R., Davison J. J., Shekarriz R.**, Enhanced heat transfer through the use of nanofluids in forced convection, Proceeding of the ASME international Mechanical Engineering California (2004), 219-224
- [FER/2011] **Ferrouillat S., Bontemps A., Ribeiro J. P., Gruss J. A., Soriano O.**, Hydraulic and heat transfer study of SiO₂/Water nanofluids in horizontal tubes with imposed wall temperature boundary conditions, Int. Journal of Heat and Fluid Flow, 32 (2011), 424-439.
- [GAO/2007] **Gao L., Zhou X., Ding Y.**, Effective thermal and electrical conductivity of carbon nanotube composites, Chem. Phys. Lett. 434 (4–6) (2007) 297–300.
- [GAR/2009] **Garg P., Alvarado J. L., Marsh C., Carlson T. A., Kessler D. A., Annamali K.**, An experimental study on the effect of ultrasonification on viscosity and heat transfer performance of multi-wall carbon nanotube-based aqueous nanofluids, Int J Heat Mass Transfer, 52(2009), 5090-5101.
- [GED/2005] **Gedeon E. N.**, Etude des phénomènes d'agréation moléculaires dans les bruts pétroliers, Thèse de doctorat, Université de Metz, 2005.
- [GHO/2012] **Gholamnez V. N., Dorany A.**, Effect of single walled Carbon nanotubes on the viscosity of lubrifiants, ICAEE, Energy Procedia, 14 (2012), 512-517.
- [GLA/2010] **Gladès B.**, Contribution à l'étude de la convection naturelle dans les nanofluides en configuration de Rayleigh-Bénard, Thèse Doctorat, Université de Toulouse, 2010.
- [HAL/2013] **Halelfadl S., Estellé P., Aladag B., Doner N., Maré T.**, Viscosity of carbon nanotubes water-based nanofluids: Influence of concentration and temperature, International Journal of Thermal Sciences, 71 (2013), 111-117.
- [HAL1/2014] **Halelfadl S., Adham A. M., Mohd-Ghazali N., Maré T., Estellé P., Robiah A.**, Optimization of thermal performances and pressure drop of rectangular microchannel heat sink using aqueous carbon nanotubes based nanofluid, Applied Thermal Engineering, Under Review, 2013.
- [HAL2/2014] **Halelfadl S., Maré T., Estellé P.**, Efficiency of water-based nanofluids containing CNT with large aspect ratio as coolants, Experimental Thermal and Fluid Science, 53(2014), 104-110.
- [HAL3/2013] **Halelfadl S., Estellé P., Maré T.**, An experimental study of heat transfer characteristics of multi-wall carbon nanotubes suspensions in coaxial heat exchanger, International Conference on Applied Energy, ICAE 2013
-

-
- [HAM/1962] **Hamilton R. L., Crosser O.K.**, Thermal conductivity of heterogeneous two-component systems, *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, 1/3 (1962), 187-191.
- [HER/2013] **Heris S. Z., Nassan T. H., Noie S.H., Sardarabadi H., Sardarabadi M.**, Laminar convective heat transfer of Al_2O_3 water nanofluid through square cross-sectional duct
- [IJJ/1993] **Iijima S., Ichihashi T.**, Single-shell carbon nanotubes of 1-nm diameter, *Nature*, 363/6430 (1993), 603–605
- [INC/1996] **Incorpera F. P., Dewitt D. P.**, *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*, 4th edition, John Wiley and Sons (1996).
- [INC/2011] **Incorpera F. P., Bergman T.L., Lavine A.S., DeWitt D.P.**, *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*, 7th edition, John Wiley and Sons (2011)
- [IND/2013] **Indhuja A., Suganthi K. S., Manikandan S., Rajan K. S.**, Viscosity and thermal conductivity of dispersions of gum arabic capped MWCNT in water: Influence of MWCNT concentration and temperature, article in press, 2013
- [INT1] <http://www.cooling-masters.com/articles-46-1.html>
- [INT2] http://fr.wikipedia.org/wiki/Capacit%C3%A9_thermique_massique
- [INT3] http://fr.wikipedia.org/wiki/Potentiel_z%C3%AAta
- [JAN/2004] **Jang S. P., Choi S. U. S.**, Role of Brownian motion in the enhanced thermal conductivity of nanofluids, *Applied Physics Letters*, 84 (2004), 4316-4318
- [JAN/2007] **Jana S., Khojin A.S., Zhong W.H.**, Enhancement of fluid thermal conductivity by the addition of single and hybrid nano-additives. *Thermochim Acta*, 2007;462:45
- [JIA/2009] **Jiang W., Ding G., Peng H.**, Measurement and model on thermal conductivities of carbon nanotube nanorefrigerant, *Int. J. thermal Science* 48 (2009), 1108-1115.
- [JOH/2012] **John P., Shima P. D.**, Thermal properties of nanofluids, *advances colloid and Interface science*, 183-184 (2012), 30-45
- [KAM/2010] **Kamali R., Binesh A. R.**, Numerical investigation of heat transfer enhancement using carbon nanotube-based non-Newtonian nanofluids, *International Communications in Heat and Mass Transfer* 37 (2010) 1153–1157.
- [KHO/2008] **Khodja M.**, *Les fluides de forage: Etude des performances et considérations environnementales*, thèse de doctorat en Génie des procédés et de l'environnement, INSA Toulouse (2008).
- [KIM/2010] **Kim Y.J., Ma H., Yu Q.**, Plasma nanocoated carbon nanotubes for heat transfer nanofluids. *Nanotechnology* 2010; 21:295703.
- [KIN/2002] **Kinloch I. A., Roberts S. A., Windle A. H.**, A rheological study of concentrated aqueous nanotube dispersions, *Polymer* 43 (2002), 7483-7491.
-

-
- [KOG/2007] **Ko G. H., Heo K., Lee K., Kim D. S., Kim C., Sohn Y., Choi M.**, An experimental study on the pressure drop of nanofluids containing carbon nanotubes in a horizontal tube, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 50 (2007), 4749-4753.
- [KOL/2011] **Kole M., Dey T.K.**, Effect of aggregation on the viscosity of copper oxide-gear oil nanofluids, *International Journal of Thermal Science*, 50 (2011), 1741-1747.
- [KOO/2004] **Koo J., Kleinstreuer C.**, A New Thermal Conductivity Model for Nanofluids, *Journal of Nanoparticle Research*, 6/ (2004), 577-588.
- [KUM/2004] **Kumar D.H., Patel H.E., Rajeev Kumar V.R., Sundararajan T., Pradeep T., Das S.K.**, model for heat conduction in nanofluids, *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004) 144301-144304.
- [KUM/2012] **Kumaresan V., Velraj R., Das S. K.**, Convective heat transfer characteristics of secondary refrigerant based CNT nanofluids in a tubular heat exchanger, *International Journal of Refrigeration*, 35 (2012), 2287-2296.
- [KRI/1956] **Krieger I. M., Dougherty T.J.**, A mechanism for non-Newtonian flow in suspension of rigid spheres, *J. Trans. Soc. Rheol.* 3 (1959) 137e152
- [LAN/2008] **Landois P.**, synthèse, fonctionnalisation et impact sur l'environnement de nanotubes de carbone, thèse de doctorat, université de Toulouse, 2008.
- [LEE/1996] **Lee Y. H., Kim S. G., Rinzler A. G., Colbert D. T., Scuseria G. E., Tomanek D., Fischer J. E., Smalley R. E.**, Crystalline ropes of metallic carbon nanotubes, *Science* 1996.
- [LEG/2012] **Legay M.**, Intensification des processus de transfert de chaleur par ultrasons, vers un nouveau type d'échangeur de chaleur : l'échangeur vibrant, thèse de doctorat, université de Grenoble, 2012.
- [LEN/2009] **Le Neindre B.**, Mesure de la conductivité thermique des liquides et des gaz, R 2920, *Technique de l'Ingénieur*, 2009.
- [LID/2003] **Lide D. R.**, *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 85th Edition (2003).
- [LIU/2005] **Liu M. S., Lin M. C. C., Huang I. T., Wang C. C.**, Enhancement of thermal conductivity with carbon nanotube for nanofluids. *International Communication of Heat Mass Transfer*, 32 (2005), 1202-1210.
- [LIU/2010] **Liu Z. H., Liao L.**, Forced convective flow and heat transfer characteristics of aqueous drag-reducing fluid with carbon nanotubes added, *International Journal of Thermal Sciences*, 49 (2010), 2331-2339.
- [LIX/2007] **Li X., Zhu D., Wang X.**, Evaluation on dispersion behavior of the aqueous copper nano-suspensions, *Journal of Colloid and Interface Science*, 310/2 (2007), 456-463.
-

-
- [LIY/2009] **Li Y., Zhou J., Tung S., Schneider E., Xi S.**, A review on development of nanofluid preparation and characterization, *Powder Technology*, 196 (2009), 89-101.
- [LOT/2012] **Lotfi R., Rashidi A. M., Amrollahi A.**, Experimental study on the heat transfer enhancement of MWNT-water nanofluid in a shell and tube heat exchanger, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 39 (2012), 108–111.
- [O’HA/2012] **O’Hanley H., Buangiorno J., McKrell T., Hu L. W.**, Measurement and model validation of nanofluid specific heat capacity with Differential Scanning Calorimetry, *Advances in Mechanical Engineering*, ID 181079, 2012
- [OHD/2009] **Oh D.W., Kwon O., Lee J.S., Routbort J.**, Transient thermal conductivity and colloidal stability measurements of nanofluids by using the 3 Omega method, *Journal of Nanoscience and nanotechnology*, 8 (2009), 4923-4929.
- [MAH/2012] **Mahbubul I. M., Amalina M. A.**, Latest developments on the viscosity of nanofluids, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, ((/4 (2012), 874-885.
- [MAR/1956] **Maron, S.H., Pierce, P.E.**, Application of Ree-Eyring generalized flow theory to suspensions of spherical particles. *J. Colloid Sci.*, **1956**, 11, 80-95.
- [MAR/2011] **Maré T., , Halelfadl S., Sow O., Estellé P., Duret S., Bazantay F.**, Comparison of the thermal performances of two nanofluids at low temperature in a plate heat exchanger, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 35/8 (2011), 1535-1543.
- [MAX/1881] **Maxwell J. C**, *A Treatise on Electricity and Magnetism*, Clarendon Press, Oxford, UK, second edition (1881).
- [MEN/2012] **Meng Z., Wu D., Wang L., Zhu H., Li Q.**, Carbon nanotube glycol nanofluid: Photo-thermal properties, thermal conductivities and rheological behavior, *Particuology*, 10 (2012), 614-618
- [MIK/2005] **Miko C.**, Synthesis, characterization and macroscopic manipulation of carbon nanotubes, PhD Thesis, EPFL Lausanne, Switzerland (2005).
- [MOH/2004] **Mohraz A., Moler D. B., Ziff R. M., Solomon M. J.**, Effect of monomer geometry on the fractal structure of colloidal rod aggregates, *Phys Rev Lett* 92 (2004), 155503.
- [MOF/1988] **Moffat R. J.**, Describing the uncertainties in experimental results, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 1(1988), 3-17.
- [MUE/2010] **Mueller S., Llewellyn E. W., Mader H. M.**, The rheology of solid particles, *Proceedings of the Royal Society A*, 466 (2010), 1201-1228.
- [MUR/2008] **Murshed S., Leong K., Yang C.**, Investigations of thermal conductivity and viscosity of nanofluids, *Int. J. Therm. Sci.*, 47/5 (2008), 560–568.
- [NAM/2007] **Namburu P.K., Kulkarni D.P., Dandekar A., Das D.K.**, Experimental investigation of viscosity and specific heat of silicon dioxide nanofluids, *Micro Nano Lett.* 2 (3) (2007) 67–71.
-

-
- [NAS/2011] **Nasiri A., Niasar M.S., Rashidi A., Amrollahi A., Khodafarin R.**, Effect of dispersion method on thermal conductivity and stability of nanofluid, *Exp Therm Fluid Sci.*, 2011;35:717-23.
- [NAS/2012] **Nassiri A., Shariati-Niasar M., Rashidi A. M., Khodafari R.**, Effect of CNT structures on thermal conductivity and stability of nanofluid, *International Journal of heat and Mass transfer*, 55(2012), 1529-1535.
- [NGY/2007] **Nguyen C.T., Desgranges F., Roy G., Galanis N., Maré T., Boutcher S. , Angue Mintsa H.**, Temperature and particle-size depends viscosity dated heart water-based nanofluids - Hysteresis phenomenon, *International Journal of Heat of and Fluid Flow*, 28/6 2007), 1492-1506.
- [NGY/2008] **Nguyen C.T., Desgranges F., Roy G., Galanis N., Maré T., Boutcher S., Angue Mintsa H.**, Viscosity data for Al_2O_3 water nanofluid hysteresis: is heat transfer enhancement using nanofluids reliable?, *International Journal of Thermal Sciences*, 47 (2008), 103-111.
- [PAD/1993] **Padet J.**, *Echangeurs thermiques*, Masson, 1993.
- [PAK/1998] **Pak B., Cho Y.I.**, Hydrodynamic and heat transfer study of dispersed fluids with submicron metallic oxide particule, *Exp. Heat Transfer*, 11 (1998), 151-170.
- [PAK/2012] **Pakdamana M. F., Akhavan-Behabadi M. A., Razi P.**, An experimental investigation on thermo-physical properties and overall performance of MWCNT/heat transfer oil nanofluid flow inside vertical helically coiled tubes, *Experimental Thermal and Fluid Science* 40 (2012), 103-111.
- [PAR/2002] **Park C., Ounaies A., Watson Z. K., Crooks R. E., Smith J. J., Lowther S. E.**, Dispersion of single wall carbon nanotubes by in situ polymerization under sonication, *Chemical Physics Letters*, 364 (2002), 303-308
- [PAR/2009] **Paritosh G., Jorge L. A., Marsh C., Carlson T.A., Kessler D.A.**, An experimental study on the effect of ultrasonication on viscosity and heat transfer performance of multi-wall carbon nanotube-based aqueous nanofluids, *Int Journal of Heat and Mass Transfer*, 52 (2009), 5090-5101
- [PAU/2010] **Paul G., Chopkar M., Manna I., Das P.K.**, Technique for measuring the thermal conductivity of nanofluids: review, *Renewable and sustainable energy review*, 14 (2010), 1913-1924.
- [PHU/2011] **Phuoc T. X., Massoudi M., Chen R. H.**, Viscosity and thermal conductivity of nanofluids containing carbon nanotubes stabilized by chitosan, *Int J. Thermal Sci.*, 50 (2011), 12-18.
- [PRA/2006] **Prasher R., Song D., Wang J., Phelan P.**, Measurements of nanofluid viscosity and its implications for thermal applications, *App. Phys. Letters* 89 (2006) 133108.
-

-
- [RUA/2012] **Ruan B., Jacobi A. M.**, heat transfer characteristics of Multi-walled carbon nanotubes suspensions (MWCNT nanofluids) in intertube falling film flow, *International Journal of Heat and mass transfer*, 55 (2012), 3186-3195.
- [TAL/2011] **Talaei Z., Mahjoub A. R., Rashidi A. M., Amrollahi A., Meibodi M. E.**, The effect of functionalized group concentration on the stability and thermal conductivity of carbon nanotube fluid as heat transfer media, *Int. Commun. Heat Mass*, 38 (2011), 513–517.
- [TAY/1995] **Taylor R.**, The Chemistry of fullerenes, *Advanced Series of Fullerenes*, 4(1995),
- [TEI/2009] **Teissier A.**, Synthèse de matériaux à base de pentoxyde de niobium et de nanotubes de carbone pour la limitation optique dans l'infrarouge, Thèse Doctorat, Université de Strasbourg (2009).
- [TIM/2009] **Timofeeva E.V., Roubort J.L., Singh D.**, Particle shape effect on thermophysical properties of alumina nanofluids, *J Appl. Phys.* 106 (2009) 014304
- [TUC/1981] **Tuckerman D.B., Pease R.F.**, High performance heat sinking for VLSI, *IEEE Electron Devices Lett. EDL-2* (1981) 126–129.
- [TUM/2009] **Tummala N. R., Striolo A.**, SDS Surfactants on Carbon Nanotubes: Aggregate Morphology, *ACS Nano*, 3/3 (2009), 595-602.
- [VAI/2006] **Vaisman, L., Wagner, H.D., Marom, G.** The role of surfactants in dispersion of carbon nanotubes. *Adv. Coll. Int. Sci.*, 2006, 128-130, 37-46.
- [WAL/2012] **Walvekar R., Faris I.A., Khalid M.**, Thermal conductivity of carbon nanotube nanofluid-Experimental and theoretical study, *Heat Transfer-Asian Research* 41(2) (2012) 145-163.
- [WAN/2007] **Wang X.Q., Mujumdar A.S.**, Heat transfer characteristics of nanofluids: a review, *International Journal of Thermal Sciences* 46 (2007) 1-19.
- [WAN/2008] **Wang X. Q., Mujumdar A. S.**, A review on nanofluids – Part II: Experiments and applications, *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 25/4 (2008), 631-648.
- [WAN/2009] **Wang H.**, Dispersing carbon nanotubes using surfactants, *Curr. Opinion Coll. Interface Sci.* 14 (2009) 364-371
- [WAN/2013] **Wang J., Zhu J., Zhang X., Chen Y.**, Heat transfer and pressure drop of nanofluids containing carbon nanotubes in laminar flows, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 44 (2013), 716-721.
- [WEI/2010] **Wei X., Wang L.**, Synthesis and thermal conductivity of microfluidic copper nanofluids, *Particuology*, vol. 8, no. 3, pp. 262–271, 2010.
- [WEN/2004] **Wen D. S., Ding Y. L.**, Experimental investigation into convective heat transfer of nanofluids at entrance area under laminar flow region, 47/24 (2004), 5181-5188.
-

-
- [WOL/1996] **Wolthers W., Duits M. H. G., Van Den Ende D., Mellema J.**, Shear history dependence of aggregated colloidal dispersions, *Journal of Rheology*, 40/5 (1996), 799-811.
- [WUD/2009] **Wu D., Zhu H., Wang L., Liua L.**, Critical issues in nanofluids preparation, characterization and thermal conductivity, *Curr. Nanosci.*, 5 (2009) 103–112.
- [WUS/2013] **Wusiman K., Jeong H., Tulugan H., Afrianto K., Chung H.**, Thermal performance of multi-walled carbon nanotubes (MWCNTs) in aqueous suspensions with surfactants SDBS and SDS, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 41 (2013), 28–33.
- [XIE/2003] **Xie H., Lee H., Youn W., Choi M.**, Nanofluids containing multiwalled carbon nanotubes and their enhanced thermal conductivities, *J. Appl. Phys.*, 94 (2003), 4967–4971.
- [XIE2/2009] **Xie H., Chen L.**, Adjustable thermal conductivity in carbon nanotube nanfluid *Physics Letters A*, 373(2009), 1861-1864.
- [XUA/2000] **Xuan Y.M., Roetzel W.**, Conceptions for heat transfer correlation of nanofluids, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 43/19 (2000), 3701–3707.
- [XUA/2003] **Xuan Y. M., Li Q.**, Investigation on convective heat transfer and flow features of nanofluids, *ASME, J. Heat transfer* 125 (2003), 151-155.
- [YAN/2006] **Yang, Y., Grulke E. A., Zhang Z. G., Wu G.**, Thermal and rheological properties of carbon nanotube-in-oil dispersions *J. Appl Phys.*, 99(2006), 114307.
- [YUD/2009] **Yu W., France D., Smith D., Singh D., Timofeeva E., Routhbort J.**, Heat transfer to silicon carbide/water nanofluid, *Int. J. Heat Mass Transfer* 52 (2009) 3606–3612.
- [YUW/2003] **Yu W., Choi S. U. S.**, The role of interfacial layers in the enhanced thermal conductivity of nanofluids: a renovated Maxwell model, *J. nanoparticle Res*, 5 (2003), 167-71.
- [ZHO/2006] **Zhou X.F., Gao L.**, Effective thermal conductivity in nanofluids of nonspherical particles with interfacial thermal resistance: differential effective medium theory, *J. Appl. Phys.* 100/2 (2006) 4913–4916.
- [ZHO/2010] **Zhou L. P., Wang B. W., Peng X. F., Du X. Z., Yang Y. P.**, On the specific heat capacity of CuO Nanofluid, *Advances in Mechanical Engineering*, ID 1712085, 2010.
- [ZHU/2003] **Zhu W. Z., Miser D. E., Chan W. G., Hajaligol M. R.**, Characterization of multiwalled carbon nanotubes prepared arc cathod deposit, *Material Chemistry and Physics*, 82/3 (2003), 638-647
-

Annexe A-I : Généralités sur la rhéologie

La rhéologie est la science des déformations et des écoulements de la matière, des contraintes qui' en résultent et des efforts qu'il faut appliquer pour les obtenir. Cette science repose sur les bases de la mécanique des milieux continus pour déterminer localement les contraintes et les déformations au sein de la matière.

Principe de la rhéologie

La viscosité caractérise l'aptitude d'un fluide à s'écouler [EST 2013]. Sa connaissance est fondamentale pour toutes les applications impliquant le transport des fluides.

Un exemple simple considérant le mouvement d'un fluide enfermé entre deux plans parallèles, l'un est au repos et l'autre est animé avec une vitesse V (figure A-1). Le déplacement se communique par frottement tangentiel entre les couches parallèles. On suppose que les couches fluides liées au plan immobile ont une vitesse nulle (hypothèse de non glissement). Deux grandeurs vont permettre de quantifier le cisaillement :

La vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ (exprimée en s^{-1}) qui représente la variation de la vitesse entre les couches limites rapportée à la distance entre ces couches. Cette grandeur est égale au rapport de la vitesse de cisaillement V sur l'épaisseur cisailée.

La contrainte de cisaillement τ (exprimée en Pa) qui définit la force s'exerçant tangentiellement entre les couches fluides.

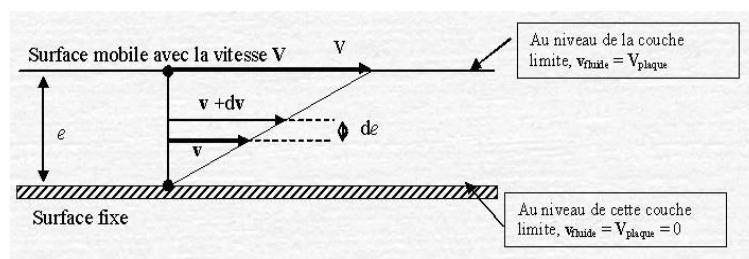


Fig. A- 1. Mouvement de cisaillement entre deux plans parallèles [COU/2001]

La viscosité dynamique μ du fluide est le rapport de la contrainte tangentielle de cisaillement sur la vitesse de cisaillement. Elle s'exprime en général en Pa.s

Fluides newtoniens, fluides complexes

Fluide newtonien

Le fluide newtonien est le modèle le plus simple des fluides. En 1687, Sir Isaac Newton a écrit dans le principia : « *The resistance which arises from the lack of slipperiness of the parts of the liquid, other things being equal, is proportional to the velocity with which the parts of the liquid are separated from one another* », ce qui se traduit dans une formulation moderne par une évolution linéaire de la contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de cisaillement (fig. A-2)

Fluide complexe

De nombreux fluides usuels ne présentent pas une relation linéaire entre vitesse et contrainte de cisaillement, comme le montre la figure A-2. Selon cette évolution, ou celle de la viscosité

dynamique $\mu(\dot{\gamma}) = \frac{\tau}{\dot{\gamma}}$ en fonction de la vitesse de cisaillement, on peut distinguer trois principaux types de comportement rhéologiques (figure A-2).

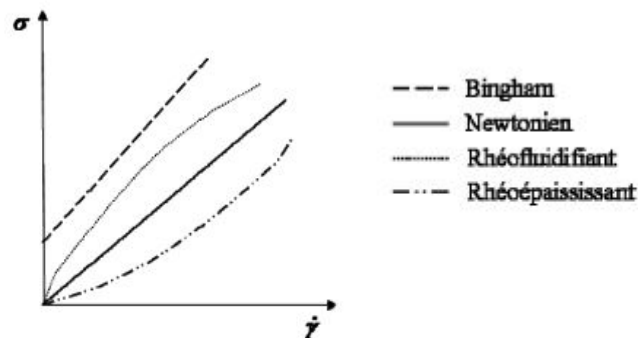


Fig. A- 2 Rhéogrammes caractéristiques des différents comportements rhéologiques[COU/2001]

Comportement rhéofluidifiant : La viscosité dynamique du fluide décroît quand la vitesse de cisaillement augmente. C'est le cas par exemple de la majorité des polymères. Ce comportement peut être décrit par le modèle d'Ostwald de Waele ou loi puissance.

$$\tau = \mu \dot{\gamma}^n \quad \text{où } n < 1$$

Comportement rhéopaisissant : Dans ce cas, le fluide devient plus visqueux quand la vitesse de cisaillement augmente. C'est un comportement peu fréquent.

$$\tau = \mu \dot{\gamma}^n \quad \text{où } n > 1$$

Comportement à seuil de contrainte (ou plastique) : le fluide ne s'écoule qu'au-delà d'une certaine contrainte de seuil τ_0 . C'est le cas par exemple de la pâte à dentifrice et de la peinture à l'huile. Au-delà de cette contrainte, le fluide peut se comporter de façon newtonienne (on définit alors son comportement par une loi de Bingham, $n=1$ dans l'équation suivante) ou de façon non-newtonienne avec rhéofluidification ou rhéoépaississement (comportement décrit par la loi d'Herschel-Bulkley donnée par l'équation suivante)

$$\tau = \tau_0 + \mu \dot{\gamma}^n$$

Référence :

- [COU/2001] **Coussot P., Grossiord J. L.**, Comprendre la rhéologie de la circulation du sang à la prise du béton, EDP Science, 2001.
- [EST 2013] **Estellé P., Michon C., Lanos C., Grossiord J.L.**, De l'intérêt d'une caractérisation rhéologique empirique et relative (chapitre 7, pages 205-243), La mesure en rhéologie - des avancées récentes aux perspectives, EDP Sciences, ISBN 978-2-7598-0623-2.

Annexe A-2 : Fiche technique SDBS

SIGMA-ALDRICH®

sigma-aldrich.com

3050 Spruce Street, Saint Louis, MO 63103, USA

Website: www.sigmaaldrich.com

Email USA: techserv@sial.com

Outside USA: eurtechserv@sial.com

Product Specification

Product Name:

Sodium dodecylbenzenesulfonate – technical grade

Product Number:

289957

CAS Number:

25155-30-0

MDL:

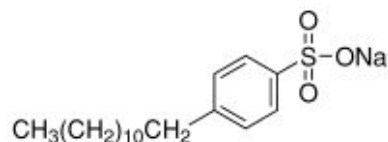
MFCD00011508

Formula:

C₁₈H₂₉NaO₃S

Formula Weight:

348.48 g/mol



TEST

Specification

Appearance (Color)

Conforms to Requirements

Off-White to Yellow to Beige

Appearance (Form)

Conforms to Requirements

Flakes, Powder or Chips

Conforms to Requirements

Infrared Spectrum

Conforms to Requirements

Material May Contain Positional Isomers, Isomers of Various Chain Lengths or Branched Isomers

Titration

Specification: Report Results

Specification: PRD.0.ZQ5.10000038793

Annexe A-3 : Fiche technique surfactant Lignine

SIGMA-ALDRICH

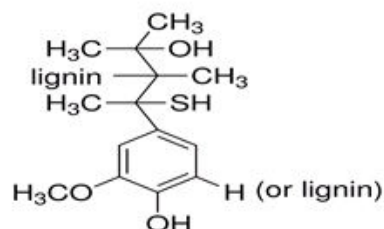
sigma-aldrich.com

1. IDENTIFICATION DE LA SUBSTANCE/ DU MÉLANGE ET DE LA SOCIÉTÉ/ L'ENTREPRISE

1.1 Identificateurs de produit

Nom du produit : Lignin, alkali

Code Produit : 471003
Marque : Aldrich
No. CAS : 8068-05-1



1.2 Utilisations identifiées pertinentes de la substance ou du mélange et utilisations déconseillées

Utilisations identifiées : Substances chimiques de laboratoire, Fabrication de substances

1.3 Renseignements concernant le fournisseur de la fiche de données de sécurité

Société : Sigma-Aldrich Chimie S.a.r.l.
L'Isle D'Abeau Chesnes
F-38297 ST. QUENTIN FALLAVIER

Téléphone : +33 (0)4 74 82 28 40
Fax : +33 (0)4 74 95 68 08
Adresse e-mail : eurtechserv@sial.com

1.4 Numéro d'appel d'urgence

Numéro d'Appel : I.N.R.S.:+33 (0)1 45 42 59 59
d'Urgence

2. IDENTIFICATION DES DANGERS

2.1 Classification de la substance ou du mélange

N'est pas une substance ni un mélange dangereux conformément au règlement (CE) No. 1272/2008.
Cette substance n'est pas classée comme dangereuse au sens de la Directive 67/548/CEE.

Annexe A-4: Effet de précisaillement

Shear History Effect on the Viscosity of Carbon Nanotubes Water-based Nanofluid

Patrice Estellé^{a,*}, Salma Halelfadl^{a,b}, Nimeti Doner^c and Thierry Maré^b

^aLGCGM EA3913, Equipe Matériaux et Thermo-Rhéologie, Université Rennes 1, IUT de Rennes, 3 rue du Clos Courtel, BP 90422, 35704 Rennes Cedex 7, France; ^bLGCGM EA3913, Equipe Matériaux et Thermo-Rhéologie, Université Rennes 1, IUT de Saint-Malo, Rue de la Croix Désilles, CS51713, 35417 Saint-Malo Cedex, France; ^cDepartment of Mechanical Engineering, Dumlupinar University, 43270 Kutahya, Turkey

Abstract: Experimental results on the steady-state rheological behaviour of carbon nanotube (CNT) water-based nanofluid are presented. We have investigated the influence of a controlled preshear history on the viscosity of CNT water-based nanofluid. Two types of preshear history effect are studied: the influence of stress rate during preshear and the effect of resting time before viscosity measurement. It is revealed that CNT water-based nanofluid behaves as a viscoelastic media at low shear rate and it is shear-thinning at higher shear rate. This behaviour is strongly dependent on shear history due to the breakdown in the structural network of nanofluid agglomerates. It is also observed that the nanofluid can reform at rest after preshear following the resting time and the rate or preshear applied to the nanofluid.

Keywords: Agglomerates, CNT, nanofluid, preshear history, resting time, shear-thinning, viscosity.

1. INTRODUCTION

Nanofluids typically consist of nanometer-sized particles of metals, oxides, nitrides, carbides or carbon nanotubes dispersed in a conventional base fluid such as water, glycol, ethylene glycol, engine oil... Nanofluids constitute a class of colloidal suspensions with enhanced thermal properties compared to the base fluids even at under low concentrations of suspended nanoparticles. Previous studies have shown the complex feature of nanofluid rheology.

Whereas conventional base fluids mainly behave in Newtonian manner, adding nanoparticles to a base fluid can only alter the magnitude of viscosity [1-5]. It can also result in different types of rheological behaviour, namely shear-thinning [4,6-16] and yield stress material [7, 17-19] depending on nanofluid. Moreover, viscoelastic behavior is also observed [20-22]. These investigations have revealed that the rheological behavior of nanofluids is strongly affected by the viscosity of the base fluid, the nanoparticle shape, the particles size and concentration, the temperature and the shear rate. The rheological properties of nanofluids are also closely related to the dispersion state of the nanosuspensions, their stability and the presence (or not) of agglomerates. So, it is clear that shear-thinning behavior of nanofluids is mainly associated with the presence of nanoparticle agglomerates even with Newtonian base fluids [8-10, 23-25].

There are two methods for dispersing nanoparticles within the base fluid and formulating a stable nanofluid [26, 27]. The first one is based on the physical or chemical treatment of the nanoparticles, in particular for carbon nanotubes [28] and the use of dispersing agents such as polymers. The dispersing of nanoparticles can also be obtained from mechanical methods such as sonication [2, 4, 17, 21], ultra sonication [3, 5-7, 12], homogenization [6, 12] and high stirring [3, 5, 14]. The dispersion and the stability of the nanofluids are mainly obtained by gathering some of the previous mentioned methods. So, at sufficient rate and duration of mechanical mixing, it is expected that the agglomerates are broken and the nanoparticles are well dispersed. However, it should be mentioned that mechanical methods are able to reduce the size of aggregates but not

sufficient to obtain a complete dispersion of the nanoparticles into primary particles [10, 13]. In addition to this, it was reported that after passing the optimized duration of mechanical dispersing, the nanofluid can agglomerate in a clog during a fast sedimentation [29]. With nanotubes, high mechanical dispersion can lead to the breaking of the nanotubes and results in shorter nanotubes [30].

A number of studies related to the effect of dispersing mechanical methods on the viscosity of nanofluids have been reported. Duan *et al.* [5] have investigated the effect of ultrasonication of the rheological behavior of Al₂O₃ water nanofluid for volume concentration range of 1-5%. It was shown that the nanofluids, which initially behave as shear-thinning material due to the presence of agglomerates, resumed as Newtonian fluids just before ultrasonication. Garg *et al.* [30] have reported the effect of sonication on the viscosity of CNT nanofluid. They have shown that sonication time is first associated with declustering of nanoclusters. Then, increasing the sonication time leads to breakage of the nanotubes resulting in less pronounced shear-thinning behaviour because of the shorter size of the nanotubes. Yang *et al.* [7] have also shown the effect of frequency and time of ultrasonication on agglomerate size and aspect ratio of nanotubes dispersed in oil. They have shown that aspect ratio of the nanotubes decreases as both the dispersing time and energy increase, resulting in less viscous nanosuspensions.

Based on the previous observations, the shear history of a nanofluid must be taken into consideration when investigating its rheology. In this paper, we studied experimentally the effects of preshear history on the viscosity of a CNT water-based nanofluid with a nanotubes weight fraction of 1%. Rheological behaviour under steady-state condition after a well-controlled preshear of the nanosuspension has been investigated. Moreover, the effect of preshear stress rate and resting time on the observed rheological behaviour is presented and discussed in terms of structure and stability of the nanofluid.

2. MATERIALS AND METHODS

2.1. Nanofluid

A carbon nanotube water-based suspension was prepared and provided by Nanocyl (Belgium). This suspension consists of multi-walled carbon nanotubes (carbon purity 90%) dispersed from ultra-sonication in a base mixture of de-ionized water and sodium dodecyl benzene sulfonate (SDBS) as surfactant. The properties of

*Address correspondence to this author at the LGCGM EA3913, Equipe Matériaux et Thermo-Rhéologie, Université Rennes 1, IUT de Rennes, 3 rue du Clos Courtel, BP 90422, 35704 Rennes Cedex 7, France; Tel: +33 (0) 23 23 42 00; Fax: +33 (0) 2 23 23 40 51; E-mail: patrice.estelle@univ-rennes1.fr

Annexe A-5: Propriétés thermo-physiques de l'eau déminéralisée

Température (°C)	Masse volumique (kg/m ³)	Chaleur spécifique (J/kg.K)	Conductivité thermique (W/m.K)	Viscosité dynamique (Pa.s)
10	999.77	4192	0.5866	0.001308
15	999.19	4186	0.5978	0.001139
45	990.22	4180	0.6458	0.000596

Annexe A-6 : Incertitude de mesure DTLM

Incertitude sur le calcul de la différence de température moyenne logarithmique DTLM [LEG/2012]

$$\Delta T_{lm} = \frac{\Delta T_1 - \Delta T_2}{\ln\left(\frac{\Delta T_1}{\Delta T_2}\right)}$$

$$\delta\Delta T_{lm} = \left|\frac{\partial\Delta T_{lm}}{\partial\Delta T_1}\right|\delta(\Delta T_1) + \left|\frac{\partial\Delta T_{lm}}{\partial\Delta T_2}\right|\delta(\Delta T_2)$$

Erreur type « Ecart-type » :

$$\frac{\delta\Delta T_{lm}}{\Delta T_{lm}} = \sqrt{\left(\frac{\partial\Delta T_{lm}}{\partial\Delta T_1}\delta(\Delta T_1)\right)^2 + \left(\frac{\partial\Delta T_{lm}}{\partial\Delta T_2}\delta(\Delta T_2)\right)^2}$$

Avec

$$\frac{\partial\Delta T_{lm}}{\partial\Delta T_1} = \frac{1}{\ln\left(\frac{\Delta T_1}{\Delta T_2}\right)} - \frac{1 - \frac{\Delta T_1}{\Delta T_2}}{\left(\ln\left(\frac{\Delta T_1}{\Delta T_2}\right)\right)^2}$$

$$\text{Et } \frac{\partial\Delta T_{lm}}{\partial\Delta T_2} = \frac{1}{\ln\left(\frac{\Delta T_2}{\Delta T_1}\right)} - \frac{1 - \frac{\Delta T_2}{\Delta T_1}}{\left(\ln\left(\frac{\Delta T_2}{\Delta T_1}\right)\right)^2}$$

Productions Scientifiques associées aux travaux de la thèse

- **Publications parues dans les revues internationales**

1. **Halelfadl S., Estellé P., Maré T.**, Heat transfer properties of aqueous carbon nanotubes nanofluids in coaxial heat exchanger under laminar regime, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 55 (2014), 174-180.
2. **Halelfadl S., Maré T., Estellé P.**, Efficiency of carbon nanotubes water based nanofluids as coolants, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 53 (2014), 104-110.
3. **Halelfadl S., Adham A. M., Mohd-Ghazali N., Maré T., Estellé P., Robiah A.**, Optimization of thermal performances and pressure drop of rectangular microchannel heat sink using aqueous carbon nanotubes based nanofluid, *Applied Thermal Engineering*, 62/2 (2014), 492-499.
4. **Halelfadl S., Estellé P., Aladag B., Doner N., Maré T.**, Viscosity of carbon nanotubes water-based nanofluids: Influence of concentration and temperature, *International Journal of Thermal Sciences*, 71 (2013), 111-117.
5. **P. Estellé, S. Halelfadl, N. Doner, T. Maré**, Shear history effect on the viscosity of carbon nanotubes water based nanofluid, *Current Nanoscience*, 9/2 (2013) 225-230
6. **B. Aladag, S. Halelfadl, N. Doner, T. Maré, S. Duret, P. Estellé**, Experimental investigations of the viscosity of nanofluids at low temperatures, *App. Energy*, 97 (2012) 876-880.
7. **T. Maré, S. Halelfadl, O. Sow, P. Estellé, S. Duret, F. Bazantay**, Comparison of the thermal performances of two nanofluids at low temperature in a plate heat exchanger, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 35/8, 1535-1543, 2011
8. **Maré T., Sow O., Halelfadl S., Lebourlout S., Nguyen C. T.**, Experimental Study of the Freezing Point of γ -Al₂O₃/Water Nanofluid, *Advances in Mechanical Engineering*, Article ID 162961, 2012

- **Publications soumises dans les revues internationales**

- **Estellé P., Halelfadl S., Maré T.**, Lignin as Dispersant for Water-Based Carbon Nanotubes Nanofluids: Impact on Viscosity and Thermal Conductivity, soumis le 10/4/2014 à *International Communications in Heat and Mass Transfer*.

- **Communications parues avec comité de lecture**

- **Nationales**

1. **Halelfadl S., Maré T., Estellé P.**, Optimisation des performances thermiques et hydrauliques d'un nanofluide à base de nanotubes de carbone dans un dissipateur de chaleur à microcanaux rectangulaires, *CIFQ Colloque Interuniversitaire Franco-québécois sur la Thermique des Systèmes*, Reims, 2013.
2. **Halelfadl S., Maré T., Estellé P.**, Caractérisation thermo-hydraulique d'un nanofluide à base de nanotube de carbone, *INSA Symposium MMS: Mesure, Modélisation et Simulation*, INSA Rennes (2012). (*Poster*)

- **Internationales**

1. **Halelfadl S.**, Estellé P., Maré T., Roy G., Etude des performances thermiques en convection forcée des nanofluides à base de nanotubes de carbone dans un échangeur de chaleur coaxial, CIFEM 2014, Moroni aux Comores, (*Communication orale*)
2. R. LAN, **Halelfadl S.**, Estellé P., Maré T. Hydrodynamique des nanofluides dans les échangeurs à micro-canaux: étude expérimentale, CIFEM 2014, Moroni aux Comores, (*Communication orale*)
3. **S. Halelfadl**, P. Estellé, T. Maré (2013) An experimental study of heat transfer characteristics of multi-wall carbon nanotubes suspensions in coaxial heat exchanger (Paper ID: ICAE2013?124), the 5th International Conference on Applied Energy - ICAE2013 (Pretoria, South Africa, July 1-4)
4. A. Arslan, **S. Halelfadl**, T. Maré, P. Estellé, N. Doner, N. Mohd-Ghazali (2013) Experimental investigation of a microchannel heat sink performance using aqueous carbon nanotubes based nanofluid (Paper ID: ICAE2013?119), the 5th International Conference on Applied Energy - ICAE2013 (Pretoria, South Africa, July 1-4) (*communication orale*)
5. **Halelfadl S.**, Maré T., Estellé P., Mohd-Ghazali N., Experimental Investigation of Rheological Behavior and Pressure drop of Aqueous Suspensions of Carbon Nanotubes in a Horizontal Tube, 5th BSME International conference on Thermal Engineering, Procedia Engineering, 56 (2013) 344-349, (*communication orale*)
6. **Halelfadl S.**, Maré T., Estellé P., Etude expérimentale des comportements rhéologique et hydrodynamique des nanofluides à base de nanotubes de carbone NTC, 2ème congrès de l'Association Marocaine de Thermique AMT, 2012
7. **Halelfadl S.**, Aladag B., Maré T., Duret S., Bazantay F., Comportement thermique des nanofluides à basse température, CIFQ Colloque Interuniversitaire Franco-québécois sur la Thermique des Systèmes, Chicoutimi, 2011 (*Communication orale*)
8. P. Estellé, **S. Halelfadl**, T. Maré, B. Aladag, N. Doner (2012) Viscosity of carbon water based nanofluids - effect of concentration and temperature, The XVIth International Congress on Rheology - ICR 2012 (Lisbonne, Portugal, August 5-10) (*Communication orale*)
9. P. Estellé, **S. Halelfadl**, T. Maré (2012) Viscosity of aggregated carbon nanotubes water based nanofluid: influence of mixing conditions, The XVIth International Congress on Rheology - ICR 2012 (Lisbonne, Portugal, August 5-10) (Poster)
10. Aladag B., **Halelfadl S.**, Estellé P., Maré T., Duret S., Experimental investigations of nanofluids at low temperatures on based rheology, Third International Conference on Applied Energy - 16-18 May
11. **Halelfadl S.**, Maré T., Estellé P., Thermal Hydraulic performances of nanofluids at low temperatures in a plate heat exchanger, Symposium "Foundation Of Physical Chemistry" Copernicus Center Warsaw, POLAND, 2011 (*Poster*)

- **Brevets**

- **Collaboration industrielle/Brevet européen** (demande n° 13174339.5, brevet européen n°1352, déposé le 28/6/2013) avec Nanocyl (Belgique) dans le cadre d'une convention de recherche avec le LGCGM (Personnes impliquées : T. Maré, S. Halelfadl, P. Estellé)
Participation à la réalisation des essais, à l'analyse des résultats et aux réunions de travail, rédaction de rapports (3 rapports confidentiels).

- **Prix et distinctions**

- **Bourse de voyage et de congrès** pour le Symposium "Foundation Of Physical Chemistry" Copernicus Center Warsaw, POLAND, 18-19 novembre 2011
- **Bourse Région Bretagne** pour la participation à un congrès international (juillet 2013), 5th International Conference on Applied Energy - ICAE2013 (Pretoria, South Africa, July 1-4)

AVIS DU JURY SUR LA REPRODUCTION DE LA THESE SOUTENUE

Titre de la thèse:

Caractérisation des propriétés thermophysiques et d'échange de chaleur de nanofluides à base de nanotubes de carbone.

Nom Prénom de l'auteur : HALELFADL SALMA

Membres du jury :

- Monsieur VAN VAERENBERGH Stefan
- Monsieur NGUYEN CONG TAM
- Monsieur EL GANAOUI Mohammed
- Monsieur AMADOU Julien
- Monsieur MENEZO Christophe
- Monsieur ESTELLÉ Patrice
- Monsieur MARE Thierry

Président du jury :

Christophe MENEZO

Date de la soutenance : 23 Juin 2014

Reproduction de la these soutenue

Thèse pouvant être reproduite en l'état

~~Thèse pouvant être reproduite après corrections suggérées~~

Fait à Rennes, le 23 Juin 2014

Signature du président de jury

Le Directeur,

M'hamed DRISSI

M'hamed DRISSI

Christophe MENEZO

Les transferts de chaleur constituent la base de nombreux processus industriels qui sont présents dans notre vie quotidienne. L'intensification de ces échanges et l'amélioration du rendement sont devenues aujourd'hui une problématique majeure dans le monde industriel, des organismes de réglementation mais aussi de la société dans son ensemble, qui prend conscience de l'épuisement progressif des ressources énergétiques et qui se soucie de l'avenir en matière énergétique.

Face à ces enjeux énergétiques et environnementaux, Le défi technologique réside dans le développement de nouveaux processus pour une meilleure gestion de l'énergie. Ce travail de thèse s'inscrit dans ce cadre, et concerne particulièrement les problèmes liés à l'intensification des échanges thermiques dans les échangeurs de chaleur. Les améliorations des échanges thermiques dites 'passives' sont une voie déjà largement élaborée et atteignent leurs limites. De nouvelles stratégies d'optimisation doivent donc être étudiées. Une de ces stratégies consiste à améliorer les propriétés thermiques des fluides caloporteurs utilisés dans les systèmes thermiques, notamment dans les échangeurs de chaleur.

Des progrès importants en chimie ont permis dès la fin des années 90 de synthétiser des particules de taille nanométrique, qui, dispersées dans un liquide porteur, constituent des nanofluides. Leur synthèse répond au besoin d'améliorer les propriétés thermiques des fluides caloporteurs en y insérant une phase solide de conductivité thermique très élevée.

Le fil directeur de ce travail consiste donc à caractériser de manière approfondie le comportement thermique et rhéologique des nanofluides à base de nanotubes de carbone NTC utilisés tout au long de ce travail afin de quantifier les principaux paramètres influençant leurs propriétés thermo-physiques et les phénomènes physiques régissant l'intensification des transferts thermiques induits par ces nanofluides.

Une analyse des travaux de recherche antérieurs a été menée dans le but de s'affranchir des différents paramètres qui peuvent influencer le comportement thermique et rhéologique des nanofluides dont on citera les paramètres liés à la composition des nanofluides (fraction volumique des NTC, type de surfactant, rapport d'aspect des NTC), la température, le fluide de base...

Suite à cette étude, nous avons mené une étude expérimentale sur les propriétés thermo-physiques des nanofluides testés (conductivité thermique, viscosité dynamique, masse volumique) et sur les performances thermiques dans un échangeur de chaleur. Nous avons présenté également une analyse des résultats de façon à étudier l'influence des paramètres évoqués ci-dessus. Les résultats obtenus sont comparés et discutés vis-à-vis des modèles classiques existants, en proposant des améliorations et des interprétations selon les tendances obtenues.

Les résultats prometteurs de cette étude sont très encourageants et montrent que l'utilisation des nanofluides à base de nanotubes de carbone offre clairement une amélioration des performances thermiques par rapport aux fluides de base classiques. Les nanofluides à base de NTC peuvent constituer ainsi un débouché prometteur des transferts thermiques et présentent de bonnes perspectives et développement.

Heat transfer is one of the most important industrial processes in our daily lives. Nowadays, the intensification of the heat transfer and the improving of the energy efficiency have become a major problem in industry, regulatory agencies, and also the society that becomes conscious of the progressive exhaustion of the world's energy resources and cares about the future of energy.

Due to these energy and environmental issues, the technological challenge is to develop new processes for better energy management. This work fits in that context and applies particularly the problems associated to the improvements of heat exchanger's energy efficiency.

The conventional methods for increasing the heat transfer in heat exchangers have already been extensively explored and have reached their objective limits. There is therefore an urgent need for new strategies with improved performances. The novel concept of improving the thermal properties of the working fluids used in thermal system, especially in heat exchangers, has been proposed as a means of meeting these challenges.

The innovative concept of nanofluids heat transfer fluids consisting of suspended of nanoparticles with very high thermal conductivities has been proposed for these challenges.

The aim of this work is therefore to characterize profoundly the thermal and the rheological behavior of nanofluids containing carbon nanotubes CNTs used throughout of this work. This is in order to quantify the main parameters influencing their thermo-physical properties and physical phenomena governing the intensification of heat transfer induced by these nanofluids.

An analysis of previous researches has been conducted for the purpose of establishing various parameters that may influence the thermal and rheological behavior of nanofluids, which including the parameters related to the composition of nanofluids (volume fraction of CNTs, type of surfactant, aspect ratio of CNTs), the temperature, the base fluid...

Following this study, experiments have been carried out on the thermal physical properties of tested nanofluids (thermal conductivity, dynamic viscosity, density) and thermal performances in a heat exchanger. Analyses of the results have been presented in order to study the influence of the above-mentioned parameters. The results obtained are compared and discussed vis-à-vis the existing conventional models, suggesting improvements and interpretations according to the trends obtained.

The promising results of this study are very encouraging and show that the use of nanofluids containing carbon nanotubes clearly improved the thermal performances compared to the conventional base fluids. The CNT-based nanofluids can thus be a promising candidate for heat transfer and presents good perspective and development.