



**HAL**  
open science

# Etude dynamique d'un système de stockage par chaleur latente liquide-solide : application au véhicule électrique

Rémy Osipian

► **To cite this version:**

Rémy Osipian. Etude dynamique d'un système de stockage par chaleur latente liquide-solide : application au véhicule électrique. Physique [physics]. Université Sorbonne Paris Cité, 2018. Français. NNT : 2018USPCC052 . tel-02157959

**HAL Id: tel-02157959**

**<https://theses.hal.science/tel-02157959>**

Submitted on 17 Jun 2019

**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.

Thèse de doctorat

de l'Université Sorbonne Paris Cité

préparée à l'Université Paris Diderot

Ecole doctorale 564 : Physique en Île-de-France

*Laboratoire Matière et Systèmes Complexes / Dynamique des Systèmes Hors-Équilibres*

# Étude dynamique d'un système de stockage par chaleur latente liquide-solide : application au véhicule électrique

Par Rémy Osipian

## Thèse de Doctorat de Physique

dirigée par Laurent Royon

Présentée et soutenue publiquement à Paris le 29 juin 2018

Rapporteur	Fournaison Laurence	Directrice de Recherche, IRSTEA
Rapporteur	Laraqi Najib	Professeur, Université Paris Nanterre
Président de jury	Goupil Christophe	Professeur, Université Paris Diderot
Examineur	Pons Michel	Directeur de Recherche, Université Paris Saclay
Directeur de thèse	Royon Laurent	Professeur, Université Paris Diderot
Co-encadrant	Azzouz Kamel	Ingénieur de Recherche, Valeo
Membre invité	Bontemps André	Université Paris Diderot



Except where otherwise noted, this work is licensed under  
<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/3.0/>

**Titre :** Étude dynamique d'un système de stockage par chaleur latente liquide-solide : application au véhicule électrique

**Résumé :** Ce travail porte sur le développement d'un système de stockage de chaleur en vue d'assurer le confort thermique de l'habitacle d'un véhicule électrique. Ce dispositif, appelé batterie thermique, se présente comme un réservoir composé d'un lit fixe de matériaux à changement de phase (MCP). Ce type de matériau a la propriété d'emmagasiner de fortes quantités de chaleur (latente) sous de faibles volumes, permettant d'envisager un système très compact. A l'échelle du matériau, une investigation sur la cinétique des transferts thermiques au sein de plusieurs MCPs a été évaluée. Une expression phénoménologique décrivant l'évolution temporelle de la température d'un MCP en phase de solidification a été proposée. Elle permet d'estimer la durée de solidification du matériau en fonction de ses caractéristiques géométriques et thermiques. A l'échelle du système, un prototype de batterie thermique a été réalisé et la dynamique des transferts en phase de stockage et déstockage a été étudiée. Les durées de stockage et déstockage suivent des lois de puissance avec le débit imposé ; les pertes de charges s'avèrent insignifiantes. En parallèle, un modèle numérique simulant le comportement dynamique et thermique d'un lit fixe de particules de MCP a été développé et validé sur les données expérimentales. Il pourra être utilisé pour le dimensionnement du futur prototype et servira également d'outil pour optimiser les performances de la batterie en ajustant les paramètres de contrôle.

**Mots clefs :** stockage thermique, batterie thermique, matériau à changement de phase (MCP), lit fixe, chaleur latente, échangeur-stockeur, transfert de chaleur, véhicule électrique

**Title :** Dynamic study of a liquid-solid latent heat storage unit : application to electric vehicle

**Abstract :** This study focuses on the development of a heat storage system used to ensure passenger compartment thermal comfort in an electric vehicle. This device, called a thermal battery, is a packed bed latent heat tank filled with phase change materials (PCM). This type of material has the property of storing large amounts of latent heat in small volumes, allowing a very compact system. At the material scale, an investigation on heat transfer dynamics within several PCM was studied. A phenomenological expression which depicts the temporal evolution of the PCM temperature for a solidification phase was suggested. This allows the estimation of the material solidification duration in terms of geometric and thermal characteristics. At the system scale, a thermal battery prototype was set up and the thermal transfer dynamics during the charging and discharging phases were studied. The charging and discharging durations are fitted by power laws in terms of the flow rate; the pressure drops are insignificant. Simultaneously, a numerical model which simulates the dynamic and thermal behavior of a PCM particle fixed bed was developed and validated with the experimental data. It can be used for future prototype sizing and will also serve as a tool to optimize the performance of the battery by setting the control parameters.

**Keywords :** thermal energy storage, thermal battery, phase change material (PCM), packed bed, latent heat, heat exchanger, heat transfer, electric vehicle

*[À mes parents et ma famille]*

Ժամանակը այն կտաւն է, որուն վրայ մարդ իր կեանքի արուեստովը պատկեր մը կը դրոշմէ. Եւ այդ պատկերն է, որ կտաւը կը փրկէ կտաւութեան ինքնիրմով « չեզոք », անիմաստ գոյութենէն եւ բնական փճացումէն :

Գարեգին Ա Կաթողիկոս Ամենայն Հայոց

*Le temps est une toile sur laquelle l'homme esquisse une image au gré de sa vie. C'est cette image qui sauve la toile d'une existence « vide », insignifiante et vouée à disparaître.*

Karekin I<sup>er</sup>, Catholikos de tous les Arméniens



# Remerciements

Il est vrai que la réussite d'une thèse dépend principalement de la motivation et de l'engagement du doctorant qui en est l'auteur, mais elle est sans équivoque inséparable de l'implication et du soutien précieux d'un certain nombre de personnes. Je souhaite à travers ce texte, exprimer mes vifs remerciements à tous ces gens qui ont contribué de près ou de loin à la réussite de ma thèse.

En tout premier lieu, je voudrais remercier et exprimer toute ma gratitude à mon directeur de thèse Laurent Royon qui m'a accompagné et encadré du début à la fin de ces 3 années de doctorat. Malgré une charge de travail à ne pas négliger, il a été de bons conseils, a su être à l'écoute, a fait preuve de générosité et de sollicitude à mon égard, ce que je ne pourrai oublier. Je lui souhaite beaucoup de courage pour la suite.

Ma thèse s'inscrit dans le cadre du projet VEGETO, financé par le fonds FUI (fond unique interministériel). Je voudrais transmettre mes remerciements aux principaux acteurs, plus particulièrement à la région Ile de France et à la société Valeo, représenté par Kamel Azzouz pour avoir mené à bien ce projet.

Je remercie chaleureusement mon collègue et ami Amir Seyed-Bahrani qui a été un formidable appui à chaque fois que j'en avais le besoin et avec qui j'ai pu avoir des échanges passionnés sur des sujets aussi divers qu'intéressants. Je garde également en mémoire tous les moments de joie et de fous rires qu'on a pu partager ensemble.

Je voudrais saisir l'occasion pour remercier vivement le technicien Frédéric Filaine sans qui le dispositif, élément central de ma thèse, n'aurait jamais pu voir le jour. Savoir concilier rigueur et bonne humeur est une de ces grandes qualités.

Je ne peux écrire ce texte sans évoquer le nom de André Bontemps, ancien professeur émérite, qui a su me transmettre son expertise scientifique et un certain nombre de savoirs qui ont été indispensables pour la bonne réalisation de ma thèse. Je lui exprime toute ma reconnaissance.

Je remercie mon comité de suivi composé de mon parrain Christophe Goupil et de Michel Pons, pour leurs remarques pertinentes et leurs nombreux conseils. Je saisis également l'occasion pour exprimer ma reconnaissance la plus sincère à Laurence Fournaison et Najib Laraqi pour avoir eu l'amabilité de bien vouloir être les rapporteurs de ma thèse.

Pendant le montage de mon dispositif, une de mes tâches me paraissant les plus fastidieuses était l'injection à chaud de MCP dans plus de 500 billes creuses. Mais cette tâche m'a été rendu facile grâce à l'assistance d'une équipe de 4 étudiants de l'ESIEE dont je remercie en premier lieu leur tuteur Xiaofeng Guo pour m'avoir proposé son aide. Je remercie évidemment par la même occasion les 4 étudiants que sont Amelina Bedell-Harper, Camille Leboueix, Siham Bengriche et Stéphane Pasquier pour leur contribution dans la réalisation de ce travail.

Mes remerciements vont également à Bérangère Abou qui a pris de son temps pour effectuer la relecture de ma partie micro-rhéologie et répondre à mes questions. Je retiendrai entre autres sa gentillesse et son sens de l'entraide.

Je ne peux évidemment omettre l'importance qu'ont eu tous les collègues de mon thésarium, les doctorants et post-doctorants, les collègues-enseignants et les stagiaires, dans la réussite de ma thèse par les nombreux échanges, discussions et moments que nous avons pu partager ensemble. Je remercie chaleureusement Rémy Herbaut, Maxime Costalonga, Luc Humberstet, Tommy Desup, Zejun Hu, Antoine Gaillard, Martin Hendel, Menghua Zhao, Sophie Parison, Marc Hennes, Chi-Tuong Pham, Chuanyu Zhang, Nicolas Chastrette, Alexis Peaucelle.

Je n'oublie pas de remercier également l'équipe technique du laboratoire MSC, notamment Laurent Réa, Oune-Saysavanh Souramasing et Arnaud Grados ; l'ensemble du personnel du laboratoire MSC ; et l'ensemble du personnel de sécurité, de l'entretien et du service nettoyage. Et d'une manière générale je remercie l'Université Paris Diderot pour m'avoir accueilli dans ses locaux durant mes 3 années de thèse.

Je veux remercier d'un amour plein et entier tous mes amis et camarades qui n'ont cessé de me soutenir et de m'encourager ; et qui sont pour moi une force de motivation quotidienne dans tous les projets que j'entreprends. Ils se reconnaîtront. Leur amitié est emplie de bonté et de sincérité, et cela me comble de joie de savoir que je les ai à mes côtés.

Enfin, même si je sais pertinemment qu'ils n'attendent aucunement que je les cite ici, je ne peux conclure ces écrits sans exprimer ma profonde et entière gratitude à mes parents et à toute ma famille, sans qui je ne serai l'homme que je suis aujourd'hui. Je leur dois l'éducation qui m'a façonnée. Je leur dois les valeurs qui m'animent. Et je leur dois les principes qui me guident. Pas un jour ne passe sans qu'ils ne me transmettent leur amour, sentiment qui à mon sens est au-dessus de tout. Aujourd'hui ma réussite est aussi la leur.

# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	9
<b>Chapitre I : Gestion de l'énergie thermique du véhicule électrique</b>	13
1 Introduction.....	17
2 Dispositifs de gestion thermique du véhicule électrique.....	18
3 Positionnement et objectifs .....	27
4 Matériaux à changement de phase.....	29
5 Chauffage de l'habitacle par une batterie thermique à base de MCPs .....	33
6 Conclusion .....	38
Bibliographie.....	39
<b>Chapitre II : Approche phénoménologique de la solidification de MCPs</b>	41
1 Introduction.....	45
2 Présentation des MCPs étudiés.....	46
3 Propriétés mécaniques.....	49
4 Modèle phénoménologique.....	55
5 Conclusion .....	63
Annexes : Eléments de rhéologie .....	64
Bibliographie.....	66
<b>Chapitre III : Transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP : étude expérimentale</b>	67
1 Introduction.....	71
2 Schéma de principe - Dimensionnement .....	72
3 Dispositif expérimental .....	74
4 Protocole et résultats .....	82
5 Conclusion et perspectives.....	96

<b>Chapitre IV : Ecoulement et transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP : théorie et état de l'art</b>	97
1 Introduction.....	103
2 Structure du remplissage .....	104
3 Lois de pertes de charges .....	108
4 Modèles de transferts thermiques.....	112
5 Conclusion .....	125
Bibliographie.....	126
<b>Chapitre V : Transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP : approche numérique</b>	131
1 Introduction.....	135
2 Modélisation numérique.....	136
3 Résultats et discussions.....	146
4 Conclusion et perspectives.....	165
Bibliographie.....	166
<b>Conclusion et perspectives</b>	167
<b>Valorisation scientifique des travaux réalisés</b>	171

# Introduction générale

D'après l'Agence Française de Sécurité Sanitaire Environnementale (AFSSE), la pollution de l'air serait responsable chaque année du décès de 6 000 à 10 000 personnes en France. L'une des principales causes de la pollution proviendrait des gaz d'échappement des véhicules qui se divisent en deux catégories : les gaz à effet de serre et les polluants atmosphériques. Les premiers participent activement au réchauffement climatique tandis que les seconds altèrent la qualité de l'air et affectent la santé humaine. Lors des pics de pollution de début 2009 qui ont eu lieu en France, l'Institut de Veille Sanitaire (InVS) a mis en exergue les liens entre l'exposition à 3 polluants de l'air (NO<sub>2</sub>, ozone O<sub>3</sub> et PM<sub>10</sub>) et l'augmentation de la mortalité. Ces polluants sont entre autres issus directement ou indirectement des véhicules.<sup>1</sup>

Limiter les émissions de gaz des véhicules constitue donc un enjeu majeur pour la sauvegarde de l'environnement, la protection de la vie humaine, et la lutte contre le réchauffement climatique.

De ce fait, des politiques environnementales ont été mises en place telles que les normes européennes dites « normes Euro » qui ont pour objectif de fixer des seuils d'émissions pour les polluants rejetés par les véhicules. En France, les lois Grenelle ont également fixé comme objectif de réduire de 20% les émissions de CO<sub>2</sub> d'ici 2020.

Ces nouvelles réglementations incitent les constructeurs à développer régulièrement des nouveaux dispositifs (pots catalytiques, filtres à particules, systèmes de post-traitement des NO<sub>x</sub>...) afin de réduire ces émissions. Néanmoins, malgré des normes de plus en plus drastiques, le transport routier continue d'émettre des taux importants de polluants. Il reste par exemple le contributeur majeur en matière d'émissions d'oxyde d'azote (NO<sub>x</sub>) avec environ 45% des émissions totales en Europe (35% en ne tenant compte que des véhicules diesel).

Les contraintes imposées par la nouvelle norme Euro 6D vont conduire, en raison des solutions technologiques à développer, à un réajustement du prix des véhicules électriques et hybrides vis-à-vis des véhicules à moteur thermiques. Dans ce contexte, le véhicule électrique peut constituer une bonne alternative puisqu'il respecte l'ensemble de ces normes en ne rejetant aucun gaz et en n'utilisant aucun produit polluant (liquide de refroidissement, huile de vidange...). De plus, contrairement au moteur thermique, le moteur électrique réduit fortement la pollution sonore puisqu'elle n'émet pratiquement aucun bruit. A l'heure actuelle, beaucoup de constructeurs mobilisent leurs efforts pour développer et améliorer le véhicule électrique ; pas nécessairement pour des raisons écologiques comme on pourrait le penser, mais principalement pour des raisons pratiques. En effet, la conception de ce type de véhicule est beaucoup plus simple, son entretien est plus facile et le rendement de son moteur est nettement supérieur à celui du moteur à explosion.

Cependant, le véhicule électrique dans sa forme actuelle présente encore de nombreux inconvénients, liés principalement à sa batterie. Etant l'élément clé de ces véhicules, la

---

<sup>1</sup> [http://invs.santepubliquefrance.fr/beh/2009/05/beh\\_05\\_2009.pdf](http://invs.santepubliquefrance.fr/beh/2009/05/beh_05_2009.pdf)

batterie fait l'objet de nombreuses études car elle conditionne le prix, le poids et surtout l'autonomie du véhicule. En effet, les matériaux utilisés pour fabriquer une batterie restent encore chers, ils ne permettent pas de stocker autant d'énergie qu'un carburant fossile, et leur durée de vie dépend fortement de la température du système dans lequel ils évoluent. Lors des phases de charge et de décharge, des températures supérieures à 50°C sont observées. Celles-ci ont un impact sur la durée de vie des composants de la batterie et provoquent des conséquences irréversibles. Des températures inférieures à 15°C altèrent également les performances de la batterie. Une stabilisation thermique autour de 30°C améliorerait fortement ses capacités et sa longévité. A ce problème de capacité s'ajoute également le problème lié aux besoins thermiques du véhicule, destinés essentiellement au chauffage de l'habitacle. Le graphique de la Figure 1 montre l'évolution des besoins thermiques et électriques du véhicule en fonction de la température extérieure.

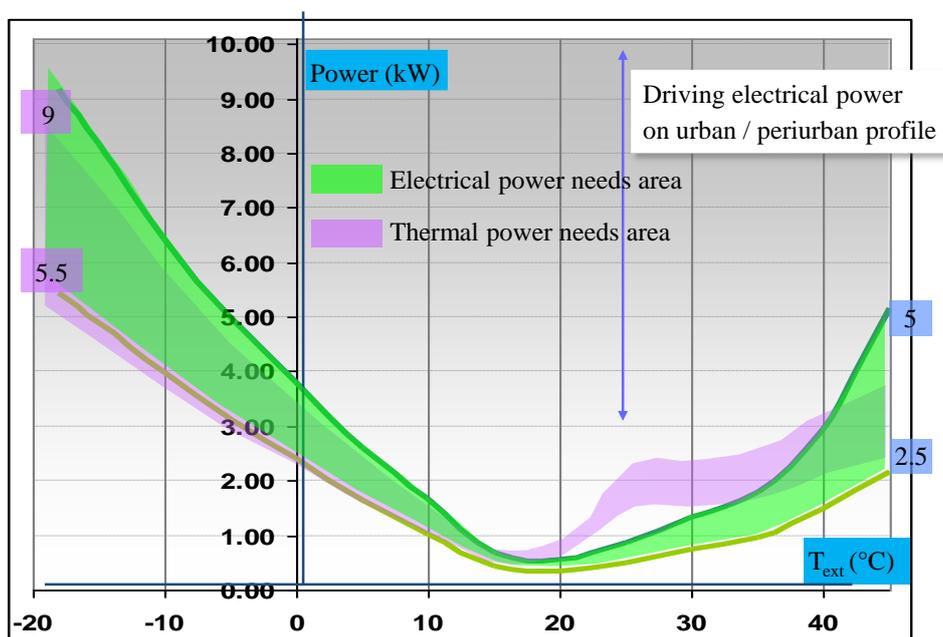


Figure 1 - Besoins électriques et thermiques du véhicule en fonction de la température extérieure (source Valeo)

Le graphique montre que, pour des températures extérieures inférieures à 10°C, les besoins en chauffage sont du même ordre de grandeur que les besoins électriques. Ces besoins augmentent à mesure que la température extérieure diminue. Par conséquent, l'autonomie du véhicule est fortement diminuée notamment en période hivernale.

Pour accroître l'autonomie, il paraît utile de limiter les besoins électriques qui ne participent pas au roulage du véhicule. Le chauffage de l'habitacle par exemple constitue une source de consommation considérable, qui contribue à la diminution de l'énergie électrique stockée dans la batterie. Une solution possible est l'incorporation d'une batterie thermique dissociée de la batterie électrique, qui constituerait le réservoir d'énergie thermique dédié au chauffage de l'habitacle. L'énergie thermique serait chargée dans ce réservoir en même temps que l'on effectue le chargement de la batterie électrique. Ce système de batterie thermique permettrait ainsi de conserver les propriétés optimales du véhicule, notamment en période hivernale.

Notre recherche s'inscrit dans un vaste programme intitulé VEGETO - Véhicule Electrique : Gestion Energétique et Thermique Optimisée - financé par le Fonds Unique Interministériel (FUI) qui vise à améliorer l'autonomie du véhicule électrique et à augmenter la durée de vie des batteries électriques. Développé au sein de 3 laboratoires (MSC et LIED de l'Université Paris Diderot et PERSEE de l'Université Sophia Antipolis) et en partenariat avec 5 entreprises (VALEO, SAFT, CRISTOPIA, DATE et MCI Technologies), le projet porte plus précisément sur la conception de deux systèmes innovants qui reposent sur l'utilisation de matériaux à changement de phase (MCP).

L'un aura pour fonction de réguler thermiquement la batterie électrique pour limiter les surchauffes ou les baisses de température lors de la recharge/décharge électrique. L'autre constituera un réservoir de chaleur, appelé batterie thermique qui sera exclusivement dédié au chauffage de l'habitacle.

Notre thèse se focalise essentiellement sur le développement et l'étude de la batterie thermique. Celle-ci sera constituée d'un stock de MCPs dont on exploitera l'énergie thermique à la demande, grâce au passage d'un fluide caloporteur. Ce système a l'avantage de s'adapter aux espaces réduits à l'intérieur d'un véhicule mais également de contrôler précisément les puissances thermiques en ajustant le débit du fluide. Au sein de la batterie thermique, le matériau utilisé sera un MCP d'origine végétale à haut point de fusion (autour de 70°C). Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse seront structurés en cinq chapitres.

Le chapitre I expose un état de l'art des dispositifs relatifs à la gestion thermique du véhicule électrique et présente les objectifs de l'étude qui met en lumière l'utilisation de MCP selon deux perspectives.

Le chapitre II porte sur la caractérisation des propriétés thermo-physiques des MCPs développés au laboratoire suivi d'une étude des transferts de chaleur avec changement de phase au sein d'un échantillon de taille mésoscopique. Ce travail expérimental a permis d'établir une relation phénoménologique qui modélise l'évolution de la température du MCP et la durée d'une phase de solidification. Dans le cadre du développement de la batterie thermique, la durée de solidification du MCP s'avère être une donnée essentielle.

Le chapitre III porte sur la conception et l'étude d'un prototype de batterie thermique renfermant des billes de MCP. Un protocole expérimental a été mis en place afin d'évaluer ses performances en phase de stockage et déstockage thermique.

Le chapitre IV présente les caractéristiques et les phénomènes dynamiques et thermiques mis en jeu dans les écoulements au sein des lits fixes de particules de MCPs. Ils traitent de la structure du remplissage du lit (porosité, effet de paroi...), des pertes de charge et des différents modèles de transferts thermiques.

Enfin, le chapitre V consiste à développer et à étudier une modélisation numérique qui simule les écoulements au sein d'une batterie thermique constituée d'un lit fixe de particules de MCPs. L'objectif est d'optimiser les performances de la batterie à travers l'évaluation de différents paramètres de contrôle.



# **Chapitre I**

## **Gestion de l'énergie thermique du véhicule électrique**



## Table des matières

1	Introduction.....	17
2	Dispositifs de gestion thermique du véhicule électrique .....	18
2.1	Moteur électrique (propulsion).....	18
2.2	Chauffage de l'habitacle .....	19
2.3	Climatisation de l'habitacle .....	20
2.4	Batterie électrique.....	21
2.4.1	Régulation thermique par air.....	22
2.4.2	Régulation thermique par liquide.....	23
2.4.3	Régulation thermique par thermoélectricité.....	25
2.4.4	Régulation thermique par MCPs.....	25
3	Positionnement et objectifs .....	27
3.1	Solution : le Matériau à changement de phase (MCP).....	28
3.1.1	MCP en tant que régulateur thermique .....	28
3.1.2	MCP en tant que stockeur thermique .....	28
3.2	Objectifs scientifiques .....	29
4	Matériaux à changement de phase .....	29
4.1	Classification des MCPs.....	29
4.1.1	Organique .....	30
4.1.2	Inorganique.....	31
4.1.3	Eutectique.....	31
4.2	Critères de choix .....	32
5	Chauffage de l'habitacle par une batterie thermique à base de MCP .....	33
5.1	Echangeur-stockeur .....	33
5.2	Batterie thermique à lit fixe .....	34
6	Conclusion .....	38
	Bibliographie.....	39



## 1 Introduction

L'autonomie du véhicule électrique dépend de la capacité de stockage des batteries électriques et de l'énergie consommée pour la propulsion et la gestion thermique du véhicule.

Le véhicule électrique ne récupère qu'une faible partie de la chaleur issue du moteur contrairement au véhicule à combustion ; il est donc nécessaire de reconsidérer les fonctions de chauffage et de climatisation de l'habitacle et du refroidissement de la chaîne de traction (moteur). L'objectif est de limiter la quantité d'énergie à puiser sur la batterie électrique. Dans le cadre d'un projet intitulé VEGA/THOP, des études montrent que la puissance électrique nécessaire à la gestion du confort thermique peut être du même ordre de grandeur voire supérieure que la puissance utilisée pour la propulsion du véhicule. Le graphique de la Figure 1 met en évidence l'impact de l'utilisation du chauffage sur l'autonomie du véhicule pour différentes températures extérieures.

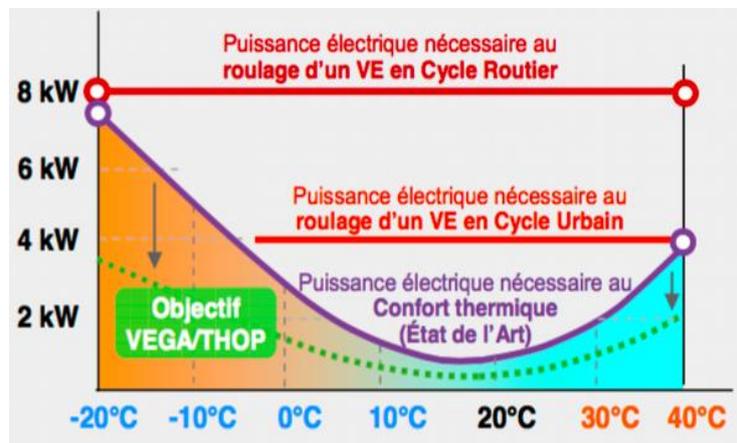


Figure 1 - Impact de la température extérieure sur la puissance électrique nécessaire au roulage et au confort thermique pour les cycles urbain et routier. (Source VEGA/THOP)

Ce chapitre présente tout d'abord un état des lieux des systèmes implantés au sein du véhicule électrique en charge de la gestion de l'énergie thermique. On s'attachera à décrire les principaux dispositifs et boucles thermiques (pompe à chaleur, résistances électriques ...), qui sont actuellement mis en place pour assurer le confort thermique et la stabilisation en température de la batterie. Les systèmes innovants, qui ont été déployés ces dernières années avec plus ou moins de succès, seront également présentés. On s'attardera ensuite sur une autre forme de batterie, thermique cette fois-ci, constitués de matériaux à changement de phase de type solide-liquide (MCPs). Ce type de dispositif de stockage d'énergie par chaleur latente, qui est habituellement exploité pour des applications dans le bâtiment, peut s'avérer être une solution de complémentarité pour le véhicule électrique. La chaleur injectée pour le chauffage de l'habitacle est directement puisée de la batterie thermique ; la batterie électrique préserve ainsi son énergie pour la propulsion du véhicule. L'étude d'un prototype de batterie thermique destinée au chauffage de l'habitacle fera l'objet du chapitre III de la thèse.

La gestion thermique du véhicule électrique concerne également la batterie électrique. La longévité et la fiabilité de la batterie électrique dépendra du niveau de température atteint pendant la période de fonctionnement. La Figure 2 démontre que des températures allant

jusqu'à 50°C lors des phases de charge et de décharge peuvent provoquer des conséquences irréversibles sur la batterie électrique. De plus, des températures inférieures à 15°C n'ont pas d'impact sur la durée de vie de la batterie mais altèrent ses performances. Par conséquent, la gamme de température de fonctionnement optimal est comprise entre 20°C et 35°C. Des systèmes de refroidissement par air ou par fluide sont développés pour empêcher leur surchauffe. L'implantation de MCP est également à l'étude dans le cadre du programme VEGETO (Véhicule Electrique : Gestion Energétique et Thermique Optimisée).

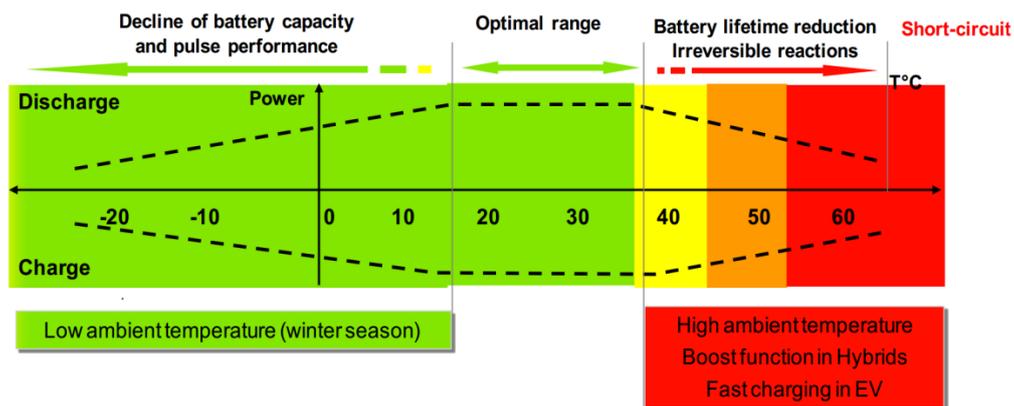


Figure 2 - Impact de la température de fonctionnement sur la durée de vie et sur les performances d'une batterie (source Valeo)

## 2 Dispositifs de gestion thermique du véhicule électrique

Le système de gestion thermique des véhicules électriques actuels comprend généralement trois boucles de circulation « fluide » fonctionnant à des températures différentes qui assurent respectivement le refroidissement du moteur, la gestion thermique de l'habitacle (chauffage et climatisation) et la stabilisation en température des batteries.

### 2.1 Moteur électrique (propulsion)

Afin de préserver une température optimale et éviter toute surchauffe du moteur, un module composé d'une boucle principale de circulation et d'un ventilateur assure le refroidissement de la partie propulsion. Le module utilise des équipements qui ont fait leurs preuves sur les véhicules traditionnels. Comme dans un véhicule thermique, un liquide de refroidissement circule autour du moteur électrique pour le refroidir en récupérant la chaleur dégagée et en l'acheminant vers des radiateurs. Lorsque les conditions le permettent, la chaleur récupérée est redistribuée dans l'habitacle comme complément au circuit de chauffage.

Le ventilateur placé devant le radiateur sur la partie frontale du véhicule a été amélioré et présente une durée de vie supérieure, notamment pour fonctionner durant la recharge de la batterie. Il opère aussi de façon totalement silencieuse grâce à un abaissement de son régime

et à une adaptation de la forme de ses pales. Le bruit qu'il génère est alors imperceptible, ce qui est avantageux notamment lors de recharge nocturne.

## 2.2 Chauffage de l'habitacle

Un véhicule électrique se doit d'offrir un niveau de confort thermique équivalent à celui du véhicule conventionnel. Or, étant donné que le moteur ou la batterie électrique ne dégage que très peu de chaleur, il est essentiel de trouver des systèmes annexes pour le chauffage de l'habitacle qui ne pénalisent ni l'autonomie, ni le coût du véhicule. Une seconde boucle de circulation est donc utilisée pour assurer le confort thermique dans le véhicule.

Certains véhicules électriques sont équipés d'une pompe à chaleur qui fonctionne de la même manière que celle utilisée dans l'habitat en récupérant la chaleur de l'extérieur pour la restituer à l'intérieur du véhicule (cf. Figure 3).

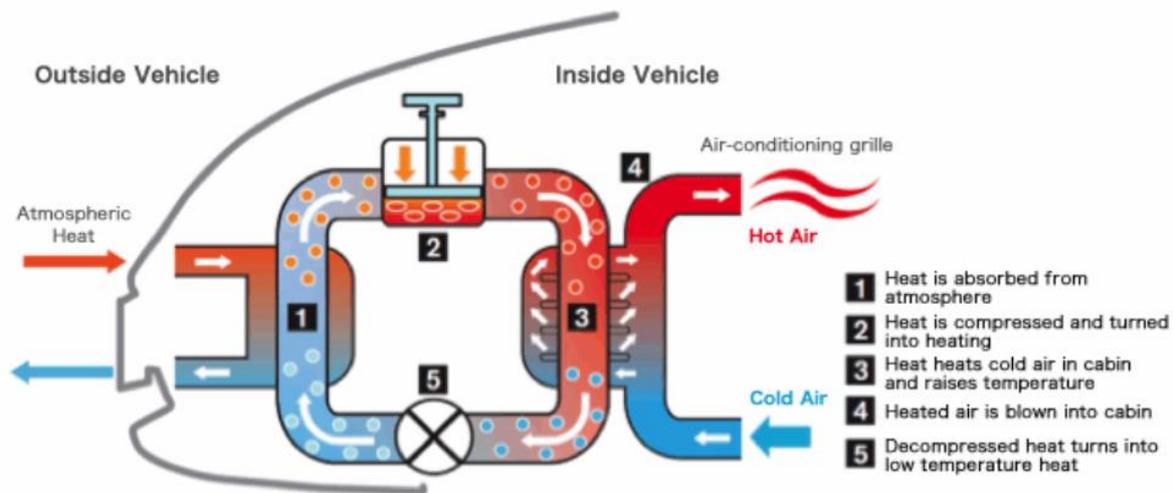


Figure 3 - Fonctionnement d'une pompe à chaleur dans un véhicule électrique

Plusieurs constructeurs s'efforcent d'optimiser ce système thermodynamique afin d'augmenter son rendement. Les premiers travaux effectués sur ce dispositif visaient à diminuer la consommation électrique des composants électroniques. Récemment, l'équipementier Bosch a présenté un nouveau système de pompe à chaleur qui ferait gagner jusqu'à 25% d'autonomie en période hivernale [1]. Ce système reposerait sur une gestion thermique intelligente des différentes sources de chaleur (ou de froid) au sein du véhicule. Par exemple, elle récupérerait la chaleur dégagée par la batterie électrique et par les composants électroniques ou, le froid généré par le système de refroidissement de la batterie. L'entreprise PSA exploite aussi ce système et estime faire un gain de 50 km sur un véhicule d'une autonomie de 400 km [2].

D'autres véhicules électriques sont aussi équipés d'éléments de chauffage PTC (*positive temperature coefficient*), mis en place pour augmenter la température du flux d'air provenant de l'extérieur grâce à la résistance électrique des composants chauffants PTC qui le

composent. Ces éléments sont des thermistances, qui procurent un chauffage rapide et silencieux pour l'habitacle ainsi que pour le dégivrage du pare-brise. Différentes sociétés comme Beru [3] et BorgWarner [4] développent ce type de système comme illustré sur la Figure 4.



*Figure 4 – Dispositif de chauffage PTC*

D'autres approches sont également en cours d'élaboration et de développement tels que le chauffage localisé ou le chauffage par rayonnement. Concernant le chauffage localisé, il s'agirait par exemple des sièges chauffants dans lesquels seraient directement intégrés des résistances et des mini-ventilateurs.

Cependant, tous ces systèmes aussi performants qu'ils soient, sont très énergivores et puisent dans la batterie électrique, ce qui réduit considérablement l'autonomie du véhicule. Par conséquent, l'enjeu est de trouver une solution qui apporte le confort thermique nécessaire à l'habitacle et qui ne consomme pas d'énergie électrique pendant le fonctionnement du véhicule.

Notre recherche vise à proposer une solution innovante basée sur le stockage thermique par chaleur latente qui sera présentée dans la partie 5.2.

## **2.3 Climatisation de l'habitacle**

Généralement le système de climatisation est associé au dispositif de chauffage de l'habitacle constituant un système 2-en-1 (pompe à chaleur réversible, association pompe à chaleur/pompe à liquide de refroidissement...). Mais le système de climatisation est parfois installé indépendamment du dispositif de chauffage. Par ailleurs, afin de mieux répondre au cahier des charges spécifique des véhicules électriques et hybrides, la technologie de son compresseur a été optimisée. Contrairement au cas des compresseurs conventionnels, son entraînement est assuré par un moteur électrique intégré. Ce montage apporte une plus grande flexibilité d'intégration dans le compartiment moteur et peut fonctionner lorsque le moteur de traction est à l'arrêt, prestation impossible avec un entraînement conventionnel.

Un habitacle de véhicule électrique étant très silencieux, les vibrations et bruits du compresseur ont été réduits. Le compresseur est de type à spirale (dit « scroll »). Cette technologie à haut rendement et son entraînement par moteur électrique (sans balai)

contribuent à réduire la consommation électrique. De plus, le compresseur est équipé d'un séparateur d'huile qui accroît l'efficacité globale du système de climatisation.

## 2.4 Batterie électrique

La chaleur dégagée par le module de batterie peut être estimée à partir de la résistance interne  $R$  et du courant  $\dot{i}$  qui parcourt la cellule. Pour une batterie classique (Li-ion) constituée de 12 modules, le flux de chaleur dégagé est de :

$$P = 12 R \cdot \dot{i}^2 = 77,8 \text{ W}$$

en considérant  $R = 4,5 \cdot 10^{-4}$  Ohm et un courant  $\dot{i}$  de 120 A.

La gestion thermique de la batterie électrique est primordiale car elle conditionne sa durée de vie ainsi que sa capacité à délivrer et absorber l'énergie. Le Tableau 1 présente les plages de températures recommandées pour la charge et la décharge suivant la nature de la batterie.

	<b>Plomb</b>	<b>Ni-MH</b>	<b>Li-ion</b>	<b>Polymère Li-ion</b>
<b>Charge</b>				
Température recommandée	5-25	15-30	20-30	18-25
Température min. (°C)	-20	0	0	0
Température max. (°C)	50	45	45	60
<b>Décharge</b>				
Température recommandée	0-30	15-30	20-30	18-25
Température min. (°C)	-20	-20	-20	0
Température max. (°C)	50	65	60	60

*Tableau 1- Plages de températures de différentes batteries en mode charge/décharge*

La température de fonctionnement optimale pour une batterie courante de type Lithium-Ion est relativement restreinte - entre 20°C et 30°C - quelles que soient les conditions d'utilisation. Cette plage doit par ailleurs être garantie dans l'ensemble du pack de la batterie de manière à assurer un vieillissement homogène de toutes les cellules. Pour des températures hautes, la surchauffe provoque la dégradation irréversible de certaines cellules de la batterie. Pour les températures basses, la capacité de stockage et ses performances sont diminuées.

Pour assurer la régulation thermique de la batterie, une troisième boucle est nécessaire afin de maintenir la batterie dans la plage de température optimale d'utilisation. Différents systèmes ont été développés pour permettre un refroidissement l'été et un réchauffement l'hiver. Ils se distinguent par le fluide utilisé (air ou liquide) et par la technologie mise en œuvre. Nous présentons à la suite les systèmes classiques de régulation thermique.

## 2.4.1 Régulation thermique par air

S'agissant des systèmes de gestion thermique par air, la Figure 5 présente les 3 dispositifs usuels utilisant l'air pour refroidir ou réchauffer la batterie des véhicules électriques [5].

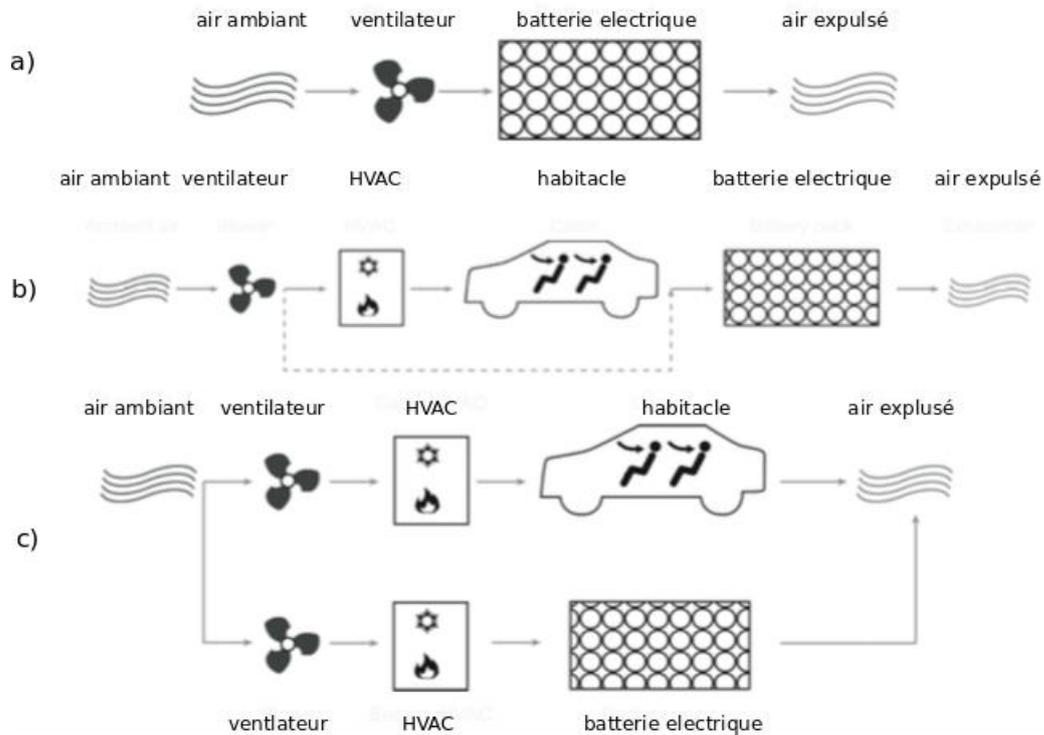


Figure 5 - Représentation schématique des différents systèmes de refroidissement par air utilisés pour refroidir la batterie électrique [5]

Dans la version la plus simple, la gestion thermique est assurée par un ventilateur qui aspire l'air de l'habitacle et le redistribue de façon homogène dans le pack de batteries via des canalisations (cf. Figure 5a). Cependant, la faible densité et conductivité thermique de l'air impose l'utilisation d'un important volume pour assurer son rôle de régulateur. Ce système est donc peu employé. Pour optimiser la régulation thermique, la seconde possibilité est de récupérer la chaleur/l'air frais du système de pompe à chaleur qui est dédié à l'habitacle (cf. Figure 5b). Ce système garantit donc une double fonction qui est d'assurer la gestion thermique de l'habitacle et de la batterie. Enfin, une troisième possibilité est proposée avec un système de pompe à chaleur installé en parallèle du circuit conventionnel, spécifiquement destiné à la régulation thermique de la batterie électrique (cf. Figure 5c).

Outre son rôle de régulateur, le circuit d'air permet d'évacuer à l'extérieur les gaz toxiques ou inflammables émis par les batteries. Le ventilateur est entraîné par un moteur sans balai à haut rendement et son débit est contrôlé par un variateur de vitesse. La technologie sans balai évite tout risque d'étincelle près des batteries. Par temps chaud, le ventilateur peut également assurer une fonction de pré-ventilation afin de réduire la température de l'habitacle avant démarrage du véhicule, tout en consommant le minimum d'énergie.

Afin de maintenir une température stable, il est manifeste que les systèmes de régulation thermique par air via des pompes à chaleur (Figures 5b et 5c) sont beaucoup plus efficaces qu'un système utilisant uniquement un ventilateur. En revanche, ils sont beaucoup plus énergivores et peuvent engendrer un poids important.

## 2.4.2 Régulation thermique par liquide

Les systèmes de régulation thermique par liquide s'opèrent par circulation d'un réfrigérant/fluide caloporteur autour de la batterie. Ils sont généralement constitués d'un serpentin de tubes en aluminium mis en contact avec les cellules du pack batterie. Une telle construction permet l'échange thermique direct avec les cellules ainsi qu'un équilibre parfait des températures à l'intérieur du pack.

Le refroidissement par liquide (réfrigérant) consiste en une plaque d'évaporation intégrée au module de la batterie et connectée au circuit de climatisation conventionnel du véhicule [6]. Lorsque la batterie a besoin d'être réchauffée, le mode chauffage se met en route au moyen d'une résistance électrique incorporée au circuit. Ce système est illustré sur la Figure 6.

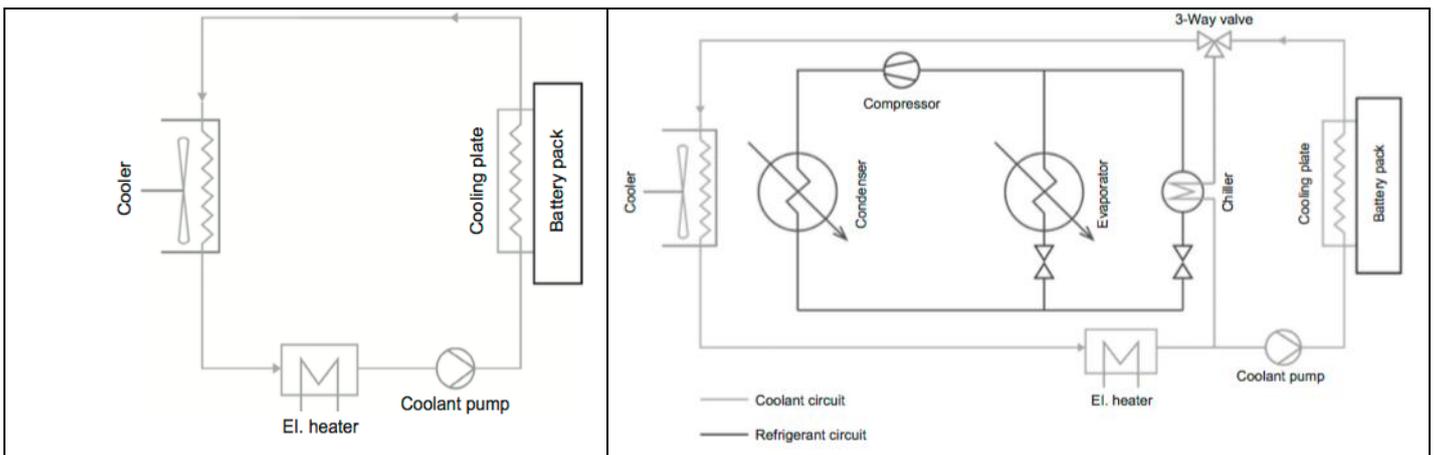


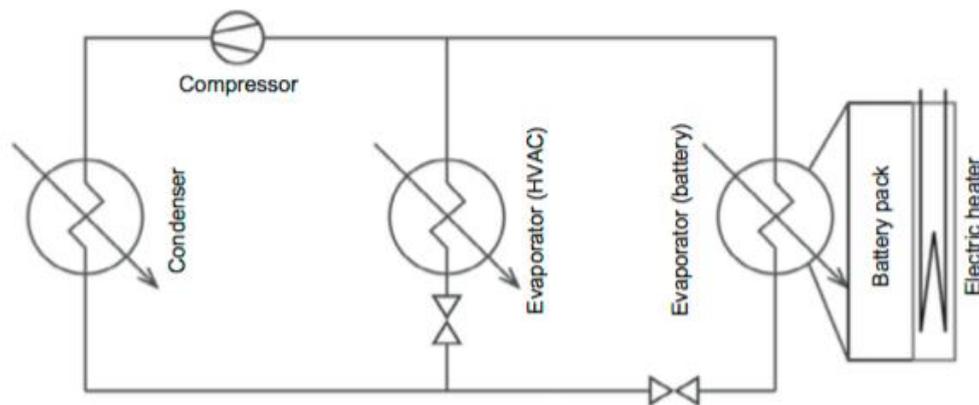
Figure 6 – Système de régulation thermique par liquide

Le plus grand avantage de la régulation thermique par liquide réside dans la puissance échangée qui est nettement plus élevée, en raison d'un débit et d'une capacité calorifique plus importantes. Grâce à une température d'évaporation bien définie, l'échangeur permet d'uniformiser la température sur toute la surface de la batterie. Le système permet également d'obtenir une meilleure compacité du système. De plus, grâce à ces niveaux de puissance remarquables, il favorise une meilleure contrôlabilité pour des conditions climatiques extrêmes ou lors d'une montée rapide en température.

Ces systèmes nécessitent cependant le fonctionnement en continu de la boucle qui est coûteuse en énergie. L'inconvénient majeur est le poids du système qui ne doit pas être négligé. En outre, ces systèmes ont besoin d'une maintenance plus importante comparativement au système primaire de refroidissement par air de la Figure 5a. Un risque de fuite existe qui, en cas d'accident, peut entraîner de graves conséquences.

Sur certains véhicules, les deux circuits à air et à liquide sont exploités et ils commutent dynamiquement entre eux, utilisant notamment le refroidisseur d'air pour le fonctionnement standard et le refroidisseur liquide uniquement pour les charges thermiques de pointe ou les températures ambiantes élevées. De tels systèmes sont utilisés entre autres dans la gamme des véhicules Chevrolet Volt et Tesla Motors.

Par ailleurs, un autre système a été envisagé par certains constructeurs, qui consiste à intégrer 2 évaporateurs dans un même système dont l'un est dédié à la climatisation de l'habitacle et l'autre au refroidissement de la batterie via un évaporateur directement accolé au pack, comme illustré sur la Figure 7.



*Figure 7 – Système intégrant deux évaporateurs pour la climatisation de l'habitacle et le refroidissement de la batterie*

Cette configuration a l'avantage d'alléger le poids du système et d'être plus compacte qu'un système liquide conventionnel. Malheureusement, assembler plusieurs évaporateurs au sein d'un seul et même circuit nécessite une conception très soignée des composants du système. En outre, si un réchauffement de la batterie est nécessaire, une plaque électrique ajoutée au système se met en route. Cette configuration a été introduite pour la première fois dans le modèle hybride de Mercedes Benz S400 en 2009. Elle est actuellement utilisée dans plusieurs modèles HEV et BEV comme la BMW i3 ou la BMW Active Hybrid 7 [7].

Néanmoins, en raison des profils de charge thermiques très différents entre les refroidissements de l'habitacle et de la batterie électrique, un conflit d'objectifs peut apparaître lors du fonctionnement. Si la demande en puissance entre la batterie et l'habitacle s'oppose, pour des raisons de sécurité, le circuit de refroidissement de la batterie sera toujours prioritaire. En général, ces systèmes sont compatibles avec tous les réfrigérants automobiles tels que le R134a, R744 et R1234yf. Mais, étant donné que le R134a a été interdit par l'Union européenne pour les voitures neuves et que le R1234yf est hautement inflammable, les développements futurs tendent à faire du fluide R744 (CO<sub>2</sub>), le réfrigérant de prédilection car considéré comme très écologique (Parlement et Union, 2006). Rajoutons que les systèmes basés sur l'utilisation du réfrigérant R744 peuvent également fonctionner en mode pompe à chaleur pour réchauffer la batterie, ce qui constitue un net avantage [8], [9].

### 2.4.3 Régulation thermique par thermoélectricité

Tous les systèmes de gestion thermique présentés jusqu'à maintenant utilisent des boucles de circulation fluide. Cependant, la régulation thermique de la batterie peut également s'effectuer par l'utilisation de modules thermoélectriques qui sont directement ou indirectement reliés aux cellules de la batterie. Ces modules Peltier ont une taille compacte, un poids modéré et ont l'avantage de ne pas faire intervenir de milieux liquides dans leur conception. Par conséquent, ils n'ont pratiquement pas besoin d'entretien et sont de haute longévité. En outre, un élément peut être utilisé aussi bien pour le refroidissement que le chauffage, en basculant facilement d'un mode à l'autre par inversion de la polarité de la tension d'alimentation.

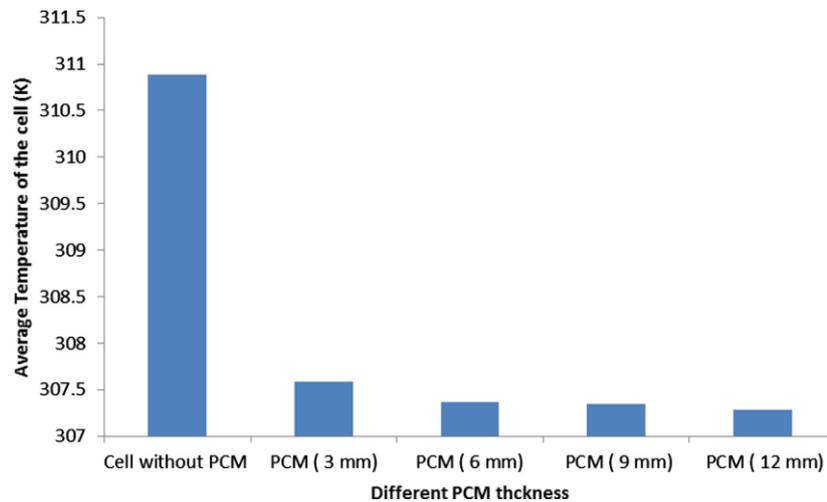
La différence de température est contrôlée par la tension appliquée aux cellules. Ce système présente également l'avantage d'être totalement autonome du véhicule, à l'exception de la connexion électrique. Il est notamment bien adapté au concept du remplacement automatisé des batteries. Le principal inconvénient de cette technologie est le faible rendement du procédé qui limite les applications réalistes sur la batterie.

Parmi tous les dispositifs présentés jusqu'ici, un se démarque nettement des autres dans son utilisation : il s'agit de la pompe à chaleur ou de ses systèmes équivalents qui ont l'avantage d'être à la fois performant et efficace. Cependant, ces systèmes sont très énergivores, ce qui réduit considérablement l'autonomie du véhicule. Ils ont de surcroît un coût d'achat important et constituent souvent un poids non négligeable.

### 2.4.4 Régulation thermique par MCPs

Devant la nécessité de refroidir la batterie électrique, l'utilisation de matériaux à changement de phase peut représenter à ce titre une alternative qui pourrait être moins coûteuse et plus ergonomique que les différents systèmes précédemment évoqués.

Ceux qui font partie des premiers à avoir étudié le MCP comme régulateur thermique de la batterie sont [Al-Hallaj et Selman \[10\]](#) en 2000. Ils ont effectué une simulation numérique qui analyse le comportement thermique des modules d'une batterie enveloppés par du MCP. Ils en ont conclu que la présence de MCP permettait d'obtenir une meilleure homogénéité de la température au sein du système. De plus, d'autres auteurs comme [Sabbah et al. \[11\]](#) ont comparé des systèmes de refroidissement par air avec des systèmes thermiques utilisant des MCPs. Ils ont découvert que ces derniers étaient plus performants dans des conditions extrêmes mais avaient des performances similaires dans des conditions normales. En vue d'améliorer la stabilisation thermique des modules, [N. Javani et al. \[12\]](#) ont proposé d'optimiser la quantité de MCPs à placer autour des cellules de la batterie. Pour cela, ils ont réalisé une étude numérique qui présente les profils de température des cellules en présence de MCP d'épaisseur différente. Le matériau utilisé dans leur étude est du n-Octadécane dont la température de fusion est comprise entre 28 et 30°C et ses différentes épaisseurs sont respectivement 3, 6, 9 et 12 mm. La Figure 8 illustre la température moyenne de la cellule en fonction de l'épaisseur du MCP qui l'entoure après 20 mn de charge.



*Figure 8 – Température moyenne de la cellule en présence de MCP de différentes épaisseurs après 20 mn de charge [12]*

On remarque qu’une épaisseur de MCP de 12 mm diminue la température de la cellule de 3K comparativement à une cellule sans MCP. Leur étude montre également que la température de la batterie est plus uniforme avec la présence de MCP et que la température maximale de la cellule diminue à mesure que l’épaisseur du MCP augmente.

Néanmoins, l’utilisation seule du MCP en tant que système passif souffre de régénération puisque dans le cas de fortes puissances, le matériau se retrouve à l’état liquide et n’est plus capable de stabiliser la température du système. Il convient donc de restaurer son état solide. Une des principales solutions est de coupler le MCP avec un autre système de refroidissement.

C’est ce que font Hémary et al. [13] en développant et en étudiant un dispositif semi-passif utilisant du MCP, combiné à un système de refroidissement par eau qui vise à le régénérer. Ce dispositif est constitué de canettes en aluminium contenant les cellules de la batterie et sont en contact avec deux plaques de cuivre dans lesquelles circule de l’eau. Le MCP utilisé est de la cire de paraffine (Rubitherm RT 28) et se trouve à l’intérieur des canettes entre les cellules. Le système de refroidissement par eau permet d’évacuer la chaleur après la fusion du MCP lors de la charge électrique de la batterie. En effet, la charge génère parfois des pics de puissance et pour pallier cette difficulté le système de refroidissement se met en marche afin de solidifier rapidement le MCP. Ce dispositif améliore grandement l’uniformité de la température pendant le changement d’état, sans qu’aucune des zones ne soit significativement plus chaude qu’une autre, comme en témoigne la Figure 9. Les cellules blanches signalent des capteurs défectueux.

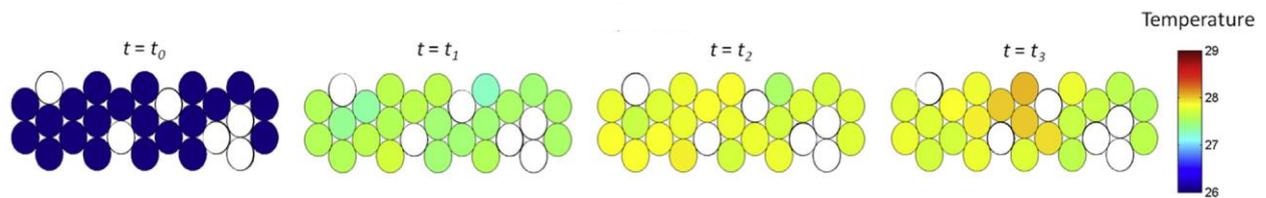


Figure 9 – Champs de température de modules d'une batterie en fonction du temps où  $t_0=0s$ ,  $t_1=1560s$ ,  $t_2=3125s$  et  $t_3=4685s$  [13]

Dans l'optique de stabiliser thermiquement les cellules de la batterie, 3 critères sont particulièrement importants :

- 1) La température de changement de phase du MCP doit correspondre à la température de fonctionnement optimal du système ;
- 2) La chaleur latente doit être suffisamment élevée pour pouvoir stocker toute la chaleur libérée par le système ;
- 3) Et la conductivité thermique doit être assez grande pour être capable de transférer rapidement l'énergie aussi bien pour la stocker que pour l'évacuer.

Généralement la conductivité thermique des MCPs est faible mais elle peut être améliorée par l'ajout de matériaux à haute conductivité. Ces matériaux sont principalement des métaux ou des matières à base de carbone. Différents auteurs ont d'ailleurs exploité cette technique pour optimiser la gestion thermique de leur batterie. Ils ont par exemple utilisé des mousses métalliques [14], du graphite [15] ou encore des nanotubes de carbones [16].

Plusieurs études ont été publiées, ces dernières années, sur le développement de MCP pour la régulation thermique des batteries. L'article de synthèse bibliographique publié par l'équipe du laboratoire PERSEE [17], partenaire du projet, relate bien les différents systèmes et les solutions proposées pour améliorer l'efficacité des MCPs dans ces systèmes. Ils soulignent notamment le fort potentiel de tels systèmes [18]–[21].

### 3 Positionnement et objectifs

L'étude vise à apporter des solutions qui répondent aux enjeux du chauffage de l'habitacle et de la régulation thermique de la batterie, en associant économie d'énergie, solution durable, faible coût et efficacité.

Dans ce contexte, l'idée générale de notre recherche réside principalement dans l'utilisation de matériaux à changement de phase (MCPs) dont l'avantage est d'emmagasiner de grandes quantités de chaleur sous de faibles volumes pendant leur transition de phase. Le MCP de type solide-liquide constituera le socle de notre étude sur lequel nous allons travailler.

### **3.1 Solution : le Matériau à changement de phase (MCP)**

L'utilisation des MCPs de type solide-liquide sera exploitée suivant deux optiques bien différentes. D'une part, dans le rôle de régulateur thermique pour la batterie électrique, afin de maintenir le module à une température constante et d'éviter les surchauffes. D'autre part, dans la fonction de stockage d'énergie thermique en vue d'une utilisation pour le chauffage de l'habitacle.

#### **3.1.1 MCP en tant que régulateur thermique**

Un MCP à bas point de fusion sera proposé pour réguler la batterie électrique autour de 27°C qui correspond à la plage de température de fonctionnement optimal (cf. Tableau 1). Pour résumer, lors de la charge électrique du véhicule, tout excès de chaleur va être absorbé par le MCP. Celui-ci va maintenir la batterie électrique à une température quasi-constante, proche de sa température de transition de phase. La chaleur sera ensuite restituée lorsque la température de l'environnement deviendra inférieure à la température de transition du MCP. Le MCP permettra ainsi d'écarter les pics de température et de retarder l'échauffement pour de faibles puissances. L'atout du MCP est de pouvoir stabiliser la température de la batterie électrique au voisinage de la température de changement de phase. En revanche, comme cela a été précisé précédemment, il ne peut être utilisé seul car il n'a pas la capacité de réguler les fortes puissances comme celles d'une voiture. En effet, une fois le MCP fondu il convient de le refroidir car la convection naturelle et/ou la conduction ne permettent pas d'assurer un refroidissement suffisant.

Deux voies de recherche sont alors envisagées pour lever le verrou lié à la stabilisation thermique de la batterie électrique. La première est de concevoir un système utilisant un MCP associé à un des 3 dispositifs de refroidissement (air, fluide, thermoélectricité) qui permet une gestion optimale de la température, tout en assurant une consommation énergétique faible. La seconde est la mise au point d'un matériau à changement de phase d'origine végétale et à grande capacité de stockage afin d'être le plus performant possible et de rester dans l'esprit écologique de ces véhicules. Dans le cadre du projet VEGETO, la deuxième voie de recherche sera envisagée. Elle sera étudiée par les autres partenaires du projet.

#### **3.1.2 MCP en tant que stockeur thermique**

En vue de maintenir l'autonomie du véhicule et d'assurer le confort thermique dans l'habitacle, une des solutions envisagée dans notre étude est d'installer une batterie thermique, en parallèle de la batterie électrique, qui constituerait le réservoir de chaleur dédié au chauffage de l'habitacle.

Un MCP à haut point de fusion (70°C) sera confiné dans ce réservoir et représentera l'élément central de ce système. Ce MCP va permettre grâce à sa chaleur latente, de stocker de grandes quantités d'énergie et de stabiliser la batterie thermique à un niveau de température quasi-constant. Le passage d'un fluide caloporteur assurera le stockage/déstockage thermique de la batterie. La chaleur totale emmagasinée dans cette

batterie dépendra de la densité d'énergie que le MCP est capable de stocker, autrement dit de sa chaleur latente.

Ce système thermique permettra ainsi de maintenir l'autonomie du véhicule en période hivernale puisqu'il ne puiserait pas dans la batterie électrique. Le fonctionnement de la batterie thermique est détaillé au paragraphe 5.2.

Notre recherche visera à concevoir un prototype de batterie thermique constitué de particules de MCPs et d'évaluer son comportement dynamique et thermique. Ces études représenteront l'essentiel de nos travaux de thèse.

### **3.2 Objectifs scientifiques**

Dans le cadre du projet VEGETO, l'un des objectifs scientifiques majeurs est de développer des MCPs à base de cire végétale. Ces matériaux devront être ininflammables. Pour ce faire, deux grandes voies techniques sont envisagées :

- La première consiste à utiliser un support léger de type cellulose ou PVC qui servirait de réceptacle sphérique au MCP. Celui-ci serait introduit à chaud, sous forme liquide, par injection pour ensuite subir un enrobage qui le rendrait totalement ininflammable. Le composite obtenu contiendrait plus de 90% d'actifs avec une capacité en chaleur latente élevée.
- La seconde consiste à développer un MCP ne nécessitant aucun enrobage. Le concept de ces nouveaux MCPs repose sur un assemblage intime de produits purs à changement de phase mélangé à une matrice polymère. Le caractère ininflammable sera apporté, soit par l'ajout de charges minérales dans le mélange, soit par une étape d'enrobage en utilisant un mélangeur à cuve rotative. Le matériau final aura comme propriété de conserver un aspect solide quel que soit le niveau de température.

La société MCI Technologies, partenaire du projet, aura pour charge de développer ces matériaux MCPs et nous aurons pour mission de les étudier et de les exploiter.

## **4 Matériaux à changement de phase**

### **4.1 Classification des MCPs**

Les MCPs de type solide/liquide auxquels nous nous intéressons dans ce chapitre peuvent se classer selon 3 catégories : organiques, inorganiques et eutectiques.

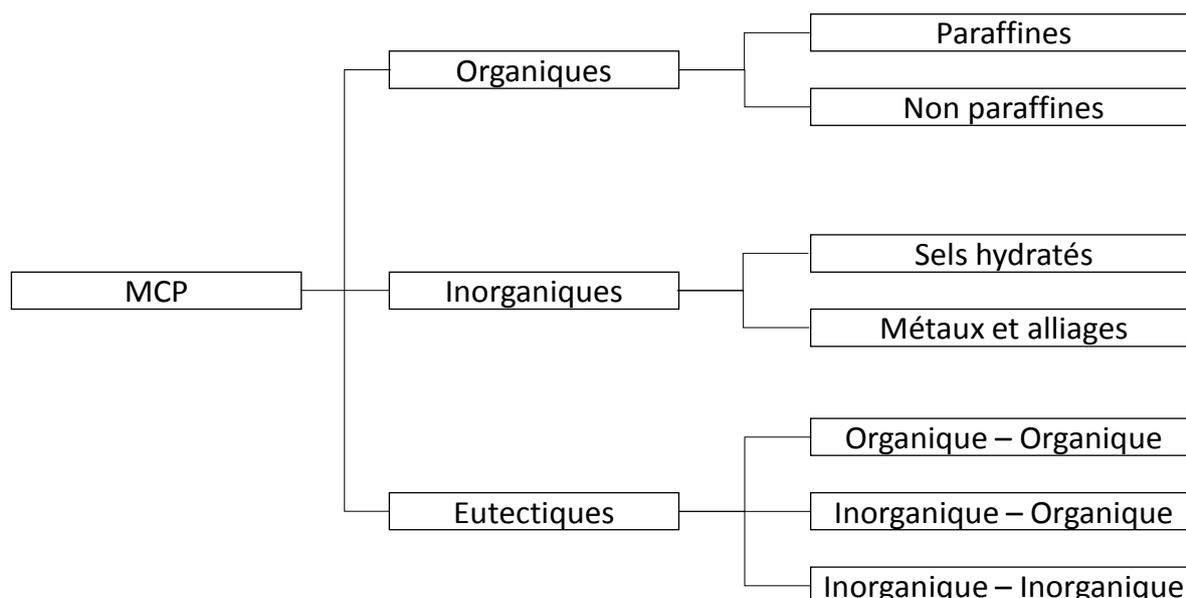


Figure 10 – Classification des MCPs liquide-solide

#### 4.1.1 Organique

Les MCPs organiques, qui se distinguent par la présence de chaînes carbonées dans leur constitution, se divisent en deux classes selon leur nature : paraffines et non-paraffines.

Les paraffines sont des produits issus du raffinage du pétrole. Etant des éléments indésirables de l'industrie pétrolière, elles ont un coût d'achat faible. Les paraffines sont des alcanes dont la formule brute est  $C_nH_{2n+2}$ . Les non-paraffines regroupent les acides gras, les esters, les alcools et les glycols. Elles présentent l'inconvénient d'avoir parfois un niveau de toxicité élevé. Le Tableau 2 résume les avantages et les inconvénients de l'ensemble des MCPs organiques :

Avantages	Inconvénients
<ul style="list-style-type: none"> <li>- Chimiquement stable</li> <li>- Non corrosif</li> <li>- Chaleur latente élevée entre 150 et 300J/g</li> <li>- T°C de fusion entre 0°C et 150°C</li> <li>- Peu ou pas de surfusion</li> <li>- Coût faible</li> <li>- Facilement disponible</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Conductivité thermique faible (0,2W/m.K)</li> <li>- Dilatation volumique élevée (<math>\approx 20\%</math>)</li> <li>- Inflammable</li> </ul>

Tableau 2 - Avantages/Inconvénients des MCPs organiques

### 4.1.2 Inorganique

L'eau, les sels hydratés et les alliages de métaux représentent la grande majorité des MCPs inorganiques. Les sels hydratés sont généralement les plus utilisés en raison de leur température de fusion compris entre 14 et 117°C. Ils ont de plus l'avantage de pouvoir stocker une grande quantité de chaleur latente (jusqu'à 300J/g).

Le Tableau 3 résume les avantages et les inconvénients de l'ensemble des MCPs inorganiques :

Avantages	Inconvénients
<ul style="list-style-type: none"> <li>- Ininflammable</li> <li>- Conductivité thermique acceptable (0,5W/m.K)</li> <li>- Chaleur latente élevée entre 150 et 300J/g</li> <li>- T°C de fusion entre -100°C et 1000°C</li> <li>- Coût faible</li> <li>- Facilement disponible</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Corrosif</li> <li>- Surfusion parfois importante</li> </ul>

*Tableau 3 - Avantages/Inconvénients des MCPs inorganiques*

### 4.1.3 Eutectique

Les eutectiques sont des mélanges de MCPs purs (organiques ou/et inorganiques). Les proportions de chaque composant sont mûrement étudiées afin d'obtenir la température de fusion souhaitée. D'ailleurs, celle-ci est pour la plupart très supérieure à 80°C. Généralement, les eutectiques organiques ont des chaleurs latentes plus élevées et des températures de fusion plus faibles que les eutectiques inorganiques. Le Tableau 4 résume les avantages et les inconvénients des MCPs eutectiques :

Avantages	Inconvénients
<ul style="list-style-type: none"> <li>- Plage de fusion étroite similaire aux MCPs purs</li> <li>- T°C de fusion précise</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Peu de données disponibles sur leurs caractéristiques thermiques</li> <li>- Peu d'applications industrielles</li> </ul>

*Tableau 4 - Avantages/Inconvénients des MCPs eutectiques*

## 4.2 Critères de choix

En fonction de l'utilisation que l'on va faire du MCP, il existe plusieurs critères à prendre en compte pour faire le bon choix d'un matériau. Ceux-ci sont résumés dans le Tableau 5.

<b>Critères</b>	
Thermiques	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Température de changement de phase</li> <li>- Chaleur latente élevée</li> <li>- Conductivité thermique acceptable</li> </ul>
Physico-chimiques	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Stabilité chimique</li> <li>- Dilatation volumique faible</li> <li>- Surfusion réduite</li> <li>- Masse volumique élevée</li> <li>- Compatibilité avec le conteneur</li> </ul>
Economiques	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Coût faible</li> <li>- Facilement disponible</li> </ul>

*Tableau 5 - Critères pour faire le choix d'un MCP approprié*

La Figure 11 regroupe les différentes familles de MCPs en fonction de leurs plages de température de changement d'état et de chaleur latente respectives. On note facilement que la température de fusion des MCPs est d'autant plus grande que leur chaleur latente est élevée.

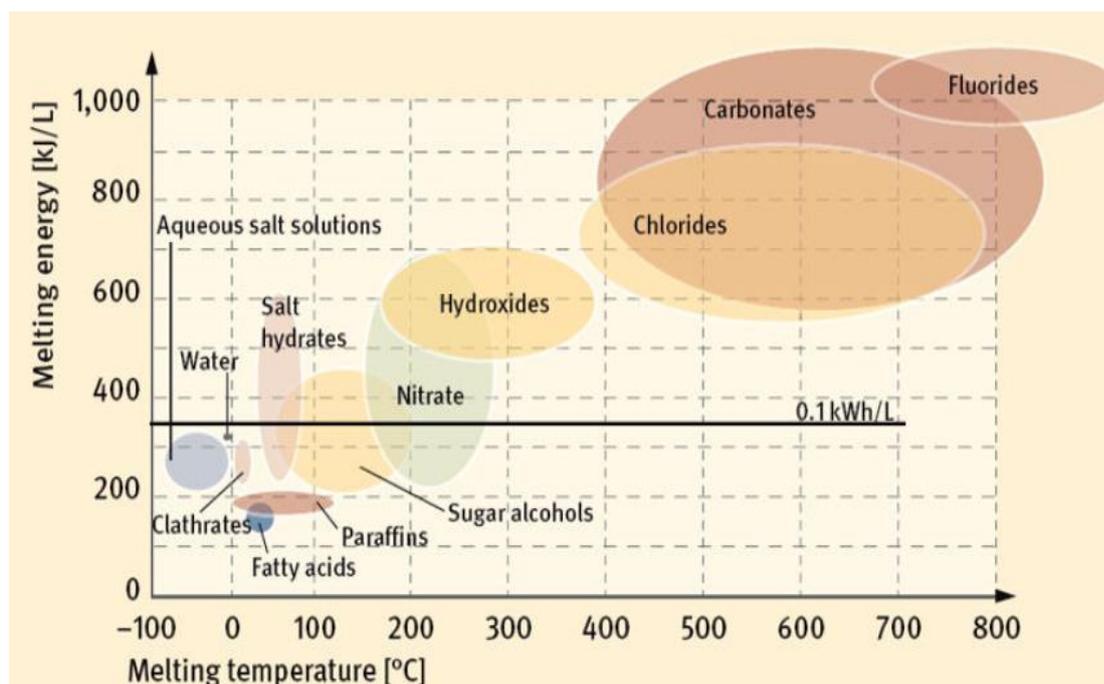


Figure 11 - Chaleur latente des familles de MCPs en fonction de leur température de fusion

Dans le cadre de notre projet, les MCPs seront choisis en priorité en fonction de leur température de changement de phase et de leur chaleur latente qui conditionnent la capacité de stockage du système.

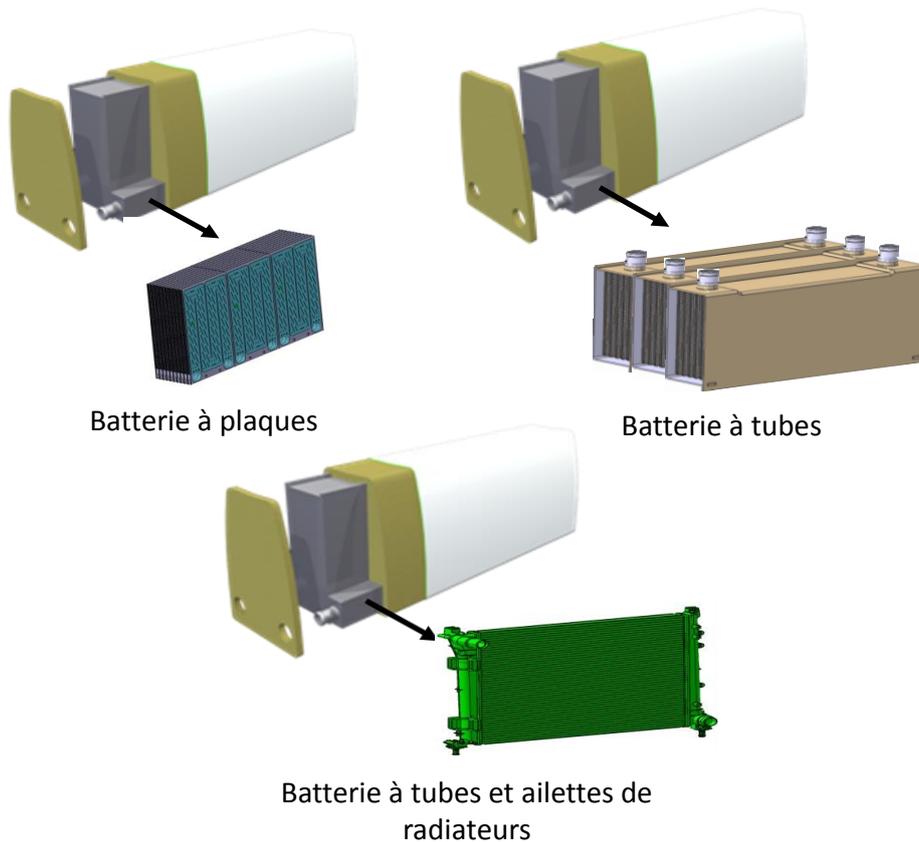
Pour la batterie qui doit être maintenue autour de 25°C, le MCP le plus adapté serait une paraffine, un acide gras ou un eutectique. La paraffine devra cependant être exclue afin de respecter l'un des objectifs du projet qui est d'utiliser du MCP d'origine végétale. Pour le confort thermique dans l'habitacle, un MCP à haut point de fusion (70°C) sera recherché.

## 5 Chauffage de l'habitacle par une batterie thermique à base de MCP

La batterie thermique est une unité de stockage contenant une quantité de MCP capable d'échanger de la chaleur au passage d'un fluide caloporteur. Ce système a été exploité dans beaucoup d'applications industrielles notamment dans le secteur du bâtiment et tout récemment dans le secteur automobile.

### 5.1 Echangeur-stockeur

L'entreprise Valeo a déjà développé quelques types de batteries thermiques. Ces systèmes, représentés sur la Figure 12, sont composés d'échangeurs eau/huile ou eau/air, dont la partie parcourue normalement par l'air ou l'huile a été rempli de MCP. On les appelle également échangeur-stockeur car ils ont la double fonction d'échanger (absorber/restituer) et de stocker l'énergie thermique.



*Figure 12 – Représentation des batteries thermiques existantes (source Valeo)*

Pour des raisons de confidentialité, les études menées sur ces batteries n’ont pas été publiées mais les résultats (en interne) ont montré que ces batteries pouvaient être optimisées. En effet, en supprimant les parois en aluminium qui maintiennent le MCP dans la batterie, le volume pouvant accueillir du MCP serait plus grand. Des calculs ont montré qu’à iso-volume, la capacité de stockage d’énergie serait supérieure de 15 % par rapport à la capacité actuelle.

Pour atteindre ce chiffre, 3 voies sont envisagées :

- Développer une mini-encapsulation du MCP adaptée aux températures de fonctionnement et compatible avec la nature du liquide de refroidissement.
- Améliorer la capacité de stockage du MCP
- Développer une paroi composite super-isolante pour conserver l’énergie emmagasinée

## **5.2 Batterie thermique à lit fixe**

La solution que nous proposons pour le chauffage de l’habitacle est de développer une batterie thermique composée d’un lit fixe de particules de MCPs. Si ce procédé a déjà été étudié et utilisé dans un grand nombre d’applications industrielles, il n’a jamais été exploité dans le secteur automobile.

La batterie thermique constituera l'accumulateur de chaleur au sein de notre véhicule permettant d'assurer le confort thermique dans l'habitacle. Elle sera chargée en particules de MCPs de tailles millimétriques et sera intégrée dans un circuit fermé dans lequel circulera un fluide caloporteur (cf. Figure 13).

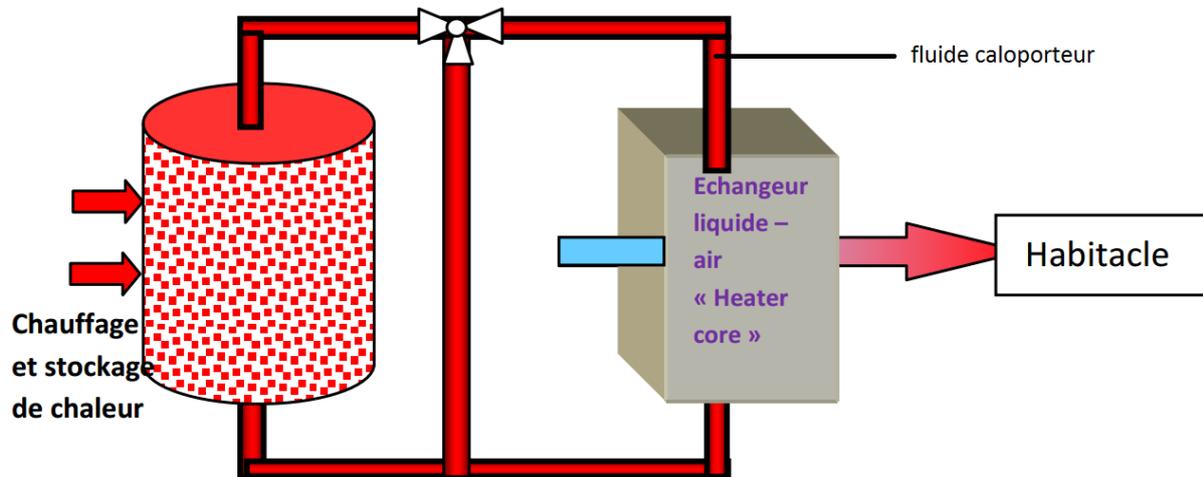


Figure 13 – Schéma de principe d'un circuit de chauffage intégrant une batterie thermique

La charge thermique (ou la phase de stockage) de la batterie s'effectuera lorsque le véhicule sera éteint et en cours de chargement électrique. Le fluide caloporteur récupèrera la chaleur générée par une résistance électrique pour la transférer au lit de particules par convection.

La décharge thermique s'opérera pendant l'utilisation du véhicule. Le fluide caloporteur récupèrera la chaleur emmagasinée dans la batterie thermique puis la libèrera à un échangeur liquide-air. Celui-ci réchauffera l'air insufflé dans l'habitacle provenant de l'extérieur. La Figure 14 illustre le fonctionnement du système de charge/décharge de l'unité de stockage au sein du véhicule.

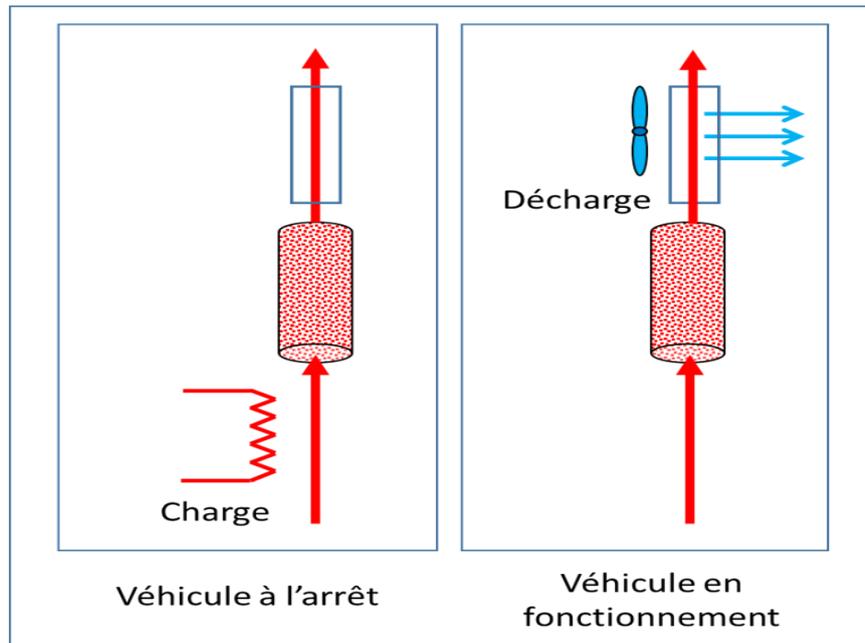


Figure 14 – Principe de fonctionnement du stockage/déstockage

La batterie électrique ne servira qu'au déplacement du véhicule même si une partie de l'énergie quasi-négligeable sera nécessaire pour la circulation du fluide au sein du circuit. Par conséquent, l'autonomie du véhicule ne sera pas pénalisée.

Comparativement aux échangeurs-stockeurs, le lit fixe de particules est plus performant notamment en termes de transfert thermique et de capacité de stockage. Listons les principales caractéristiques de ce système :

- 1) La taille de la particule du MCP permet d'avoir un rapport surface/volume élevé ce qui permet d'optimiser les échanges thermiques et d'accroître la capacité de stockage
- 2) La taille de la particule permet également d'augmenter la compacité de la batterie
- 3) La forme sphérique des particules augmente les surfaces d'échange permettant ainsi d'intensifier les transferts thermiques
- 4) La configuration du lit permet d'uniformiser la distribution de la température au passage du fluide caloporteur
- 5) La cinétique de charge/décharge thermique est optimisée
- 6) L'encapsulation du MCP empêche les fuites
- 7) La forme cylindrique de la batterie permet de réduire les pertes thermiques

Par ailleurs, dans la littérature une multitude de batteries thermiques à lit fixe de particules de MCPs ont été développées et étudiées pour différentes applications. Dans le

secteur du bâtiment, on utilise des systèmes à base de MCP pour assurer un meilleur confort pour les habitants. Par exemple, [Arkar et Medev \[22\]](#) ont développé un dispositif de refroidissement naturel pour un immeuble à faible consommation d'énergie en utilisant un système de ventilation mécanique composé de deux batteries thermiques, l'une pour le refroidissement de l'air approvisionné (cf. Figure 15) et l'autre pour le refroidissement de l'air intérieur de recirculation. Ces deux systèmes contiennent des sphères de MCP encapsulées (paraffine RT20).

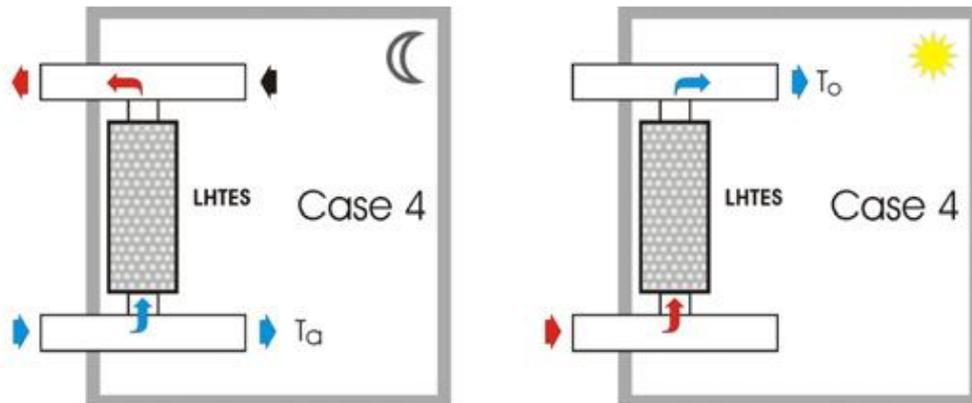


Figure 15 – Système de refroidissement de l'air approvisionné ([Arkar et Medved \[22\]](#))

Afin d'alimenter en eau chaude les sanitaires, on peut également utiliser des grandes cuves remplies de MCPs qui jouent le rôle de stockeur de chaleur. Ce type de système a été développé par [Bédécarrats et al. \[23\]](#) qui présentent l'étude expérimentale des performances d'une batterie de hauteur 1.4 m et composé de capsules de MCPs de diamètre 8 cm.

Les centrales solaires exploitent aussi ce procédé soit en restituant la chaleur stockée soit en la transformant en énergie électrique via des turbines. [Ma et al. \[24\]](#) ont développé un système de stockage thermique utilisant des particules de MCPs intégré dans une centrale d'énergie solaire. L'énergie thermique récupérée est utilisée pour produire de l'électricité. [Nallusamy et al. \[25\]](#) ont intégré une batterie thermique à un bain de température constante qui est relié à un collecteur solaire.

## 6 Conclusion

Le maintien de l'autonomie est une des grandes problématiques du véhicule électrique car la batterie souffre de consommations considérables qui ne sont pas destinées au roulage. En effet, la gestion thermique de l'habitacle, du moteur et de la batterie électrique demande beaucoup d'énergie électrique qui a un impact direct sur l'autonomie.

En vue d'optimiser l'autonomie du véhicule, l'idée générale de notre étude est de développer et d'utiliser deux types de MCPs. Le premier aura un point de fusion de 27°C et jouera le rôle de régulateur thermique de la batterie afin de la stabiliser dans la plage de température de fonctionnement optimal. Le second aura un point de fusion de 70°C et aura la fonction de stockeur thermique. Il sera introduit dans une batterie thermique à chaleur latente dédiée au chauffage de l'habitacle. Les MCPs seront d'origine végétale et auront une grande capacité de stockage afin d'allier performance et écologie. Grâce à ces deux systèmes de gestion thermique utilisant les MCPs, la batterie électrique ne sera sollicitée que pour la propulsion du véhicule et son autonomie se verra ainsi maintenue.

La batterie thermique sera un lit fixe chargé de particules de MCPs de taille millimétrique. Ce système n'avait jamais été développé auparavant en vue d'une utilisation pour le véhicule électrique. En raison de sa configuration, le lit fixe a l'avantage d'optimiser la capacité de stockage, la dynamique des échanges thermiques et la compacité du système.

L'enjeu de notre recherche est désormais de concevoir et d'évaluer les performances dynamiques et thermiques d'une batterie à lit fixe de particules de MCPs dans l'optique de maximiser sa capacité de stockage et d'améliorer sa cinétique de charge/décharge. Le chapitre suivant vise à établir une relation simple qui décrit le phénomène de solidification du MCP. Pour ce faire, différents matériaux seront développés et caractérisés.

## Bibliographie

- [1] « Une pompe à chaleur “intelligente” pour les voitures électriques », *Automobile Propre*. [En ligne]. Disponible sur: <http://www.automobile-propre.com/brevés/bosch-pompe-chaleur-intelligente-voitures-electriques/>.
- [2] « PSA met des pompes à chaleur dans ses voitures ». [En ligne]. Disponible sur: <http://auto.bfmtv.com/actualite/psa-met-des-pompes-a-chaleur-dans-ses-voitures-977158.html>.
- [3] « Beru développe le chauffage CTP pour les véhicules électriques et hybrides », 13-oct-2009. [En ligne]. Disponible sur: <http://www.decisionatelier.com/Beru-developpe-le-chauffage-CTP>.
- [4] « PTC heater for electric and hybrid vehicles allows for dual temp zones », *eeNews Automotive*, 09-mai-2017. [En ligne]. Disponible sur: <http://www.eenewsautomotive.com/news/ptc-heater-electric-and-hybrid-vehicles-allows-dual-temp-zones>.
- [5] C. Huber et R. Kuhn, « 13 - Thermal management of batteries for electric vehicles », in *Advances in Battery Technologies for Electric Vehicles*, B. Scrosati, J. Garche, et W. Tillmetz, Éd. Woodhead Publishing, 2015, p. 327-358.
- [6] D. Neumeister, A. Wiebelt, et T. Heckenberger, « Systemeinbindung einer Lithium-Ionen-Batterie in Hybrid- und Elektroautos », *Automob. Z. - ATZ*, vol. 112, n° 4, p. 250-255, 2010.
- [7] E. Bauchowitz, H. Graf, F. Kessler, et M. Lichtenberger, « Der Hybridantrieb im BMW Active Hybrid 7 », *ATZ - Automob. Z.*, vol. 112, n° 9, p. 628-637, sept. 2010.
- [8] U. Wehner et J. Ackermann, « New Approaches to the Air Conditioning of Electric Vehicles », *ATZ Worldw. EMagazine*, vol. 113, août 2011.
- [9] J. Ackermann, C. Brinkkötter, et M. Priesel, « Neue Ansätze zur energieeffizienten Klimatisierung von Elektrofahrzeugen », *ATZ - Automob. Z.*, vol. 115, n° 6, p. 480-485, juin 2013.
- [10] S. A. Hallaj et J. R. Selman, « A Novel Thermal Management System for Electric Vehicle Batteries Using Phase-Change Material », *J. Electrochem. Soc.*, vol. 147, n° 9, p. 3231-3236, janv. 2000.
- [11] R. Sabbah, R. Kizilel, J. R. Selman, et S. Al-Hallaj, « Active (air-cooled) vs. passive (phase change material) thermal management of high power lithium-ion packs: Limitation of temperature rise and uniformity of temperature distribution », *J. Power Sources*, vol. 182, n° 2, p. 630-638, août 2008.
- [12] N. Javani, I. Dincer, G. F. Naterer, et B. S. Yilbas, « Heat transfer and thermal management with PCMs in a Li-ion battery cell for electric vehicles », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 72, p. 690-703, mai 2014.
- [13] C.-V. Hémerly, F. Pra, J.-F. Robin, et P. Marty, « Experimental performances of a battery thermal management system using a phase change material », *J. Power Sources*, vol. 270, p. 349-358, déc. 2014.
- [14] W. Q. Li, Z. G. Qu, Y. L. He, et Y. B. Tao, « Experimental study of a passive thermal management system for high-powered lithium ion batteries using porous metal foam saturated with phase change materials », *J. Power Sources*, vol. 255, p. 9-15, juin 2014.
- [15] L. H. Alva S., J. E. González, et N. Dukhan, « Initial Analysis of PCM Integrated Solar Collectors », *J. Sol. Energy Eng.*, vol. 128, n° 2, p. 173-177, déc. 2005.
- [16] M. Malik, I. Dincer, et M. A. Rosen, « Review on use of phase change materials in battery thermal management for electric and hybrid electric vehicles », *Int. J. Energy Res.*, vol. 40, n° 8, p. 1011-1031, juin 2016.

- [17] L. Ianniciello, P. H. Biwolé, et P. Achard, « Electric vehicles batteries thermal management systems employing phase change materials », *J. Power Sources*, vol. 378, p. 383-403, févr. 2018.
- [18] S. A. Khateeb, M. M. Farid, J. R. Selman, et S. Al-Hallaj, « Design and simulation of a lithium-ion battery with a phase change material thermal management system for an electric scooter », *J. Power Sources*, vol. 128, n° 2, p. 292-307, avr. 2004.
- [19] Z. Rao, Q. Wang, et C. Huang, « Investigation of the thermal performance of phase change material/mini-channel coupled battery thermal management system », *Appl. Energy*, vol. 164, p. 659-669, févr. 2016.
- [20] A. Jarrett et I. Y. Kim, « Design optimization of electric vehicle battery cooling plates for thermal performance », *J. Power Sources*, vol. 196, n° 23, p. 10359-10368, déc. 2011.
- [21] F. Samimi, A. Babapoor, M. Azizi, et G. Karimi, « Thermal management analysis of a Li-ion battery cell using phase change material loaded with carbon fibers », *Energy*, vol. 96, p. 355-371, févr. 2016.
- [22] C. Arkar et S. Medved, « Free cooling of a building using PCM heat storage integrated into the ventilation system », *Sol. Energy*, vol. 81, n° 9, p. 1078-1087, sept. 2007.
- [23] J. P. Bédécarrats, J. Castaing-Lasvignottes, F. Strub, et J. P. Dumas, « Study of a phase change energy storage using spherical capsules. Part I: Experimental results », *Energy Convers. Manag.*, vol. 50, n° 10, p. 2527-2536, oct. 2009.
- [24] Z. Ma, G. C. Glatzmaier, et M. Mehos, « Development of Solid Particle Thermal Energy Storage for Concentrating Solar Power Plants that Use Fluidized Bed Technology », *Energy Procedia*, vol. 49, p. 898-907, janv. 2014.
- [25] N. Nallusamy, S. Sampath, et R. Velraj, « Experimental investigation on a combined sensible and latent heat storage system integrated with constant/varying (solar) heat sources », *Renew. Energy*, vol. 32, n° 7, p. 1206-1227, juin 2007.

# **Chapitre II**

## **Approche phénoménologique de la solidification de MCPs**



## Table des matières

1	Introduction.....	45
2	Présentation des MCPs étudiés .....	46
2.1	Protocole de préparation .....	46
2.2	Propriétés thermo-physiques .....	47
3	Propriétés mécaniques .....	49
3.1	Caractérisation rhéologique .....	49
3.1.1	Protocole.....	49
3.1.2	Résultats .....	50
3.2	Caractérisation micro-rhéologique .....	52
3.2.1	Protocole.....	52
3.2.2	Résultats .....	53
4	Modèle phénoménologique.....	55
4.1	Dispositif et protocole expérimental.....	55
4.2	Description du modèle .....	56
4.3	Paramètres du modèle.....	58
4.4	Comparaison avec la solution analytique de Neumann.....	60
5	Conclusion .....	63
	Annexes : Eléments de rhéologie .....	64
	Bibliographie.....	66



## 1 Introduction

Les transferts de chaleur faisant intervenir un changement de phase s'inscrivent dans la classe des problèmes non-linéaires. L'un d'entre eux est la durée de solidification d'un MCP dont la connaissance demande de résoudre un problème à frontière libre, problème dit de Stefan. Cependant, celui-ci n'admet pas de solution analytique lorsque le milieu fusible est de dimension finie. On peut alors proposer diverses méthodes : numériques, empiriques...

Dans le cadre du développement de la future batterie thermique, les particules de MCP seront de taille millimétrique. Il convient, pour différentes conditions de transferts de chaleur fixées, de savoir évaluer la durée du changement de phase de ces particules.

Ce chapitre porte sur la dynamique des transferts à l'échelle d'un MCP de taille macroscopique. Une approche à caractère expérimental a été menée sur plusieurs types de matériaux (paraffines et gel aqueux) en les plaçant dans des conditions aux limites bien définies en vue d'évaluer la durée de solidification d'un MCP. A partir de ces données expérimentales, une approche phénoménologique a été proposée afin d'établir une corrélation reliant la durée d'une phase de solidification aux principaux paramètres physiques intervenant dans la dynamique des transferts de chaleur. Une présentation des matériaux utilisés dans le cadre de cette étude est préalablement exposée.

## 2 Présentation des MCPs étudiés

Le laboratoire MSC possède un savoir-faire sur la mise au point de MCP stabilisé dans une matrice polymère. Ce type de MCP est développé en mélangeant intimement un polymère et un élément à changement de phase à l'état liquide [1].

L'élément à changement de phase choisi dans notre étude peut être de l'eau ou un composé paraffinique ; le polymère utilisé est alors choisi en conséquence, suivant sa solubilité dans le milieu continu dans lequel il sera dispersé.

Les produits à changement de phase considérés dans notre étude sont deux paraffines (Rubitherm et n-Hexadécane) fournies par la société Rubitherm GmbH et de l'eau distillée. La structure polymère utilisée pour les paraffines et pour l'eau sont respectivement du Styrène-Butadiène-Styrène (SBS) et du Phytigel fournies par la société Sigma-Aldrich. Le Tableau 1 présente les différents échantillons développés.

Elément à changement de phase	Matrice polymère	Désignation du MCP
Eau	Phytigel	GG 3
Rubitherm	SBS	RUB 15, RUB 20, RUB 25
n-Hexadécane	SBS	HEX 10

*Tableau 1 – Différents MCPs et leur composition massique en polymère*

L'élément fusible joue le rôle de matériau de stockage thermique alors que le polymère a pour mission de stabiliser le matériau composite final, c'est-à-dire de lui conférer une structure solide quel que soit le niveau de température autour de la température de transition. Le chiffre est relatif à la concentration massique en polymère dans le MCP (par exemple, pour le RUB 15 : le matériau a une concentration massique de 15% en polymère). L'aspect solide est d'autant plus fort que le taux de polymère est important.

### 2.1 Protocole de préparation

Les matériaux composites à base de paraffines ont été préparés en élevant dans un premier temps la température des paraffines à 100°C, tout en les remuant à l'aide d'un agitateur magnétique pendant 1h. Puis, le polymère SBS a été rajouté dans cette solution à la température de 100°C jusqu'à obtenir une solution homogène. Après refroidissement dans une chambre froide, nous obtenons le matériau composite final. Plusieurs échantillons ont été préparés, notés respectivement : RUB 15, RUB 20, RUB 25 et HEX 10.

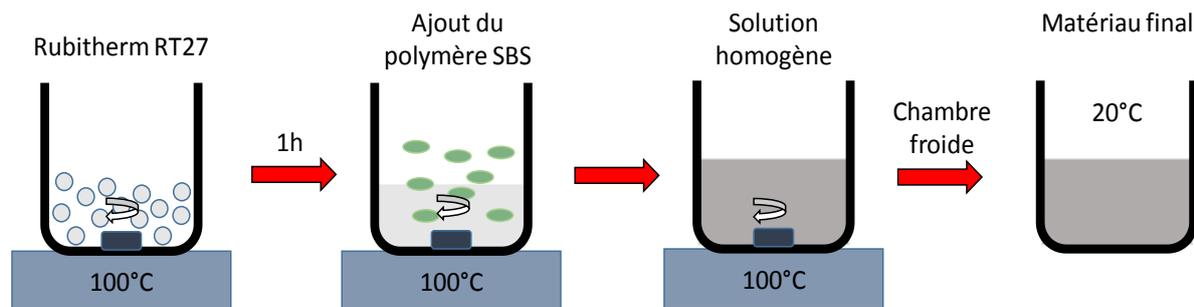


Figure 1 - Protocole de préparation des MCPs à base de Rubitherm RT 27

Pour la préparation du GG 3 qui est une solution aqueuse sous forme de gel, nous avons utilisé du polysaccharide soluble dans l'eau, aussi appelé gomme Gellane, et du citrate de sodium, fournis par la société Sigma-Aldrich. Trois mg de poudre de gomme Gellane ont été ajoutés et mélangés dans 100mL d'une solution de chlorure de calcium  $\text{CaCl}_2$  de concentration massique  $1,1 \times 10^{-2} \text{ g.L}^{-1}$ , porté à 85°C. Pour la rendre homogène, cette solution a été mélangée à l'aide d'un agitateur magnétique pendant 15mn. La préparation a été effectuée à température ambiante.

## 2.2 Propriétés thermo-physiques

Les propriétés thermo-physiques de chacun de ces matériaux ont été mesurées. La masse volumique a été obtenue par pesée à l'aide d'une balance de précision de 0,05 mg. La conductivité thermique des matériaux liquides a été mesurée par un capteur « Hot-disk » et celle des matériaux solides par un conductimètre utilisant une méthode transitoire appelée « tri-couche » [2]. L'écart type relatif dans la mesure des conductivités thermiques des matériaux solides est de 1%. Pour l'estimation des conductivités thermiques des matériaux liquides, les mesures s'étalent entre 0,03 W/m.K et 0,06 W/m.K.

Les propriétés thermo-physiques telles que la température de solidification  $T_s$ , la température de fusion  $T_m$ , la chaleur latente  $L$  et la capacité calorifique  $C_p$  ont été obtenues par calorimétrie via un calorimètre différentiel à balayage (instrument DSC). Le matériau de référence utilisé pour la calibration est de l'Indium et la vitesse de programmation est de 1°C/mn. Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau 2.

Echantillon	$T_s$ (°C)	$T_m$ (°C)	$\rho$ (kg.m <sup>-3</sup> )		$\lambda$ (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )		$C_p$ (kJ.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )		$L$ (kJ.kg <sup>-1</sup> )
			solide	liquide	solide	liquide	solide	liquide	
RUB 15	22,6	27	856,9	776	0,28	0,19	1,98	2,03	127,5
RUB 20	22	27	856,3	790	0,26	0,18	3,9	2,3	100
RUB 25	21,5	27	855,7	805	0,24	0,16	5,8	2,5	80
HEX 10	13,6	18	783	766	0,34	0,14	1,8	2,3	235
GG 3	0,1	0,7	917	1000,4	0,22	0,57	2,02	4,2	333

Tableau 2 - Propriétés thermo-physiques des MCPs développés

Le Tableau 2 indique trois températures de fusion  $T_m$  différentes qui sont respectivement de  $27^\circ\text{C}$  pour les MCPs à base de Rubitherm, de  $18^\circ\text{C}$  pour le MCP à base de n-Hexadécane et de  $0,7^\circ\text{C}$  pour le gel aqueux.

Pour les échantillons RUB, on note qu'une augmentation du taux de polymérisation entraîne une diminution assez importante de la chaleur latente et une réduction de la conductivité thermique. Un taux de polymérisation élevé conduit à une réduction de l'élément fusible ce qui a pour conséquence de diminuer la capacité de stockage. De plus, la polymérisation entraîne une rigidification de la structure du matériau ce qui a pour effet de contraindre l'agitation thermique. Les conductivités thermiques en phase solide sont supérieures à celles en phase liquide. Cette différence est liée à la modification de la structure de la paraffine lors du changement de phase.

A titre d'exemple, la Figure 2 présente les thermogrammes de fusion et solidification du RUB 25 obtenus par calorimétrie différentielle, pour une vitesse programmée de  $1^\circ\text{C}/\text{mn}$ .

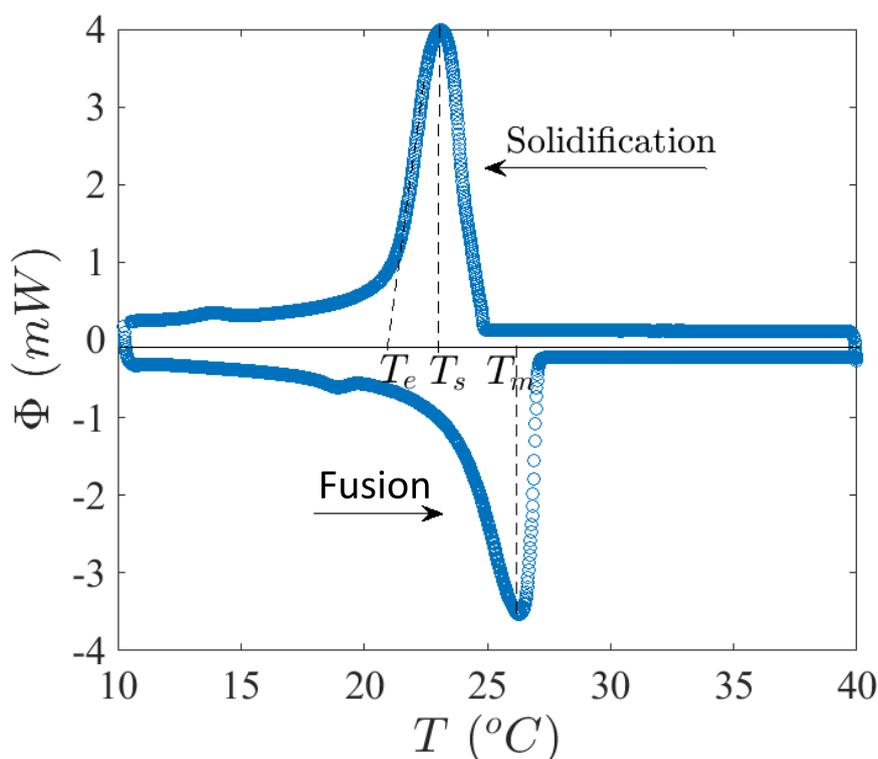


Figure 2 - Thermogrammes de la fusion/solidification du RUB 25

Ce thermogramme montre le décalage existant entre le processus de fusion et de solidification, qui s'explique d'une part par la présence du polymère qui élargit le spectre et d'autre part par la composition de la paraffine qui n'est pas un produit pur. C'est d'ailleurs pourquoi, les températures de solidification  $T_s$  de tous les MCPs étudiés ne sont pas égales à  $T_m$  (cf. Tableau 2). La chaleur latente a été calculée par intégration numérique de l'aire sous la courbe. Les températures  $T_m$ ,  $T_s$  et  $T_e$  correspondent respectivement à la température de fusion, de solidification et de fin de solidification du matériau.

### 3 Propriétés mécaniques

Dans le cadre de ma thèse, il est nécessaire de stabiliser mécaniquement les MCPs aussi bien pour une utilisation liée à la batterie électrique qu'à la batterie thermique. Pour ce faire, il est essentiel de caractériser leurs propriétés mécaniques.

Les propriétés mécaniques des MCPs ont été évaluées grâce à deux techniques : une technique rhéologique classique réalisée au moyen d'un rhéomètre et une technique micro-rhéologique basée sur la diffusion de traceurs browniens.

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés spécifiquement aux MCPs à base de Rubitherm, notés RUB parce qu'ils sont les seuls parmi les matériaux étudiés, à pouvoir jouer le rôle de régulateur thermique de la batterie électrique en raison de leur température de fusion de 27°C, qui coïncide avec la température de fonctionnement optimale de la batterie.

Nous rappellerons dans une première partie les principes généraux de rhéologie puis nous présenterons et analyserons les résultats que nous avons obtenus sur les MCPs étudiés.

#### 3.1 Caractérisation rhéologique

Les MCPs composés d'une matrice polymère sont des matériaux viscoélastiques. Ils possèdent des propriétés mécaniques à la fois élastiques et visqueuses. Pour caractériser ces deux composantes, des tests en analyse oscillatoire appelée également analyse dynamique sont couramment utilisés. Ils consistent à imposer à l'échantillon un cisaillement oscillatoire de fréquence  $f$  donnée. La contrainte et la vitesse de cisaillement évoluent sinusoidalement au cours du temps avec la même fréquence mais présentent un déphasage  $\delta$  l'une par rapport à l'autre.

L'analyse de ces signaux de contrainte et de vitesse de cisaillement permet de définir un certain nombre de grandeurs fondamentales en rhéologie dynamique comme le module de conservation (ou élastique)  $G'$  et le module de perte (ou visqueux)  $G''$ . D'ailleurs, ces 2 modules sont liés par le déphasage  $\delta$  à partir de la relation :

$$\tan \delta = \frac{G''}{G'} \quad (1)$$

Ce déphasage a une valeur de 0° pour un solide purement élastique ( $G'' = 0$ ) et une valeur de 90° pour un fluide purement visqueux ( $G' = 0$ ). Si  $\delta$  est compris entre 0° et 45°, le matériau est plus élastique que visqueux ; si  $\delta$  est compris entre 45° et 90°, c'est le contraire.

##### 3.1.1 Protocole

Les mesures sont effectuées au moyen d'un rhéomètre Physica MCR 500 (Anton Paar). La géométrie utilisée est une géométrie cône-plan, de diamètre 50mm et d'angle au cône 1°.

Pour connaître l'étendue du domaine linéaire, un test à balayage en contrainte a été réalisé sur chaque échantillon. Une fréquence de 1Hz et une déformation  $\varepsilon$  de 1% imposées à l'échantillon ont été choisies pour l'ensemble des essais de caractérisation en température.

Le module élastique  $G'$  et le module visqueux  $G''$  de chaque échantillon ont été étudiés en imposant des rampes linéaires en température de 1°C/mn sur une plage de température allant de 20°C à 70°C. Le gradient de température était de 1°C/mn pour les mesures de chauffage et de refroidissement.

### 3.1.2 Résultats

La Figure 3 présente le module viscoélastique en fonction de la température pour différents taux de polymérisation de MCPs à base de Rubitherm RT27 (RUB 0, 15, 20 et 25).

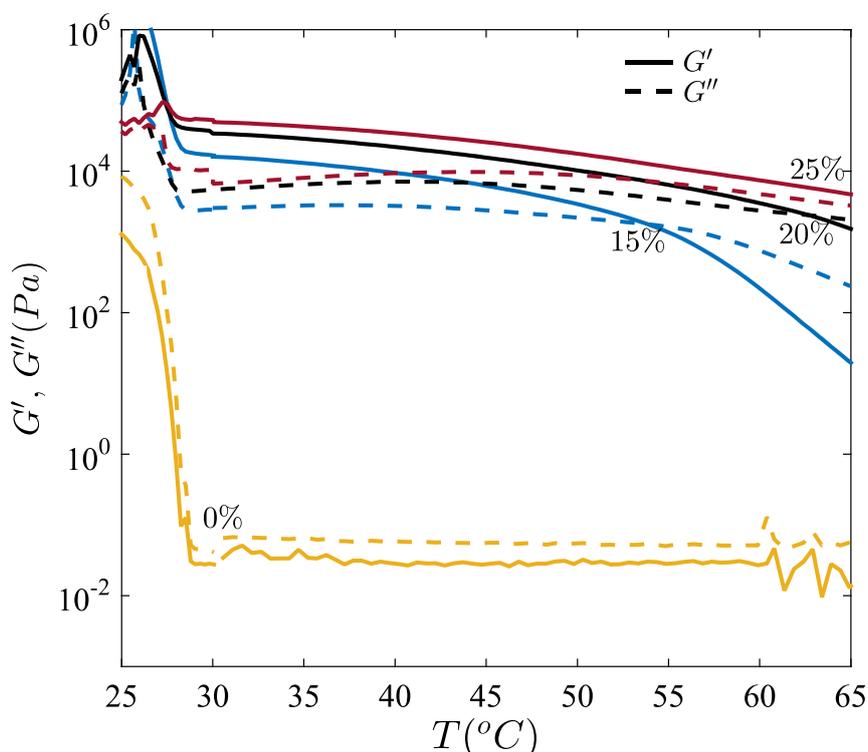


Figure 3 – Module viscoélastique  $G'$  et  $G''$  des échantillons RUB 0, RUB 15, RUB 20, RUB 25 en fonction de la température

Les 4 rhéogrammes montrent de manière significative une variation abrupte des modules élastique  $G'$  et visqueux  $G''$ . Cette variation met en évidence le changement de phase liquide-solide du matériau qui a lieu aux alentours de 27°C.

Au-delà de 27°C, les modules  $G'$  et  $G''$  subissent une décroissance, indiquant que le matériau devient liquide à mesure que la température augmente. On remarque que les courbes de  $G'$  et de  $G''$  se croisent pendant la décroissance. L'intersection s'effectue à la température de transition gel-liquide du matériau, noté  $T_g$ . Cette température indique la limite entre l'aspect gélifiant (solide) et l'aspect liquide du matériau. De ce fait :

- si  $27^{\circ}\text{C} < T^{\circ}\text{C} < T_g$ , alors  $G' > G''$  : le matériau est de structure solide. Il est sous la forme d'un gel
- si  $T^{\circ}\text{C} > T_g$ , alors  $G'' > G'$  : le matériau est de structure liquide.

Au cœur de la matière, cela s'explique par la rupture des liens physiques de la matrice polymère à mesure que la température augmente. La rupture entraîne alors la libération de la paraffine qui était emprisonnée à l'intérieur de cette matrice. Par conséquent, la matrice polymère SBS confère au matériau une structure gélifiante (solidifiante) sur une gamme de température supérieure à  $27^{\circ}\text{C}$ .

Toutefois, la transition gel-liquide n'apparaît pas pour les échantillons RUB 0 et RUB 25 puisqu'il n'y pas d'intersection entre les courbes des modules  $G'$  et  $G''$ . Pour RUB 0, ce constat est évident parce que la paraffine est pure.  $G''$  étant toujours supérieur à  $G'$ , le matériau devient aussitôt liquide à  $27^{\circ}\text{C}$ . Pour RUB 25, la transition gel-liquide existe mais se fait au-delà de  $65^{\circ}\text{C}$ .

La Figure 4 illustre l'évolution de la température de changement de phase liquide-solide  $T_m$  et de la température de transition gel-liquide  $T_g$  pour des MCPs à base de Rubitherm 27 pour différentes concentrations  $\Phi$  de polymère SBS (0 à 30%).

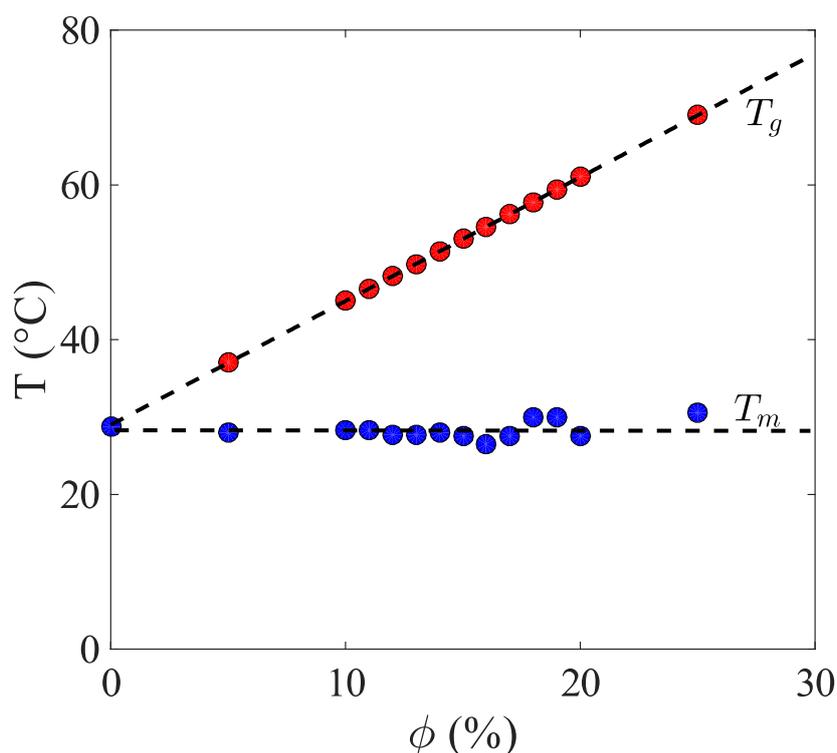


Figure 4 – Température de changement de phase liquide-solide  $T_m$  (bleu) et température de transition gel-solide  $T_g$  (rouge) en fonction du taux de polymérisation  $\Phi$  des MCPs (RUBs)

On s'aperçoit que la température de transition gel-liquide  $T_g$  dépend linéairement du taux de polymérisation des MCPs et plus ce taux augmente, plus la température de transition gel-liquide  $T_g$  est élevée. A titre d'exemple, le RUB 10 a une température de transition gel-liquide  $T_g$  de  $45^{\circ}\text{C}$  pour une température de fusion  $T_m$  de  $27^{\circ}\text{C}$ .

Pour conclure, ces études rhéologiques ont permis d'évaluer la température de transition gel-liquide  $T_g$  du MCP à base de Rubitherm RT 27. Ce critère est fondamental dans notre étude puisqu'il va nous permettre de déterminer la concentration en polymère du matériau à utiliser, l'objectif étant de conserver une structure solide quelle que soit la température de fonctionnement.

Dans le cadre de la régulation thermique de la batterie électrique, les MCPs à base de Rubitherm RT 27 peuvent être utilisés. L'enjeu est de choisir le bon taux de polymérisation du MCP pour éviter les fuites au sein du système, tout en maintenant des propriétés thermo-physiques optimales tels qu'une bonne conductivité et une chaleur latente élevée.

## 3.2 Caractérisation micro-rhéologique

La micro-rhéologie étudie le comportement viscoélastique des matériaux en observant au microscope le mouvement irrégulier et aléatoire de particules dans le milieu, appelé aussi mouvement Brownien. La micro-rhéologie passive est une technique qui permet de calculer les modules viscoélastiques d'un matériau à partir du déplacement quadratique moyen MSD (*Mean-Squared Displacement*) de sondes Browniennes. La trajectoire des sondes micrométriques est mesurée par un logiciel de suivi de particules. A partir de ces trajectoires, on calcule le MSD, puis les modules.

Notre étude vise principalement à étudier la trajectoire au sein des MCPs en fonction du taux de polymérisation. La technique de micro-rhéologie et l'analyse du MSD de sondes Browniennes seront exploitées pour faire des hypothèses sur les modes de transfert thermique existants au sein des matériaux.

### 3.2.1 Protocole

Plusieurs expériences de micro-rhéologie passive ont été effectuées sur des matériaux composites à base de Rubitherm RT 27 avec différentes concentrations de polymère : 0, 1, 2, 4, 6 et 8% (RUB 0-8).

Des traceurs sous forme de particules de bille en latex de  $0.994 \mu\text{m}$  de diamètre ont été incorporés dans les échantillons et leur trajectoire a été enregistrée à l'aide d'une caméra rapide (EoSens Mikroton) filmant à 100 images par seconde. Celle-ci est couplée à un microscope inversé (Leica DM IRB) d'objectif 100x à immersion d'huile, maintenu à  $32^\circ\text{C}$  à l'aide d'un anneau chauffant Biopetechs. La température de l'échantillon est contrôlée à travers l'huile d'immersion en contact avec l'objectif. Pour éviter des interactions entre les billes, nous avons veillé à fabriquer des échantillons suffisamment dilués. Pour une analyse fiable, on s'est également assuré que les billes observées soient éloignées des bords de l'échantillon. Sur le temps d'enregistrement, la sédimentation des billes peut être considérée comme négligeable.

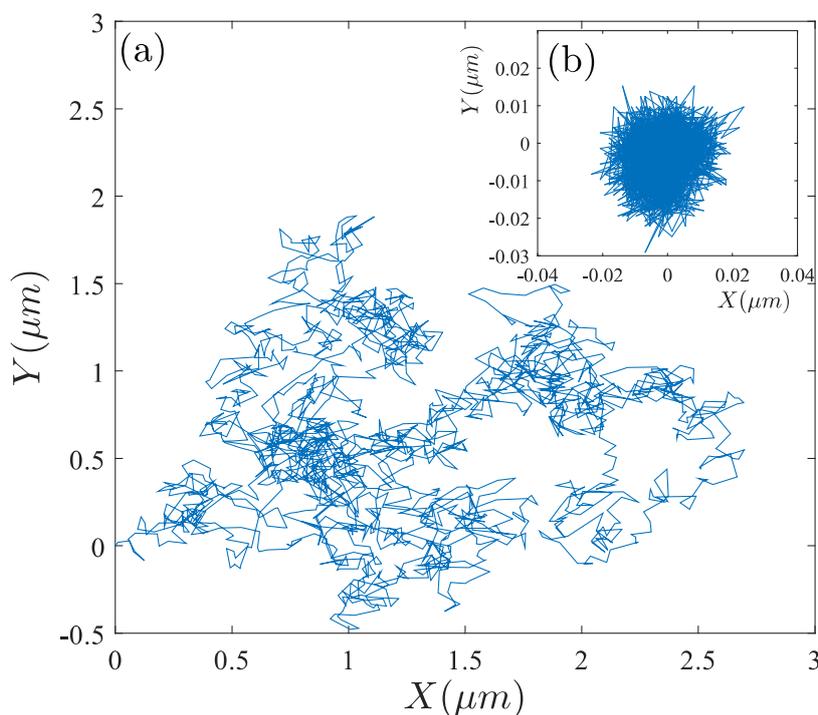
Le logiciel de traitement d'image nous a permis d'observer les positions  $x(t)$  et  $y(t)$  des billes de traceurs autour du plan focal de l'objectif. Le déplacement quadratique moyen MSD moyenné sur le temps  $t'$  dont la formule s'écrit :

$$\Delta r^2(t) = \left\langle [x(t'+t) - x(t')]^2 + [y(t'+t) - y(t')]^2 \right\rangle_{t'} \quad (2)$$

avec  $t$  le temps de parcours ou lag time, a également été calculé pour chaque traceur ainsi que pour des ensembles de plusieurs traceurs.

### 3.2.2 Résultats

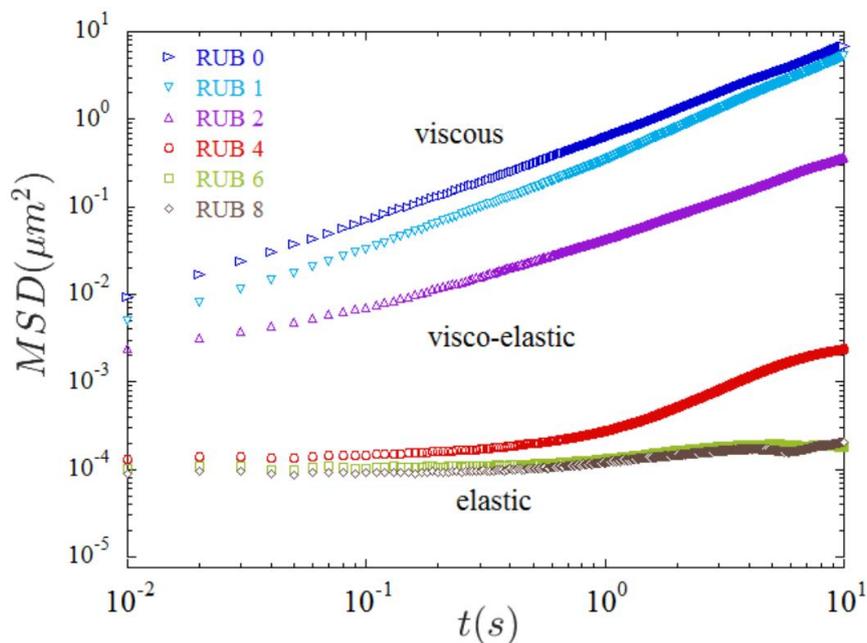
La Figure 5a présente les déplacements à deux dimensions d'un traceur au sein de 2 matériaux : une paraffine pure (RUB 0) et un MCP avec une concentration massique de 8% de polymère (RUB 8). La Figure 5b montre, sur une échelle beaucoup plus réduite, la trajectoire du traceur se trouvant à l'intérieur du RUB 8 qui est imperceptible sur la Figure 5a.



**Figure 5 - (a) Déplacement d'une particule de Latex au sein d'un RUB 0 et d'un RUB 8, à la même échelle. (b) Zoom sur le déplacement d'une particule à l'intérieur du RUB 8.**

Si nous avons décidé de réduire l'échelle d'un facteur 100 pour observer la trajectoire de la particule au sein du RUB 8, c'est parce que celle-ci se déplace dans un espace beaucoup plus restreint comparativement à celle se trouvant au sein de la paraffine pure. La raison vient du fait que dans le RUB 8, la paraffine est emprisonnée dans la matrice polymère ce qui réduit considérablement son espace. Par conséquent, nous pouvons faire l'hypothèse que plus la concentration en polymère est élevée et plus les particules ont tendance à se déplacer dans un espace restreint.

La Figure 6 présente le déplacement quadratique moyen MSD d'un ensemble de traceurs de plusieurs échantillons RUB à différents taux de polymérisation (0 à 8%), sur une échelle de temps logarithmique.



**Figure 6 - Déplacement quadratique moyen d'une particule de Latex (traceur) immergée dans des MCPs à base de Rubitherm RT27 de différentes concentrations (0 à 8%), en fonction du lag time  $t$ .**

Partant d'une paraffine pure sans ajout de polymère (RUB 0) pour laquelle le matériau est un liquide visqueux après 27°C, on remarque que le MCP développe de l'élasticité à mesure que la concentration en polymère augmente. D'ailleurs, c'est la forme d'évolution des courbes de MSD qui renseigne sur le caractère visqueux ou élastique du matériau. En effet, une courbe linéaire indique que le matériau est visqueux alors qu'une courbe en plateau indique que le matériau est élastique. Ainsi, pour une gamme de température allant de 27 à 32°C, on peut considérer les échantillons :

- RUB 0 et RUB 2 : matériaux visqueux
- RUB 4 : matériau viscoélastique
- RUB 6 et 8 : matériaux élastiques

Au-delà d'une concentration de 6% de polymère, on observe que les courbes de MSD sont similaires, dans la limite de la résolution du dispositif. Ce constat est dû à la rigidité du matériau qui rend à peine détectable le mouvement Brownien du traceur lors de l'enregistrement.

Par conséquent, tous les résultats de cette partie viennent asseoir les conclusions obtenues dans la partie macro-rhéologie, à savoir que la polymérisation permet une rigidification du matériau. A cela s'ajoute une hypothèse significative : lorsque le caractère élastique du matériau prédomine, nous pouvons considérer que la convection thermique est inhibée. Ainsi, le transfert thermique au sein du matériau est purement conductif. Ici dans notre étude, pour une température de 32°C, la convection thermique est considérée comme négligée au sein du RUB lorsque le taux de polymérisation est supérieur à 6%.

## 4 Modèle phénoménologique

La durée complète d'un phénomène de solidification s'avère une donnée importante dans de nombreux procédés industriels, notamment dans l'optique d'optimiser un système utilisant des MCPs. Dans le cadre du développement de la batterie thermique, ce critère permettra d'évaluer la cinétique de solidification des MCPs qui composeront le système.

Dans cette partie, on se propose de présenter via une approche phénoménologique, une corrélation permettant d'évaluer la durée complète de solidification d'un échantillon de MCP de taille finie. Une comparaison avec la solution analytique de Neumann est présentée afin de valider l'hypothèse d'un milieu semi-infini dans notre modèle.

### 4.1 Dispositif et protocole expérimental

L'étude du processus de solidification de MCP a été réalisée au moyen du dispositif d'essai schématisé Figure 7. Il est composé d'un échantillon de MCP sous forme d'un parallélépipède rectangle d'épaisseur  $E = 1\text{cm}$  et d'une section de  $0,25\text{ cm}^2$  d'aire, entouré d'une couche isolante de mousse de polyuréthane de  $10\text{cm}$  d'épaisseur. Seule la face avant de  $0,25\text{ cm}^2$  est en contact avec le milieu ambiant. La présence de l'isolant permet de considérer les transferts thermiques unidirectionnels au sein de l'échantillon. Une sonde de température, un thermocouple de type  $K$ , est placée sur la face opposée à celle en contact avec l'air ambiant, au centre de l'échantillon comme indiqué sur la Figure 7.

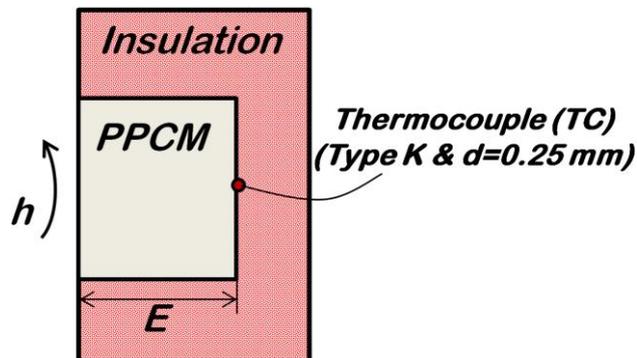


Figure 7 - Schéma du dispositif d'essai

Les essais ont été réalisés en procédant au protocole expérimental suivant. Avant de commencer chaque test, l'échantillon de MCP est maintenu à une température de  $T_i = 32^\circ\text{C}$  dans une chambre climatique. Dès que cette condition est uniformément atteinte dans l'échantillon, le dispositif d'essai est rapidement placé dans une autre enceinte climatique réglée à différentes températures  $T_f$  telles que  $T_f < T_i$ , dans l'optique d'enclencher un processus de solidification au sein du matériau. L'évolution de la température est enregistrée grâce à un collecteur de données Graphtech GL220 avec une acquisition de  $1\text{s}$  d'intervalle. Tous les essais ont été effectués avec des échantillons de  $100\text{g}$ . Plusieurs MCPs ont été expérimentés avec des taux de polymérisation différents (RUB 15, 20 et 25 ; HEX 10 et GG 3). La face en contact avec l'air de l'enceinte climatique est placée, pour l'ensemble des

expériences, dans des conditions de convection naturelle similaires. Chaque essai a été répété deux fois.

## 4.2 Description du modèle

Tous les résultats de nos essais sont présentés en fonction d'une température adimensionnée définie comme suit :

$$\theta = \frac{T - T_f}{T_i - T_f} \quad (3)$$

La Figure 8 présente l'évolution de la température adimensionnée du RUB 25 en fonction du temps pendant une phase de solidification avec comme température de chambre  $T_f = 10^\circ\text{C}$ . On note  $\theta_0$  la température adimensionnée du changement de phase définie comme suit :

$$\theta_0 = \frac{T_s - T_f}{T_i - T_f} \quad (4)$$

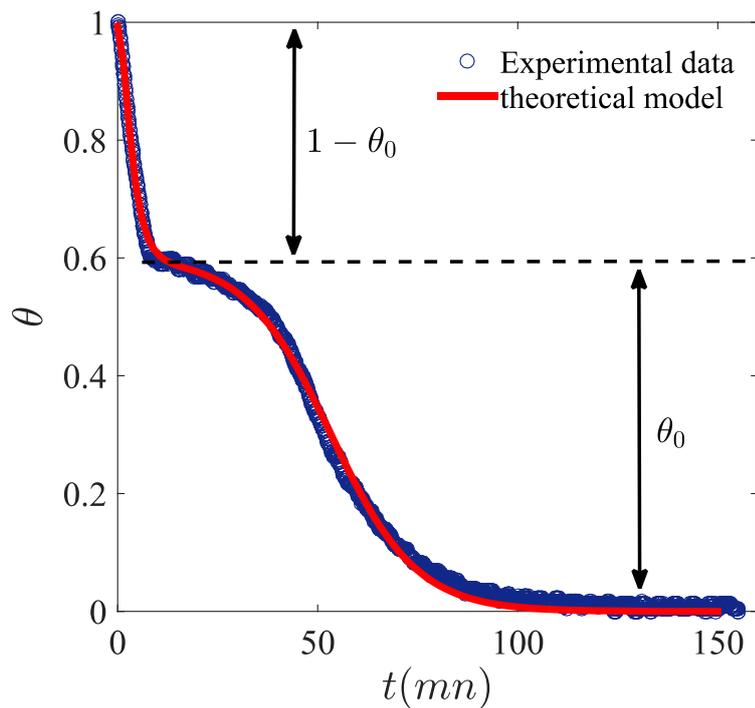


Figure 8 - Thermogramme du RUB 25 en phase de solidification avec  $T_f = 10^\circ\text{C}$

Dans un premier temps, la température décroît fortement sur l'intervalle de température  $1 - \theta_0$ . Puis, elle se stabilise lors du changement de phase du MCP présentant un pseudo-plateau pour de nouveau décroître rapidement sur l'intervalle de température  $\theta_0$ , jusqu'à atteindre la température de consigne imposée par l'enceinte climatique  $T_f$ . Tous les thermogrammes obtenus pour les différents échantillons présentent des courbes similaires à

celle de la Figure 8. Ils se différencient uniquement par la longueur du pseudo-plateau induite par le changement de phase.

La durée de ce pseudo-plateau est d'autant plus grande que la concentration en polymère est forte (échantillons RUB) et que l'écart de température  $\theta_0$  imposé par l'enceinte climatique est faible. Pour un même échantillon, un écart de température  $\theta_0$  plus faible correspond à une température  $T_f$  plus élevée.

A titre d'exemple, la Figure 9 présente l'évolution de la température  $\theta$  pour différentes valeurs de  $\theta_0$  correspondant à différentes températures de chambre  $T_f$ .

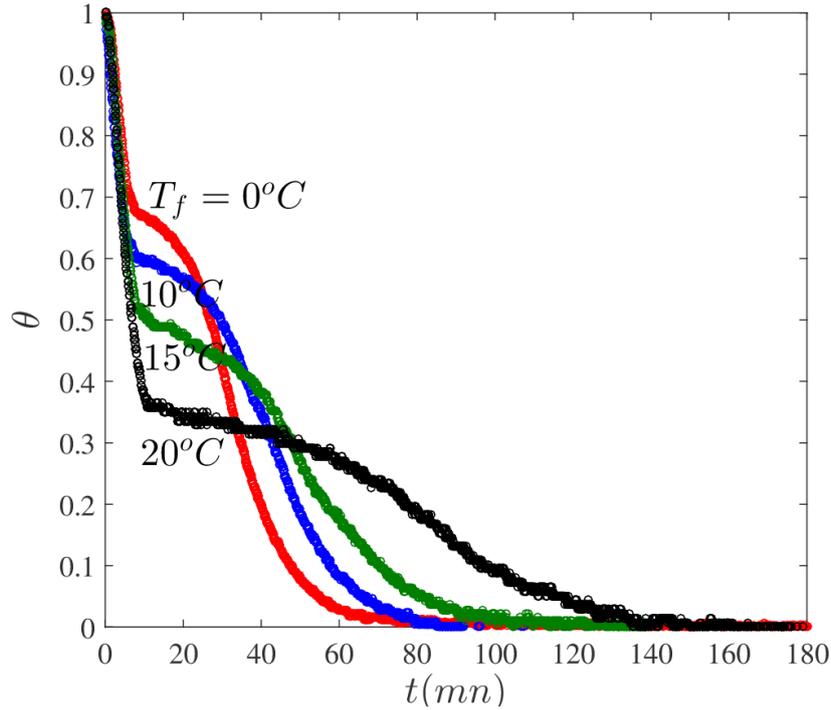


Figure 9 - Thermogrammes du RUB 25 pour  $T_f = 0, 10, 15$  et  $20^\circ C$

Pour l'ensemble de nos expériences, on se propose de modéliser la température de tous nos échantillons de MCPs testés par une expression phénoménologique de type :

$$\theta = \frac{1}{2} \left[ e^{-\frac{t}{\tau_1}} + \beta \left( 1 - e^{-\frac{t}{\tau_2}} \right) \right] \left[ 1 + \tanh \left( \alpha - \frac{t}{\tau_3} \right) \right] \quad (5)$$

dans laquelle apparaissent deux paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  et trois temps caractéristiques  $\tau_1$ ,  $\tau_2$  et  $\tau_3$  qui sont directement liés au processus de solidification. Les temps caractéristiques  $\tau_1$  et  $\tau_2$  sont représentatifs du refroidissement de l'échantillon. Ils sont reliés aux variations de chaleur sensible alors que le temps caractéristique  $\tau_3$  est relié à la chaleur latente.

### 4.3 Paramètres du modèle

La Figure 8 montre qu'un bon accord est obtenu entre les données expérimentales et l'expression phénoménologique pour le RUB 25. Des résultats similaires ont été obtenus pour tous les échantillons de MCPs.

Une analyse complète de l'ensemble des données au moyen de l'expression 5 montre que le temps caractéristique  $\tau_2$  demeure constant pour les différentes expérimentations réalisées sur les 5 échantillons de matériau, avec la même condition limite (condition de Neumann). Les résultats indiquent que  $\tau_2$  est indépendant à la fois de l'écart de température  $\theta_0$  et de la chaleur latente  $L$ . Cette grandeur qui caractérise la chaleur sensible échangée sur l'intervalle de température  $1 - \theta_0$  prend la valeur de  $\tau_2 = 1.4$  mn dans le cas de cette campagne d'essais. L'influence de la condition limite par une modification du coefficient de transfert convectif  $h$  n'a pas été étudiée lors de cette étude.

S'agissant du paramètre  $\alpha$ , chaque MCP a sa valeur spécifique. On note  $\alpha = 2.5$  pour RUB 15, 20 et 25 ;  $\alpha = 4$  pour HEX 10 et  $\alpha = 5.5$  pour GG 3. Cela indique que  $\alpha$  dépend de la température de changement de phase du matériau. En revanche, il est indépendant de l'écart de température  $\theta_0$ . Là encore, l'influence de la condition limite n'a pas été étudiée.

Les variations du temps caractéristique  $\tau_1$  et de l'inverse du paramètre  $\beta$  sont présentées sur la Figure 10 en fonction de l'écart de température  $\theta_0$ .

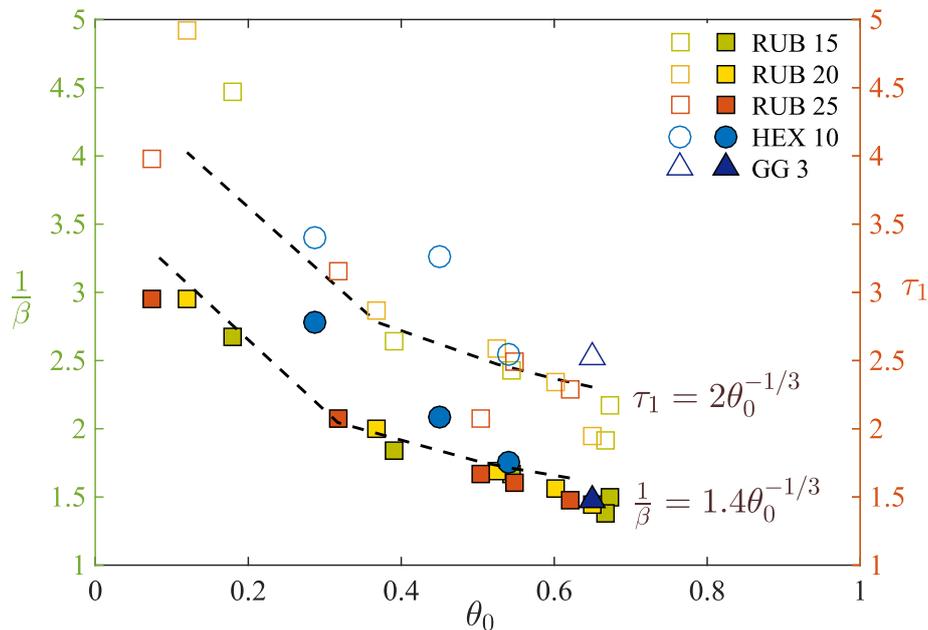


Figure 10 - Variations des grandeurs  $\tau_1$  et  $1/\beta$  en fonction de  $\theta_0$  pour différents échantillons de MCPs

D'après les données expérimentales, on peut approcher ces deux grandeurs par des expressions phénoménologiques en loi de puissance telles que :

$$\tau_1 = 2\theta_0^{-\frac{1}{3}} \quad (6)$$

$$\frac{1}{\beta} = 1.4\theta_0^{-\frac{1}{3}} \quad (7)$$

La Figure 10 présente un bon accord entre les corrélations et les résultats empiriques obtenus pour les échantillons RUB 15, 20, 25 et GG 3. Ce constat semble un peu moins évident pour l'échantillon HEX 10 mais l'impact est négligeable sur son thermogramme en température. Par conséquent, ces approches peuvent être considérées comme convenables et sont exploitables pour tout type de MCP.

Le temps caractéristique  $\tau_3$  est la principale grandeur qui affecte la longueur du pseudo-plateau de changement de phase. Il montre une forte dépendance avec la chaleur latente  $L$  du matériau et l'écart de température  $\Delta T_0 = T_s - T_f$  comme illustré sur la Figure 11.

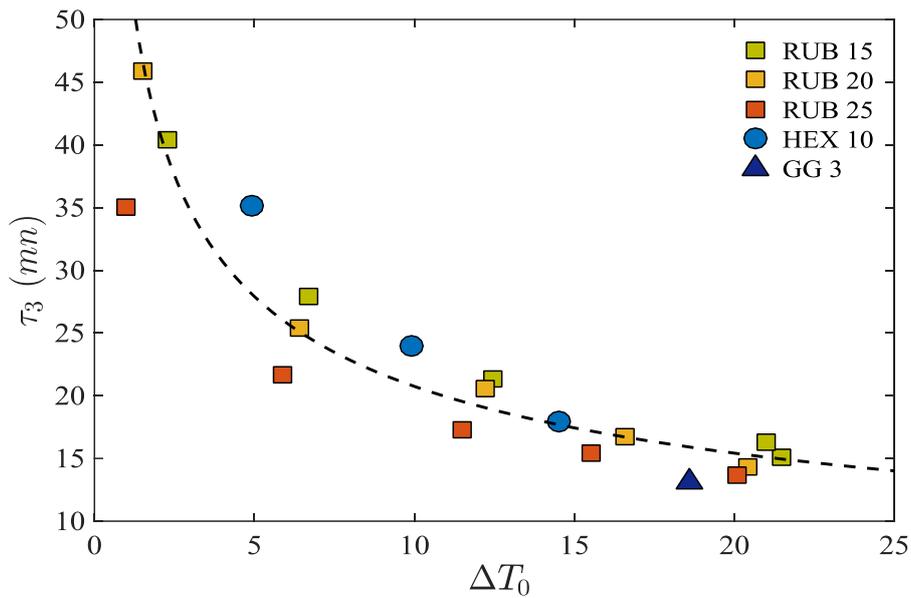


Figure 11 - Variation de  $\tau_3$  en fonction de  $\Delta T_0$

On peut corréliser ce temps caractéristique  $\tau_3$  au temps correspondant à la fin du changement de phase. Celui-ci a été défini comme étant le temps pour lequel la température du matériau atteint la valeur de  $T_{endset}$ , valeur obtenue lors de l'étude calorimétrique.

La Figure 12 compare le temps  $\tau_3$  avec le temps  $t_{sol}$  correspondant à la fin du changement de phase, autrement dit lorsque  $T = T_{endset}$ .

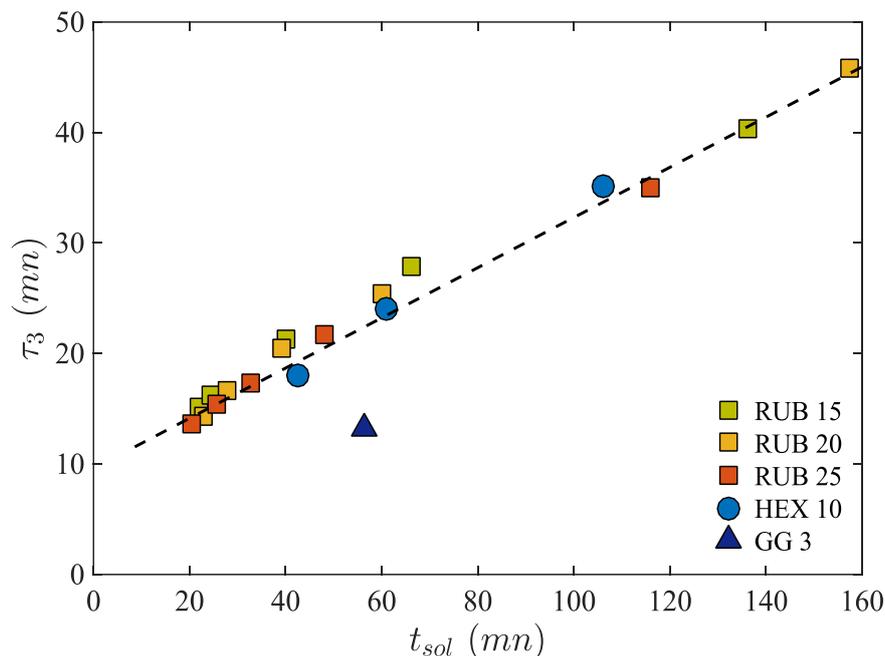


Figure 12 - Variation de  $\tau_3$  en fonction de  $t_{sol}$

On observe une relation linéaire entre ces deux temps caractéristiques qui montre que la connaissance du temps  $\tau_3$  nous donne la valeur de la durée complète de solidification. Ce constat est moins évident pour l'échantillon GG 3. Néanmoins, les résultats indiquent que cette corrélation est convenable et peut être appliquée pour tous les MCPs à base de paraffine.

#### 4.4 Comparaison avec la solution analytique de Neumann

Dans cette partie, on se propose de comparer la durée complète de solidification des échantillons de MCP de taille finie avec la solution analytique de Neumann. Le but est de valider l'hypothèse de notre étude qui consiste à considérer les transferts thermiques unidirectionnels au sein du matériau.

Pour un milieu semi-infini, la durée complète de solidification d'un MCP peut être obtenue au moyen de différentes approches analytiques. Un des pionniers fut Neumann qui, en 1860, proposa une méthode de résolution analytique du problème en géométrie  $1D$ . Dans ses travaux, le matériau est initialement à la température de changement de phase et la convection dans la phase liquide est négligée comme dans notre étude.

Considérant des profils de température dans les phases liquide et solide sous la forme de fonctions erreur (voir [3] pour plus de détail), le bilan thermique à l'interface solide-liquide permet d'écrire l'équation suivante :

$$\frac{\sqrt{\pi}}{(2\sqrt{Fo})} e^{\frac{1}{4Fo}} \operatorname{erf}\left(\frac{1}{2\sqrt{Fo}}\right) = Ste \quad (8)$$

où  $Ste = \frac{Cp(T_s - T_f)}{L}$  représente le nombre de Stefan et  $Fo = \frac{at}{x^2}$  le nombre de Fourier avec  $a$  la diffusivité thermique du matériau,  $x$  la position du front de solidification au temps  $t$ ,  $Cp$  la chaleur spécifique,  $L$  la chaleur latente,  $T_s$  la température de solidification et  $T_f$  la température imposée à la surface de l'échantillon. La résolution montre que l'avancée du front est proportionnelle à la racine carrée du temps tel que :

$$x(t) = C\sqrt{at} \quad (9)$$

avec  $C$  facteur de proportionnalité, fonction du nombre de Stefan  $Ste$ . La méthode de Neumann fut par la suite généralisée [3] pour différentes conditions initiales et limites.

En prenant comme échelle de temps le groupement  $E^2/a$ , on définit une durée de solidification adimensionnée à partir du nombre de Fourier  $Fo_{sol}$  sous la forme :

$$Fo_{sol} = \frac{at_{sol}}{E^2} \quad (10)$$

avec  $E$  l'épaisseur de l'échantillon et  $t_{sol}$  la durée de solidification.

La Figure 13 présente les variations du nombre de Fourier  $Fo_{sol}$  en fonction du nombre de Stefan  $Ste$  pour  $x = E$ . Les données expérimentales sont comparées à la solution analytique de Neumann par application de la formule 8.

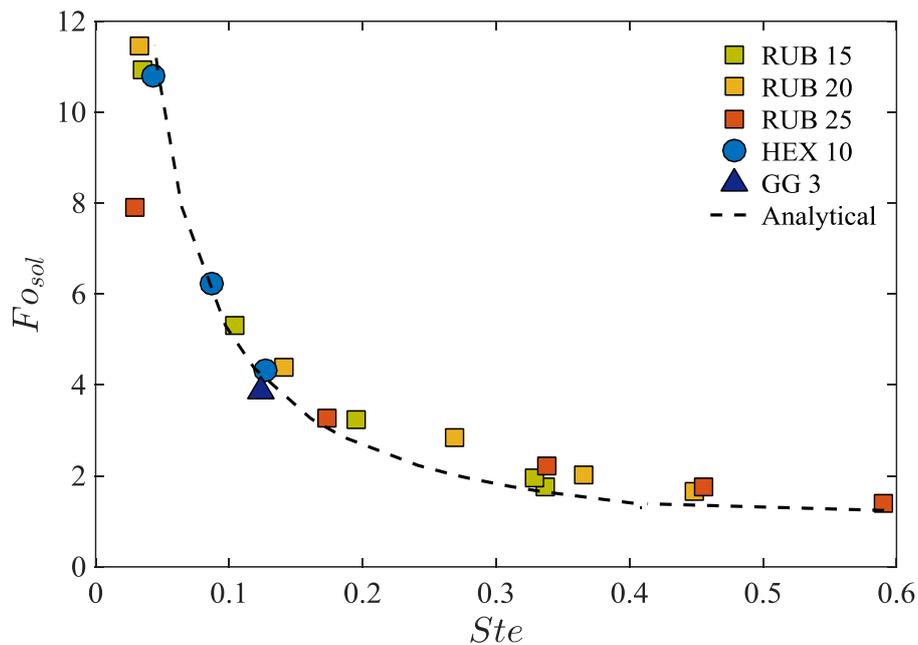


Figure 13 - Variations de  $Fo_{sol}$  représentatif de la durée de solidification des MCPs en fonction de  $Ste$

On observe une décroissance avec une pente plus prononcée pour les faibles  $Ste$  que pour les forts  $Ste$ . La courbe issue de la solution de Neumann présente un bon accord avec les données expérimentales, ce qui permet d'affirmer que notre système peut être considéré comme un milieu semi-infini. De ce fait, notre hypothèse selon laquelle les transferts thermiques sont unidirectionnels au sein du matériau est valide.

La dépendance de la durée  $Fo_{sol}$  avec le nombre de Stefan  $Ste$  se traduit par une expression empirique de la forme :

$$Fo_{sol} = 1 + \frac{0.4}{Ste} \quad (11)$$

Celle-ci est similaire aux expressions proposées par [Charach & Zoglin \[4\]](#) et [Charach & Kahn \[5\]](#) dans le développement d'une modélisation qui combine la méthode du bilan intégral et la théorie de perturbation variable dans le temps. Ce type d'expression avec dépendance en  $1/Ste$  a également été obtenu pour une solidification en géométrie cylindrique pour plusieurs types de conditions aux limites [\[2\]](#), [\[6\]](#)–[\[8\]](#).

## 5 Conclusion

La durée de solidification d'un MCP de taille finie n'admet aucune solution analytique. Le présent chapitre propose une expression phénoménologique qui modélise l'évolution de la température d'un MCP en phase de solidification.

Deux paraffines et de l'eau distillée ont été utilisées en tant qu'éléments fusibles à changement de phase :

- Paraffine RT 27 de température de fusion 27°C
- Paraffine n-Hexadécane de température de fusion 18°C
- Gel aqueux de température de fusion 0.7°C

Tous ont été emprisonnés dans des matrices polymères avec différents taux de polymérisation pour former des MCPs.

L'expression phénoménologique a été comparée avec la solution analytique de Neumann. Elle présente un bon accord, ce qui permet de valider l'hypothèse d'un milieu semi-infini pour notre modèle.

Les propriétés mécaniques des MCPs à base de Rubitherm RT 27 ont été caractérisées par des mesures rhéologiques et micro-rhéologiques. La température de transition gel-liquide  $T_g$  du matériau est d'autant plus élevée (supérieure à 27°C) que la concentration massique du polymère est forte. De plus, le transfert thermique au sein de ce MCP peut être considéré comme purement conductif lorsque son caractère élastique prédomine.

## Annexes : Eléments de rhéologie

On considère un fluide placé entre 2 plaques parallèles distantes de  $L$ . La **contrainte de cisaillement** appliquée sur le fluide est définie comme suit :

$$\sigma = \frac{F}{S} \quad (12)$$

avec  $F$  la force appliquée sur la plaque supérieure de surface  $S$  pour déplacer le fluide

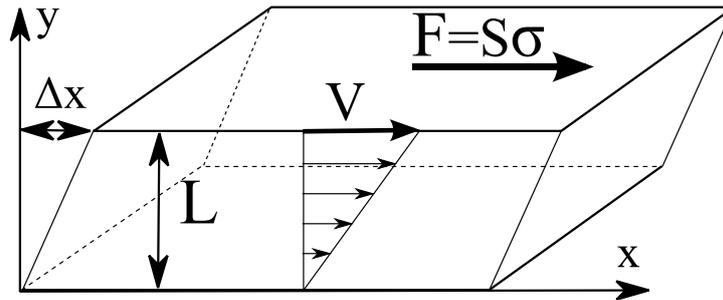


Figure 14 – Schéma de principe d'une expérience de rhéologie

- Le **taux de déformation** du matériau est défini comme étant le rapport :

$$\varepsilon = \frac{\Delta x}{L} \quad (13)$$

- On appelle **taux de cisaillement** (ou vitesse de déformation) du fluide, la dérivée temporelle de  $\varepsilon$  qui est définie par :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{\partial V_x}{\partial y} = \frac{V}{L} \quad , \text{ pour } L \text{ très petit} \quad (14)$$

En rhéologie, la loi fondamentale à retenir est que  $\sigma(t)$  dépend de  $\varepsilon(t)$ . Nous allons exprimer les contraintes de cisaillement  $\sigma(t)$  pour les 3 différents cas de rhéologie : fluide Newtonien (ou visqueux), solide élastique et fluide complexe (ou viscoélastique).

- Pour un fluide visqueux :

$$\underline{\sigma}_{visqueux}(t) = \eta \dot{\varepsilon}(t) \quad (15)$$

avec  $\eta$  la viscosité dynamique du fluide

- Pour le cas du solide élastique de Hooke :

$$\sigma_{élastique}(t) = G_0 \varepsilon(t) \quad (16)$$

avec  $G_0$  le module d'élasticité. Ce cas ne décrit pas un fluide mais un solide qui se déforme sous l'action d'une contrainte.

En régime oscillatoire, on utilise des fonctions complexes pour exprimer nos relations et le taux de déformation devient :

$$\underline{\varepsilon}(t) = \varepsilon_0 e^{i\omega t} \quad (17)$$

Ainsi, les deux cas précédents s'écrivent :

$$\underline{\sigma}_{visqueux}(t) = i\omega\eta\underline{\varepsilon}(t) \quad (18)$$

$$\underline{\sigma}_{élastique}(t) = G_0\underline{\varepsilon}(t) \quad (19)$$

Dans le cas du fluide complexe, le lien de causalité entre la contrainte de cisaillement et le taux de déformation est respecté selon la formule suivante de [Squires et Mason \[9\]](#) :

$$\sigma_{visco-élastique}(t) = \int_{-\infty}^t G_r(t-u)\dot{\varepsilon}(u)du \quad (20)$$

avec  $G_r(t)$  le module de relaxation des contraintes

En passant en notation complexe et en appliquant le changement de variable  $x = t - u$ , cela devient :

$$\underline{\sigma}_{visco-élastique}(t) = i\omega\underline{\varepsilon}(t) \int_0^{+\infty} \underline{G}_r(x)e^{-i\omega x} dx \quad (21)$$

Ainsi,

$$\begin{aligned} \underline{\sigma}_{visco-élastique}(\omega) &= i\omega\tilde{G}_r(\omega)\underline{\varepsilon}(\omega) \\ &= \tilde{G}(\omega)\underline{\varepsilon}(\omega) \end{aligned} \quad (22)$$

avec  $\hat{G}_r(\omega)$  la transformée de Fourier de  $G_r$

Et,

$$\tilde{G}(\omega) = G'(\omega) + iG''(\omega) \quad (23)$$

avec  $G'(\omega)$  le module élastique,  $G''(\omega)$  le module visqueux et  $\tilde{G}(\omega)$  le module viscoélastique du fluide

Un matériau viscoélastique est dit de structure solide lorsque le module élastique  $G'$  est prépondérant, à savoir  $G' \gg G''$ . A l'inverse, il est dit de structure liquide lorsque le module visqueux  $G''$  est prépondérant, à savoir  $G'' \gg G'$ .

## Bibliographie

- [1] L. Royon, G. Guiffant, P. Perrot, et G. Labranque, « Régulateur thermique », Brevet français n°0112408.
- [2] S. A. Bahrani, Y. Jannot, et A. Degiovanni, « Extension and optimization of a three-layer method for the estimation of thermal conductivity of super-insulating materials », *J. Appl. Phys.*, vol. 116, n° 14, p. 143509, 2014.
- [3] H. S. Carslaw et J. C. Jaeger, *Conduction of heat in solids*, 2nd edition. New York : Oxford University Press, 1959.
- [4] C. Charach et P. Zoglin, « Solidification in a finite, initially overheated slab », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 28, n° 12, p. 2261-2268, déc. 1985.
- [5] C. Charach et P. Kahn, « Transient phase-change heat transfer in finite bodies: Universal bounds for the solidification (melting) time », *J. Appl. Phys. - J APPL PHYS*, vol. 59, p. 3579-3581, mai 1986.
- [6] J. Wang, H. Xie, Z. Xin, Y. Li, et C. Yin, « Investigation on thermal properties of heat storage composites containing carbon fibers », *J. Appl. Phys.*, vol. 110, n° 9, p. 094302, nov. 2011.
- [7] P. Zhang, X. Xiao, et Z. W. Ma, « A review of the composite phase change materials: Fabrication, characterization, mathematical modeling and application to performance enhancement », *Appl. Energy*, vol. 165, p. 472-510, mars 2016.
- [8] R. Colin, A. M. Alsayed, J.-C. Castaing, R. Goyal, L. Hough, et B. Abou, « Spatially heterogeneous dynamics in a thermosensitive soft suspension before and after the glass transition », *Soft Matter*, vol. 7, n° 9, p. 4504-4514, avr. 2011.
- [9] T. M. Squires et T. G. Mason, « Fluid Mechanics of Microrheology », *Annu. Rev. Fluid Mech.*, vol. 42, n° 1, p. 413-438, 2010.

# **Chapitre III**

**Transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP : étude expérimentale**



## Table des matières

1	Introduction.....	71
2	Schéma de principe - Dimensionnement .....	72
3	Dispositif expérimental.....	74
3.1	Le MCP.....	74
3.2	Fluide caloporteur.....	76
3.3	Descriptif du montage .....	76
3.3.1	Schéma synoptique du dispositif.....	77
3.3.2	Colonne de stockage.....	79
3.4	Capteurs de mesure.....	81
4	Protocole et résultats .....	82
4.1	Stockage/Déstockage.....	83
4.2	Influence du débit .....	86
4.3	Influence de la température d'entrée du fluide.....	87
4.4	Phénomène de décrochage.....	88
4.5	Durée de stockage.....	90
4.6	Influence de la température initiale .....	91
4.7	Durée de déstockage .....	92
4.8	Pertes de charge .....	93
4.9	Reproductibilité .....	94
5	Conclusion et perspectives.....	96



## 1 Introduction

Dans l'optique de maintenir l'autonomie du véhicule électrique en période hivernale tout en assurant le chauffage de l'habitacle, la solution envisagée est d'installer une batterie thermique.

L'objectif de ce chapitre porte sur la réalisation et l'étude dynamique d'un prototype de batterie thermique telle qu'il est défini dans le projet VEGETO (Véhicule Electrique : Gestion Energétique et Thermique Optimisée). Celle-ci devra renfermer du MCP d'origine végétale sous forme de particules millimétriques. Le point de fusion visée du matériau est de 70°C.

La fabrication de ces particules a été confiée à la société MCI technologies, partenaire du projet. Les MCPs développés se sont avérés incompatibles avec le fluide caloporteur (eau glycolée) puisqu'elles se dégradent dès les premiers cyclages thermiques. Compte-tenu de ce problème technique, l'étude de faisabilité a été menée sur un autre MCP à base de Rubitherm RT 27.

Dans un premier temps, nous allons présenter le cahier des charges qui nous servira de socle pour dimensionner notre circuit de chauffage. Puis, nous procéderons au descriptif de notre montage accompagné de ses différents éléments et des outils de mesure. Enfin, nous analyserons les résultats obtenus à travers nos expérimentations.

## 2 Schéma de principe - Dimensionnement

Dans le cadre du projet VEGETO, un cahier des charges a été établi. Celui-ci stipule que le circuit doit s'adapter à une température extérieure allant de  $-18^{\circ}\text{C}$  à  $5^{\circ}\text{C}$ . L'air insufflé dans l'habitacle doit avoir une température moyenne de  $45^{\circ}\text{C}$  et son débit massique, suivant le réglage du conducteur, peut varier entre 150 kg/h et 300 kg/h. De plus, le débit du fluide caloporteur circulant dans le circuit sera compris entre 100 kg/h et 1000 kg/h.

A partir de ces données, nous avons dimensionné le circuit pour l'utilisation d'un MCP à haut point de fusion ( $70^{\circ}\text{C}$ ) puisque *in fine*, la batterie thermique sera composée de ce type de matériau. On supposera que le fluide caloporteur quitte la batterie thermique en phase de déstockage à une température de  $70^{\circ}\text{C}$ .

Les Figures 1 et 2 illustrent le fonctionnement du circuit de chauffage au sein du véhicule électrique en phase de charge et de décharge thermique.

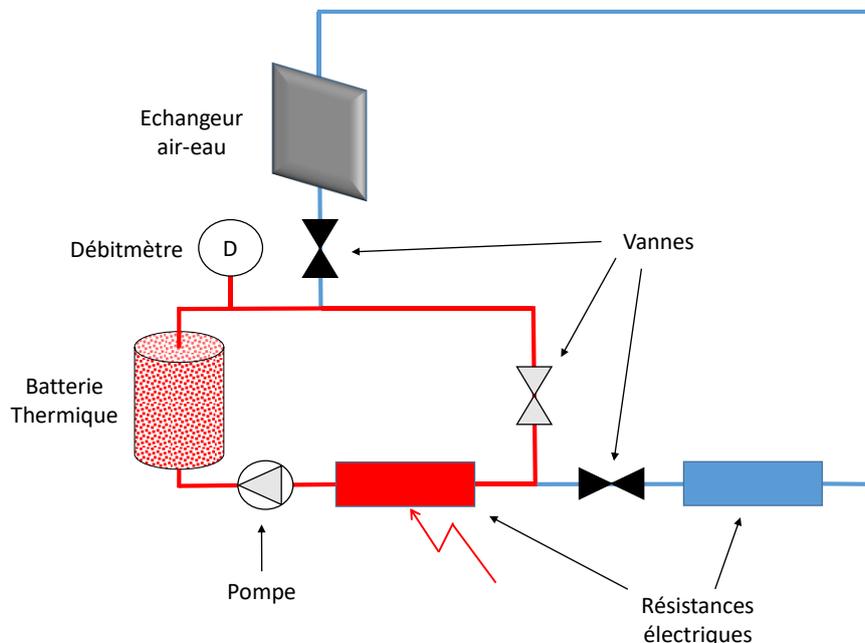


Figure 1 - Schéma de fonctionnement - charge thermique

Lorsque le véhicule est éteint et branché au réseau électrique, la charge thermique s'opère en actionnant une boucle fermée comprenant une résistance électrique, une pompe et une batterie thermique (aussi appelée accumulateur de chaleur) comme schématisé Figure 1. A son passage au niveau de la résistance électrique, le fluide caloporteur récupère la chaleur générée puis la transfère à la batterie thermique en percolant son lit de particules.

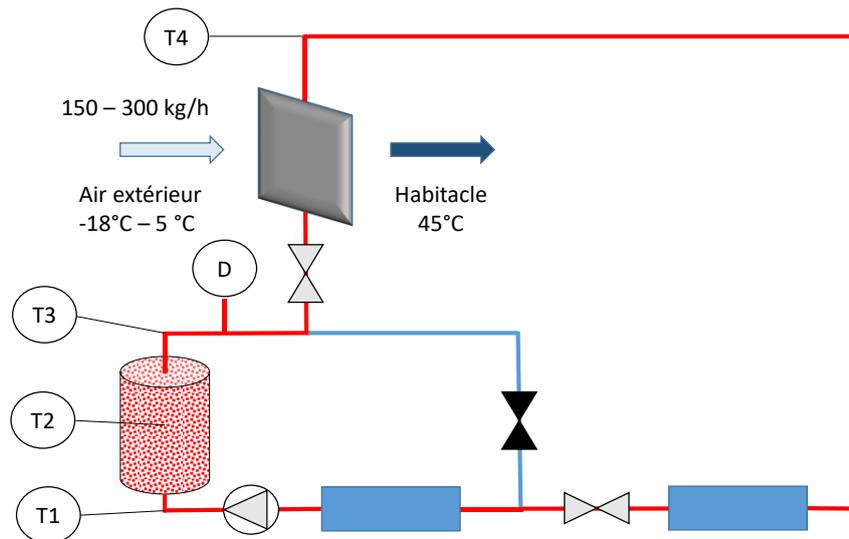


Figure 2 - Schéma de fonctionnement - décharge thermique

La décharge thermique s'opère pendant l'utilisation du véhicule. La mise en fonctionnement du chauffage dans l'habitacle ouvre les vannes de la 2<sup>nd</sup>e boucle qui comprend l'échangeur air-fluide. Pendant la décharge thermique, le fluide caloporteur récupère la chaleur emmagasinée dans la batterie et la transfère à l'habitacle au moyen de l'échangeur, comme illustré dans la Figure 2. Lorsque la batterie est déchargée, les résistances électriques se mettent en fonctionnement et servent de sources de chaleur de substitution.

Prenant en considération les valeurs du cahier des charges, nous évaluons la puissance de l'échangeur air-fluide à l'aide du bilan thermique coté air. Celui-ci s'écrit :

$$P_{éch} = \dot{m}_{air} C_{p_{air}} (T_{in} - T_{ext}) \quad (1)$$

avec  $C_{p_{air}} \cong 1 \text{ kJ/kg.K}$  et  $T_{in} = 45^\circ\text{C}$ .

La Figure 3 montre l'évolution de la puissance  $P_{ech}$  (en kW) de l'échangeur en fonction de la température extérieure  $T_{ext}$  de l'air pour différents débits massiques de l'air  $\dot{m}_{air}$ .

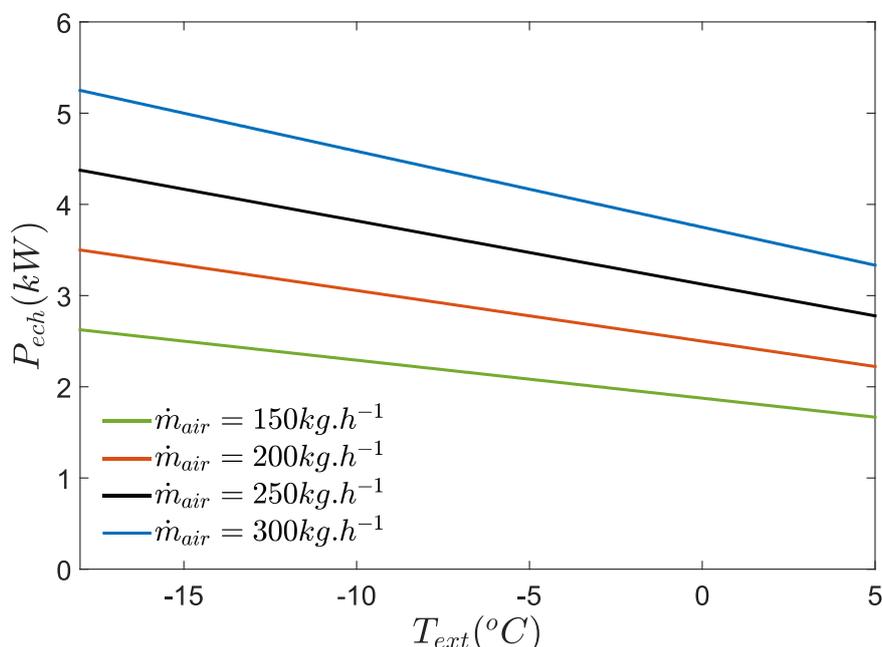


Figure 3 – Puissance de l'échangeur air-fluide en fonction de la température extérieure

Pour différentes valeurs de débits explorés allant de 150kg/h à 300 kg/h, les courbes de puissance échangée  $P_{ech}$  évoluent de manière linéairement décroissante avec la température extérieure. Cette puissance est d'autant plus élevée que le débit est important. Dans ces conditions, la gamme de puissance de l'échangeur  $P_{ech}$  se situe aux alentours de [1,7 – 5,3] kW.

### 3 Dispositif expérimental

Les particules de MCPs prévues dans le projet initial n'étant pas disponibles lors de nos expérimentations, notre choix s'est porté sur un autre type de MCP qui présente un point de fusion beaucoup plus bas et dont nous connaissons les propriétés thermo-physiques. Le principe de fonctionnement reste le même ; seules les températures de fonctionnement en stockage et déstockage sont modifiées pour être adapté au matériau choisi. La gamme de débits explorés respectera celui du cahier des charges.

#### 3.1 Le MCP

Le matériau que nous avons sélectionné est le Rubitherm RT 27, qui fait l'objet des études présentées dans la chapitre II. Celui-ci a été emprisonné dans une matrice polymère pour former un MCP composite avec un taux de polymérisation de 10%. La structure polymère utilisée est du Styrène-Butadiène-Styrène (SBS). Ainsi le matériau qui sert de support de stockage de chaleur à l'intérieur de la batterie thermique est du RUB 10. Son

protocole de préparation a été résumé dans la chapitre II - section 2.1. Après fabrication du matériau RUB 10, celui-ci sera introduit à chaud dans des billes hermétiques dont les caractéristiques et le protocole seront détaillés par la suite.

La Figure 4 présente les thermogrammes de fusion et de solidification du RUB 10 obtenus par calorimétrie pour une vitesse calorimétrique de 0,5°C/mn.

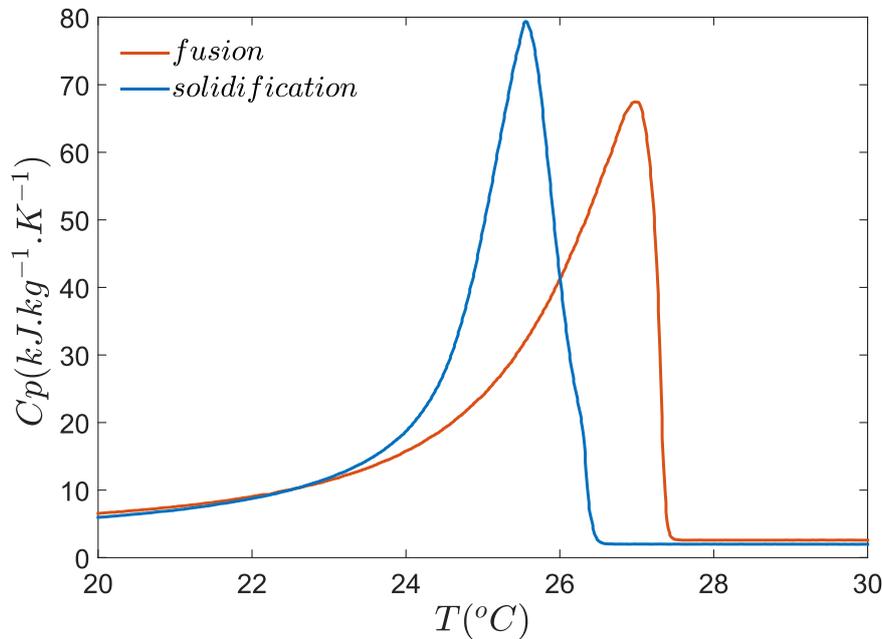


Figure 4 - Thermogrammes calorimétriques de la fusion/solidification du RUB 10

Les propriétés thermo-physiques de cet échantillon telles que la masse volumique, la conductivité thermique et les propriétés thermodynamiques ont été mesurées avec les mêmes instruments et en suivant le même protocole que ceux utilisés et présentés dans le chapitre II - section 2.2.

Propriétés thermodynamiques

$$T_m = 27^{\circ}\text{C}$$

$$Cp_s = 3,26 \text{ kJ.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

$$Cp_l = 2,64 \text{ kJ.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

$$L_{lat} = 141 \text{ kJ.kg}^{-1}$$

Propriétés physiques

$$\rho_s = 857 \text{ kg.m}^{-3}$$

$$\rho_l = 760 \text{ kg.m}^{-3}$$

$$\lambda_s = 0,3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

$$\lambda_l = 0,195 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

Comme nous l'avons vu dans le chapitre II, la structure polymère permet de conférer un aspect solidifiant (gélifiant) au matériau final pour une température supérieure à la température de fusion de 27°C. Ainsi, elle permet de donner au MCP une certaine stabilité mécanique permettant d'éviter d'éventuelles fuites lorsque la paraffine passe de l'état solide à l'état liquide.

Pour la charge de la batterie, nous avons opté pour une température d'entrée du fluide de 45°C. C'est la raison pour laquelle le MCP que nous utilisons comme matériau de remplissage est du RUB 10 (composé de 10% de polymère) car sa température de transition gel-liquide  $T_g$  est de 45°C, ce qui signifie que le matériau gardera une structure solide quelle que soit la température du système.

De plus, les transferts thermiques pourront être considérés comme purement conductifs au sein des billes, ce qui permettra de négliger la convection dans notre simulation numérique (cf. chapitre V).

### 3.2 Fluide caloporteur

Le fluide caloporteur qui traversera la batterie et le circuit du dispositif sera de l'eau glycolée à 50%, c'est-à-dire composée de 50% d'eau et de 50% d'éthylène glycol.

L'eau glycolée est généralement utilisée dans les installations frigorifiques et les circuits de chauffage où le risque de gel est présent. Rajouté à l'eau, le glycol permet d'empêcher le gel dans l'installation. La Figure 5 illustre l'évolution du point de solidification de l'eau glycolée en fonction du taux volumique d'éthylène-glycol.

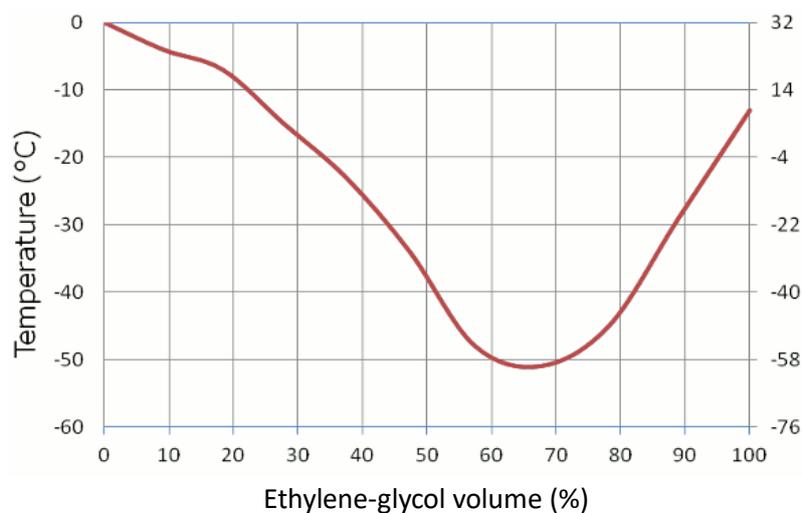


Figure 5 - Evolution du point de solidification de l'eau glycolée 50%

Pour une eau glycolée à 50%, on remarque que la température du point de solidification se situe à -38°C. Etant donné que notre dispositif est une installation conçue pour les véhicules, cette température limite semble largement acceptable pour éviter le gel.

### 3.3 Descriptif du montage

Le banc d'essais utilisé pour les expérimentations a été conçu pour reproduire les conditions de pression, de débit et de température rencontrées dans les boucles de chauffage d'un véhicule. Il permet de tester dans des conditions réelles plusieurs prototypes de batteries

thermiques. Les données permettront par ailleurs de valider des modèles numériques développés pour optimiser les performances de ces batteries.

### 3.3.1 Schéma synoptique du dispositif

Le banc d'essais se compose de deux cuves remplies d'eau glycolée 50 % avec deux niveaux de températures différents. La Figure 6 est une représentation schématique du banc d'essai sur laquelle on peut voir l'emplacement des vannes, de la pompe et du débitmètre.

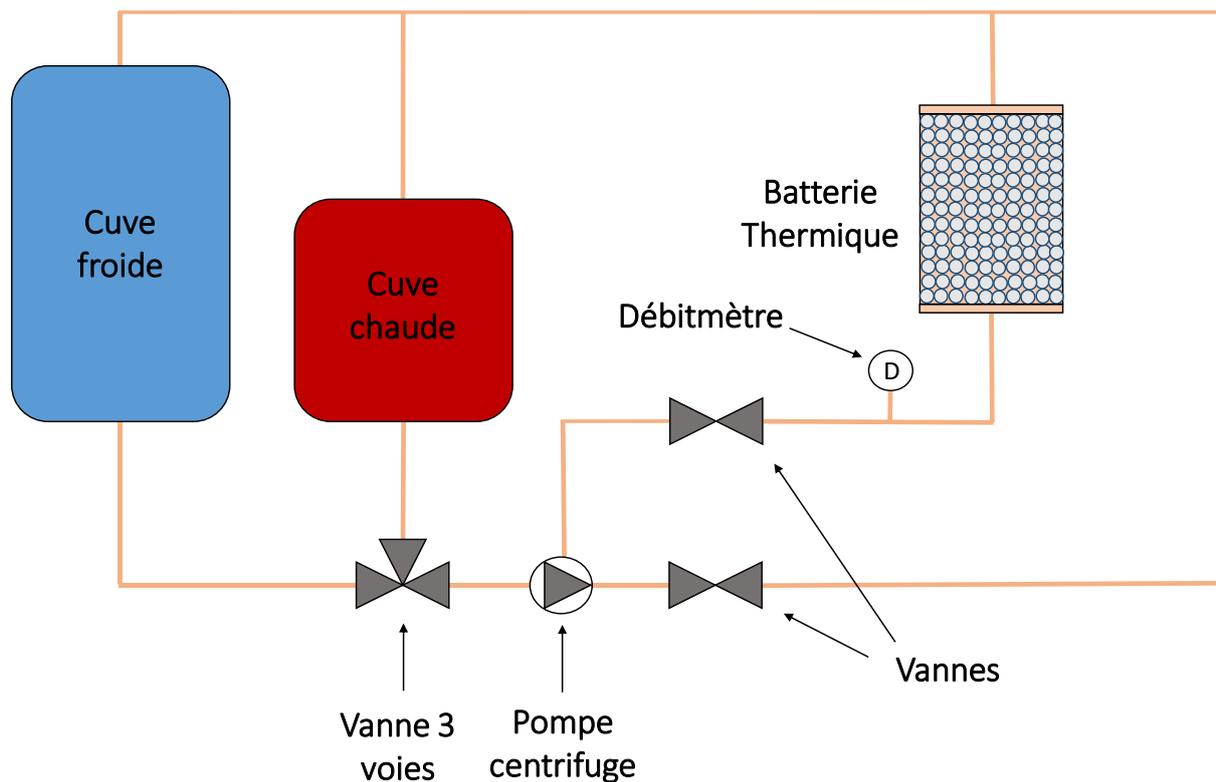


Figure 6 – Schéma synoptique du banc d'essai

Le banc d'essai a la capacité de fournir rapidement du fluide caloporteur à différentes températures. Des cuves de grande taille sont utilisées pour faire tampon lorsqu'une charge/décharge thermique importante est imposée. En parallèle, la régulation thermique chaud/froid des cuves est assurée par des thermorégulateurs permettant de réchauffer/refroidir le fluide de chaque réservoir.

Les caractéristiques techniques des différents éléments du banc d'essai sont les suivantes :

- Cuve de fluide chaud (respectivement froid) de 300L (resp. 450L) à température contrôlée par thermorégulateur (resp. refroidisseur)

- Thermorégulateurs (cf. Figure 7)

Le thermorégulateur de marque « Tool-Temp » permet grâce à un thermoplongeur de 12 kW de chauffer le fluide jusqu'à 140°C. Le thermorégulateur est aussi équipé d'un échangeur à plaques qui permet de refroidir la cuve par le réseau d'eau de la ville en cas de besoin.

- Refroidisseur à circulation

Un refroidisseur à circulation de marque « Julabo » peut fournir une puissance frigorifique allant jusqu'à 4,3 kW pour refroidir le fluide caloporteur. Sa plage de température se situe entre -20°C et 40°C.

- Pompe centrifuge

La pompe centrifuge de marque « Salmson » dispose de plusieurs vitesses et permet de fournir des débits allant de 100 L/h à 500 L/h (environ 100 kg/h à 500 kg/h) en fonction des conditions opératoires.

- Vanne 3 voies

La vanne 3 voies de marque « Siemens » est placée en sortie des cuves et avant la pompe. Elle permet d'alterner le passage du fluide chaud/froid en provenance des cuves, en fonction des besoins. Elle permet également de mélanger les débits chaud et froid.

- Bypass

Le by-pass est une branche du circuit qui contourne l'accumulateur de chaleur. Il est équipé d'une vanne de précision. Il permet de réduire le débit dans l'accumulateur de chaleur en le court-circuitant, lorsque cela est nécessaire.

La Figure 7 montre le banc d'essais tel qu'il a été conçu. On peut y voir tous les éléments y compris la batterie thermique, élément central. Un ordinateur et une plateforme de mesure permettent de piloter les vannes et les thermorégulateurs mais également d'enregistrer l'acquisition des données tels que le débit, les pertes de charges et les températures au sein de la batterie.

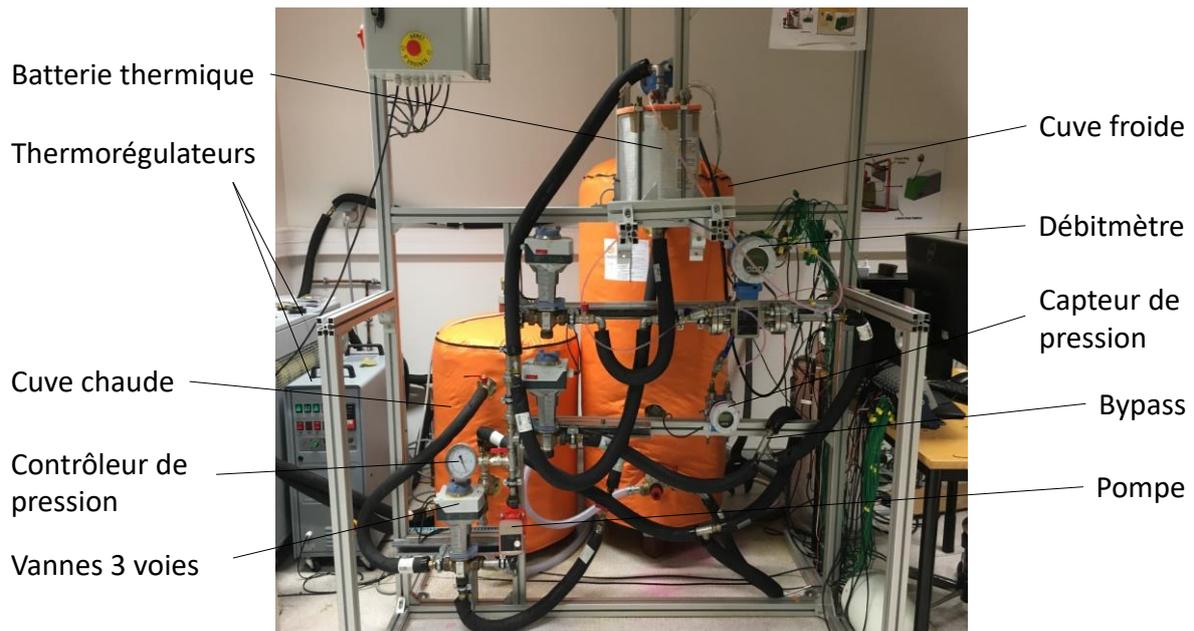


Figure 7 - Photo du banc d'essai avec batterie thermique

### 3.3.2 Colonne de stockage

La colonne de stockage représente l'élément central du banc d'essai. La Figure 8 présente une photographie de la colonne non-isolée. Elle est constituée d'un lit fixe de billes remplies de RUB 10, réparties aléatoirement. Placée à la verticale, la colonne de stockage sera traversée par de l'eau glycolée du bas vers le haut, aussi bien pour la phase de charge que de décharge thermique. Deux zones de distribution situées en bas et en haut de la colonne assureront une répartition homogène du fluide et une vitesse d'écoulement uniforme de part et d'autre de la batterie. Des disques métalliques composés de plusieurs trous jouent le rôle de filtres-diffuseurs qui maintiennent le lit de billes au milieu de la colonne, comme illustré sur la Figure 8.

La colonne de stockage est un cylindre en plexiglas de diamètre extérieur 20 cm, d'épaisseur de paroi 0,5 cm et de hauteur 22 cm. Elle est isolée par une multicouche d'aérogel de conductivité thermique 0,014W/m.K et d'épaisseur 2 cm (non représentée sur la Figure 8).



*Figure 8 - Photo de la colonne de stockage*

Les billes sont des particules sphériques faites en polypropylène. Elles ont un diamètre extérieur de 20 mm avec une paroi moyenne de 1 mm. Le lit fixe, de hauteur 11,2 cm, occupe un volume de 3,2 L au sein de la batterie et est composé de 438 billes. Le poids total des billes remplissant la batterie est de 1,43 kg. Sans prendre en compte la paroi des billes, le poids total du MCP s'élève à 0,96 kg. La géométrie sphérique des particules a été choisie car elle permet d'optimiser les transferts thermiques au passage du fluide caloporteur à travers le lit (cf. chap. IV paragr. 2.3).

La porosité du lit au sein de l'accumulateur de chaleur a été calculée grâce à la formule suivante :

$$\varepsilon = 1 - \frac{V_{bille}}{V_{lit}} = 1 - \frac{4r_{bille}^3 N_{bille}}{3R^2 H_{lit}} \quad (2)$$

avec  $V$  le volume,  $N_{bille}$  le nombre de billes composant le lit,  $r_{bille}$  le rayon d'une bille,  $R$  le rayon de la batterie et  $H_{lit}$  la hauteur du lit. Ainsi, la porosité est égale à 0,42.

Le RUB 10 est injecté à chaud sous forme liquide dans chacune des billes au moyen d'une seringue. On prend ensuite le soin de refermer le trou en appliquant une source de chaleur à haute température (350°C) sur sa surface pour faire fondre la paroi en polypropylène. Afin de s'assurer que les billes sont bien étanches, nous les avons toutes placées dans une étuve à 80°C pendant 30 mn. Le volume occupé par le MCP liquide à l'intérieur des billes est d'environ 95%. En raison de la rétraction volumique lors de la solidification, le volume occupé du MCP solide passe à 90% environ. Rappelons que le RUB 10 a une chaleur latente de 141 kJ.kg<sup>-1</sup>. Par conséquent, prenant uniquement en considération la chaleur latente du matériau, la capacité calorifique de la batterie est de 135 kJ, soit 38 Wh.

Nous avons également expérimenté la tenue mécanique d'une bille de MCP immergée dans de l'eau glycolée à 50%. Le but a été de se rapprocher des conditions réelles d'utilisation de la batterie afin d'observer la compatibilité entre l'eau glycolée et le polypropylène. Pour ce faire, nous avons placé une bille de RUB 10 dans une boule à thé que nous avons plongé dans de l'eau glycolée à l'intérieur d'un bocal. Nous avons ensuite placé ce bocal dans une étuve à 65°C pendant 2h. Cette expérimentation a été réalisée plusieurs fois. Après avoir observé aucune dégradation et aucun changement, nous avons conclu que l'eau glycolée et le polypropylène étaient bien compatibles dans ces conditions.

### 3.4 Capteurs de mesure

Pour pouvoir relever les données de toutes nos différentes expérimentations liées à notre banc d'essais, nous avons utilisé plusieurs capteurs de mesure avec les caractéristiques suivantes :

- Un débitmètre de marque « Endress+Hauser » possédant une gamme de mesure variant de 3,6 dm<sup>3</sup>/h à 600 m<sup>3</sup>/h d'incertitude 0,5%
- Un capteur de pression différentiel de marque « Endress+Hauser » possédant une gamme de mesure allant de 10 mbar à 40 bar d'incertitude 0,1%.
- Des thermocouples de type K de diamètre 0,5 mm et d'incertitude 0,5 K
- Une carte d'acquisition reliée à un ordinateur de marque « National Instruments »

Le capteur de pression différentielle permet de mesurer les pertes de charges au sein de la batterie, c'est-à-dire la somme des pertes de charges linéaires et singulières causées par le lit de billes. Dans notre dispositif, il est implanté à l'entrée et la sortie du lit de billes afin d'évaluer la différence  $\Delta P$  entre la pression d'entrée et la pression de sortie de la colonne.

Concernant l'implantation des sondes de températures, dix thermocouples ont été placés à différents endroits pertinents au sein de la colonne afin de relever la température du fluide et du MCP. Pour le fluide, nous les avons placés sur un squelette maintenu fixe à l'intérieur de la colonne et pour le MCP, nous les avons placés à l'intérieur des billes pour évaluer le gradient thermique. La disposition des thermocouples est présentée dans le schéma Figure 9 :

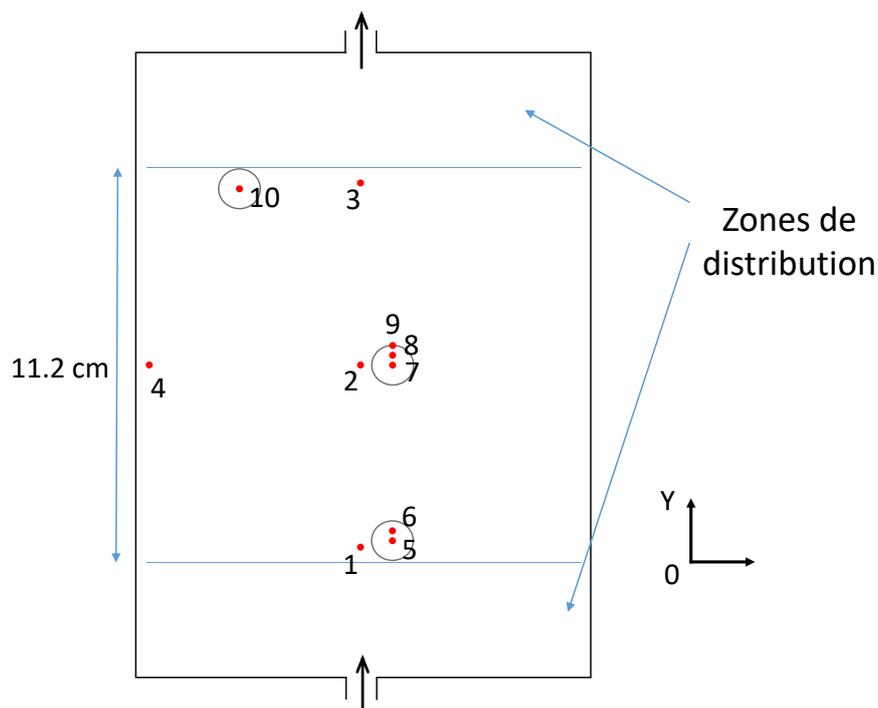


Figure 9 - Disposition des thermocouples au sein de la colonne thermique (échelle à ne pas considérer)

Les thermocouples 1 à 4 relèvent la température du fluide caloporteur tandis que les thermocouples 5 à 10 relèvent les températures du MCP à l'intérieur des billes qui sont placés respectivement en entrée, au milieu et en sortie de la batterie. Leur position est évaluée à partir d'un axe vertical Y dont l'origine est située en bas du lit de particules. En hauteur adimensionnée, les billes se situent respectivement à  $Y=0,09$  en entrée,  $Y=0,52$  au milieu et  $Y=0,91$  en sortie. A noter que le thermocouple 9 est placé sur la paroi de la bille.

La carte d'acquisition récupère toutes les données provenant des appareils de mesure et les transmet vers un ordinateur pour l'enregistrement des données. Le temps d'acquisition est fixé à 1s.

## 4 Protocole et résultats

Avant d'entamer un cycle d'expériences de charge/décharge thermique, nous prenons le soin de réguler les températures des cuves. Pour ce faire, nous mettons en fonctionnement les thermostats de manière à ce que le fluide atteigne la température de consigne et que celle-ci soit uniforme dans toute la cuve. Cette opération dure 30 mn environ. Les températures de référence sont de  $45^{\circ}\text{C}$  dans la cuve chaude et de  $15^{\circ}\text{C}$  dans la cuve froide. C'est ensuite que nous mettons en marche le circuit.

La mise en marche s'effectue dans un premier temps par un « amorçage » du dispositif en réalisant une charge suivi d'une décharge thermique complète. Ensuite, nous lançons le cycle d'expériences en opérant à l'enregistrement des données.

## 4.1 Stockage/Déstockage

La Figure 10 présente l'évolution de la température du MCP en phase de stockage à différents endroits au sein de la batterie en fonction du temps, et pour différents débits. Les numéros adjoints aux courbes correspondent aux thermocouples schématisés sur la Figure 9. La courbe bleue en pointillés représente la température du fluide caloporteur en entrée de la batterie.

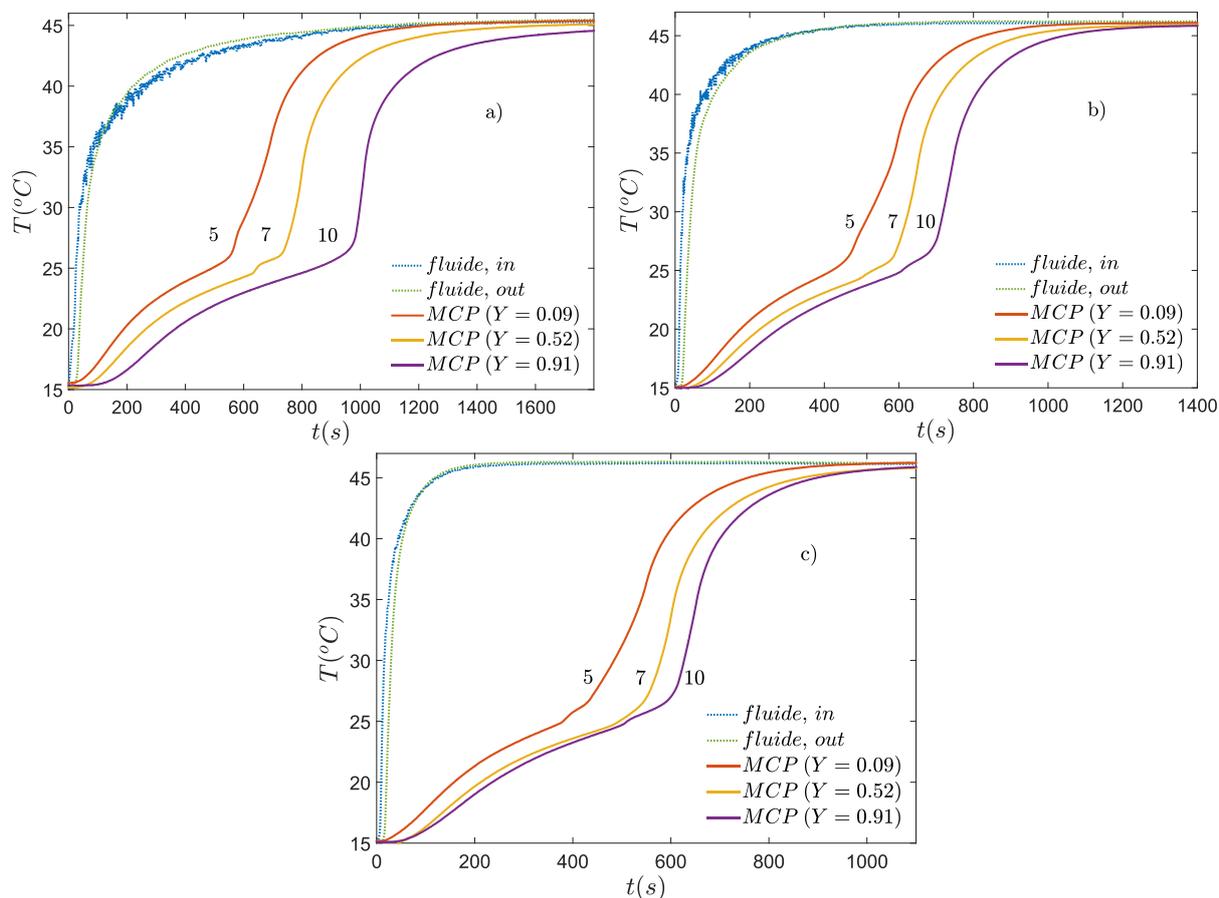


Figure 10 - Evolution de la température du MCP en phase de stockage pour des débits de a) 115 L/h; b) 250 L/h; c) 450 L/h

La température initiale du MCP est définie comme étant la température du MCP au temps  $t=0$ . Ici, elle est de 15°C et la charge s'effectue à 45°C.

Les 3 courbes de température du MCP sont similaires en ce sens qu'elles subissent la même forme d'évolution. Celle-ci se fait en 3 étapes. Dans un premier temps, la température croît normalement sur l'intervalle [15°C – 22°C] résultant du stockage du MCP solide par chaleur sensible. Puis, cette croissance diminue un peu et se stabilise présentant un pseudo-plateau. Cette 2<sup>ème</sup> étape est la conséquence de la fusion du MCP qui est représentative du stockage par chaleur latente autour de 27°C. Enfin, au terme du changement de phase, la courbe de température subit une croissance abrupte jusqu'à atteindre la température de consigne de 45°C. Cette 3<sup>ème</sup> étape résulte du stockage par chaleur sensible du MCP liquide.

On peut noter que l'ordre d'évolution des courbes de température du MCP est cohérent puisque le stockage thermique des billes se trouvant en entrée de la colonne s'effectue avant celui des billes se trouvant au milieu qui lui-même s'effectue avant celui des billes se trouvant en sortie. On remarque que les 3 courbes évoluent plus rapidement à mesure que le débit du fluide caloporteur augmente. Ceci s'explique par une augmentation de la valeur du coefficient de transfert convectif  $h_f$  entre le fluide et les billes, ce qui a pour conséquence d'optimiser les échanges thermiques.

Dans l'optique de rendre perceptible l'évolution du stockage de l'énergie au sein de la batterie, nous avons calculé la grandeur  $L\%$  correspondant au ratio entre l'enthalpie latente emmagasinée localement à différentes hauteurs du lit (entrée, milieu et sortie) au temps  $t$  et la chaleur latente du matériau. Ce ratio dépend du temps et se calcule selon la formule suivante :

$$L\%(t) = \frac{1}{L_{lat}} \left( \int_{T_{onset}}^{T(t)} C_{p_{MCP}} dT - C_{p_{moy}} (T(t) - T_{onset}) \right) * 100 \quad (3)$$

avec  $L_{lat}$  la chaleur latente du RUB 10 et  $T_{onset,m} = 20,7^\circ\text{C}$  correspondant à la température du début de fusion. Lorsque  $T(t)$  atteint  $T_{endset,m} = 27,6^\circ\text{C}$  correspondant à la température de fin du fusion, alors  $L\%$  est égale à 100%. La capacité calorifique massique moyenne du matériau  $C_{p_{moy}}$  est défini d'après la formule suivante :

$$C_{p_{moy}} = \frac{C_{p_s} + C_{p_l}}{2} \quad (4)$$

Les courbes représentant  $L\%$  sont illustrées sur la Figure 11. Le débit du fluide est de 250 L/h, la température initiale du lit est de  $15^\circ\text{C}$  et la charge s'effectue à  $45^\circ\text{C}$ .

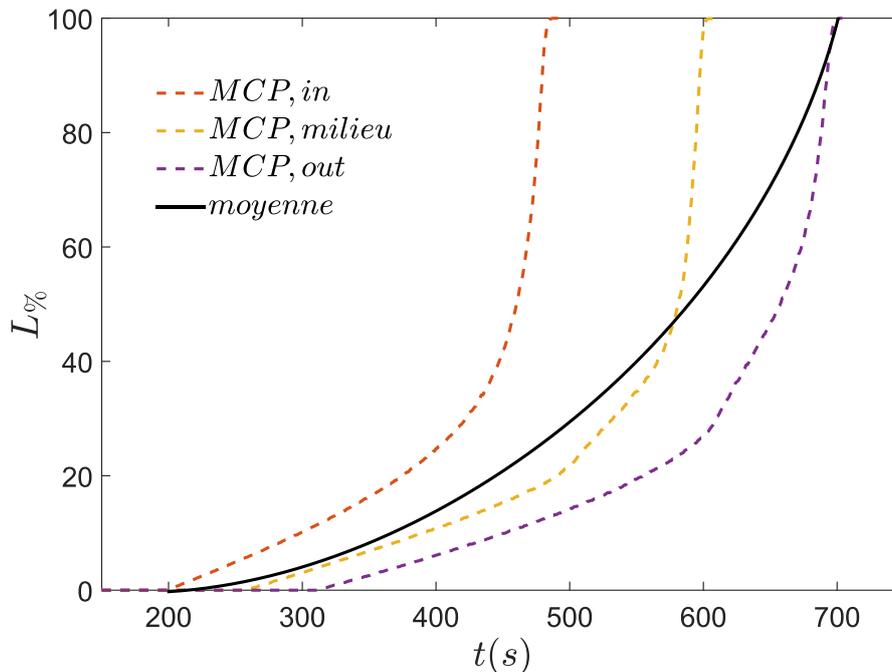
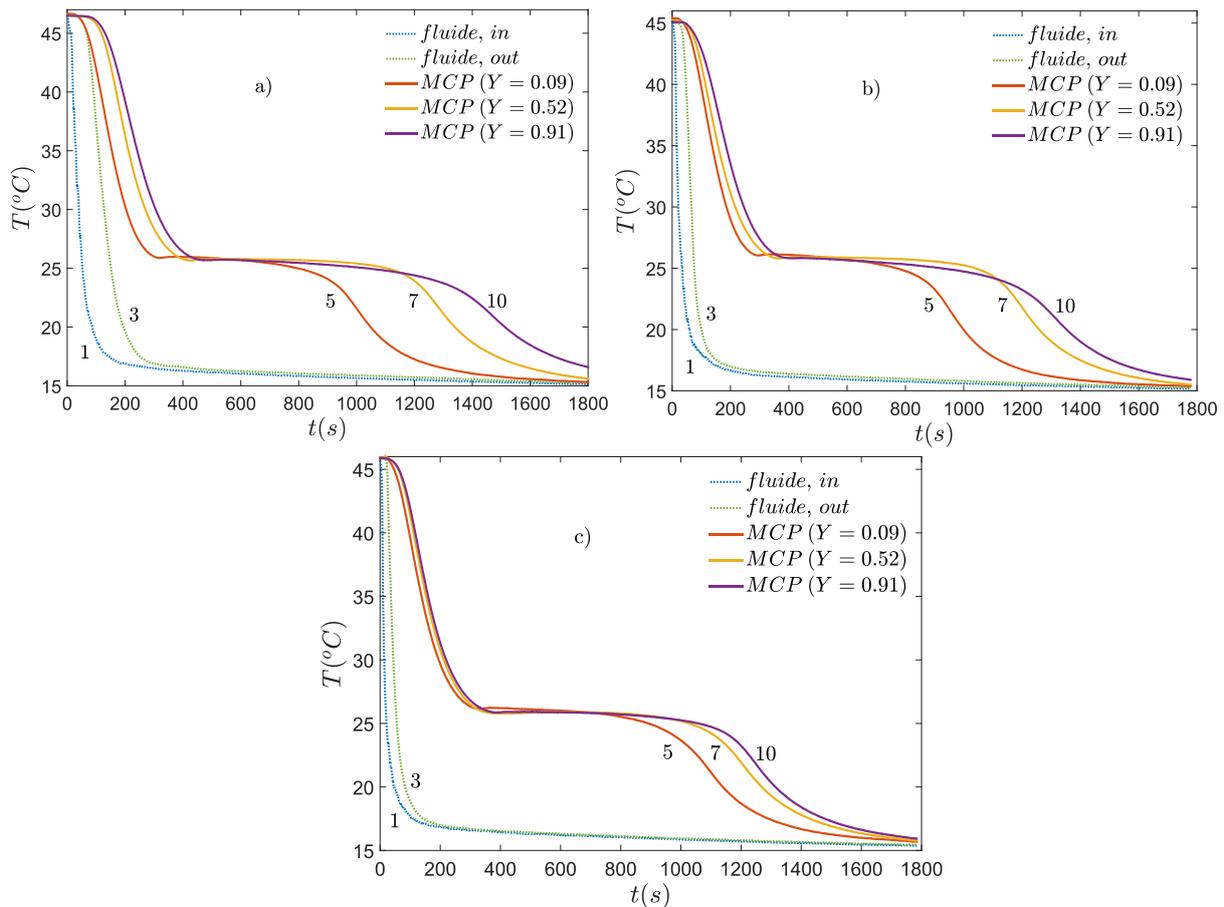


Figure 11 – Evolution de l'enthalpie latente (en %) emmagasinée lors d'une charge thermique

### Chapitre III. Transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP : étude expérimentale

Les 3 courbes (en traits pointillés) ont des évolutions équivalentes en ce sens que leur croissance s'intensifie à mesure que le temps augmente. Cette intensification est d'ailleurs significative à partir de 50%. La courbe noire, en trait plein, est une estimation de l'évolution de  $L\%$  moyenne stockée dans la batterie. D'après la Figure 11,  $L\%$  moyenne atteint 100% à  $t=700s$ , ce qui signifie que la chaleur latente est entièrement stockée dans la batterie.

La Figure 12 présente l'évolution de la température du MCP en phase de déstockage à différents endroits au sein de la batterie en fonction du temps, et pour différents débits. La température initiale du lit est de  $45^{\circ}C$  et la décharge s'effectue à  $15^{\circ}C$ .



**Figure 12 - Evolution de la température du MCP en phase de déstockage pour des débits de a) 130 L/h; b) 250 L/h; c) 450 L/h**

Comme pour le stockage, le déstockage thermique s'effectue en 3 étapes. Tout d'abord, la température du MCP commence par décroître fortement sur l'intervalle [ $45^{\circ}C - 26^{\circ}C$ ]. Puis, elle se stabilise lors de la solidification du MCP présentant cette fois-ci un plateau apparent avec une plus grande longueur, comparativement au stockage. Enfin, elle décroît de nouveau fortement jusqu'à atteindre la température de consigne.

On suppose que le plateau a une plus grande longueur pour deux raisons. La première est le flux échangé entre le fluide et le MCP qui est moins élevé lors de la décharge, puisque la différence entre la température de changement de phase ( $27^{\circ}C$ ) et la température de consigne ( $15^{\circ}C$ ) est de  $12^{\circ}C$  alors qu'elle est de  $18^{\circ}C$  lors de la charge. La deuxième raison est la rétraction volumique du RUB 10 lors de la décharge qui engendre des zones inoccupées

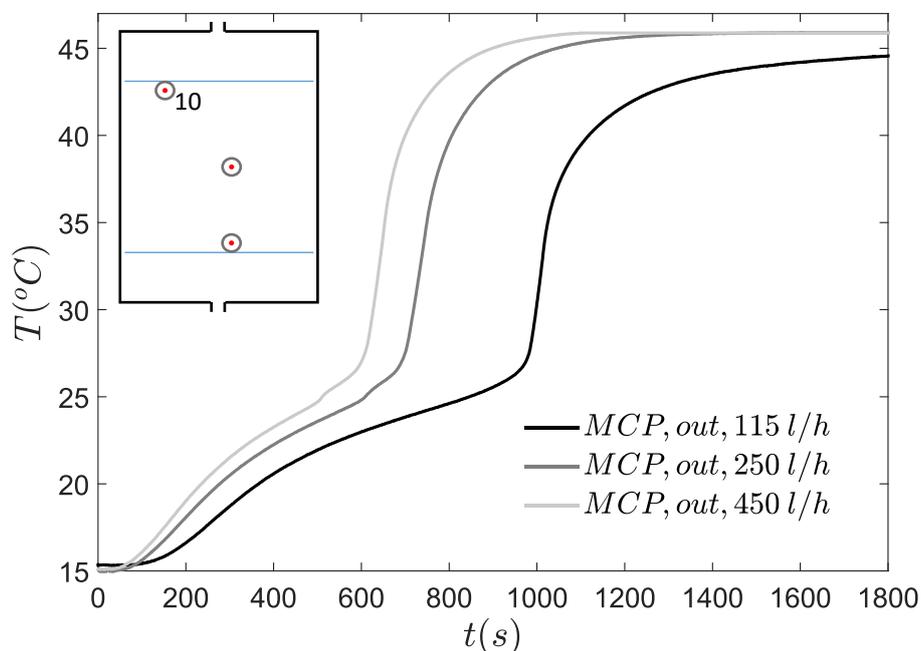
dans les billes entraînant une résistance thermique de conduction. Par conséquent, la longueur du plateau est causée par des transferts thermiques plus faibles en phase de déstockage.

On peut également noter que la surfusion est quasi inexistante quel que soit le débit d'entrée, principalement en raison de la nature du MCP qui, rappelons-le, est une paraffine mélangée à une matrice polymère.

## 4.2 Influence du débit

On souhaite étudier l'influence du débit sur l'évolution de la température du MCP au sein de la batterie en phase de stockage et déstockage.

La Figure 13 présente les profils de température du MCP (thermocouple n°10) en phase de stockage en sortie de la batterie en fonction du temps, et pour différents débits.



*Figure 13 – Evolution de la température du MCP en sortie de la batterie – phase de stockage*

Les 3 courbes évoluent de la même manière ; seule leur vitesse de progression diffère. On peut noter que plus le débit du fluide augmente et plus l'évolution de la température du MCP est rapide, autrement dit, la charge thermique s'effectue plus vite. Ce constat semble instinctif puisque les transferts thermiques s'effectuent plus rapidement lorsque le débit augmente. Ce qui l'est moins en revanche, est qu'une augmentation importante du débit n'implique pas nécessairement un effet significatif sur le temps de charge. D'ailleurs, ceci nous incite à penser qu'il y aurait certainement une valeur de débit limite, au-delà de laquelle le temps de charge ne diminuerait plus.

La Figure 14 présente les profils de température du MCP en phase de déstockage en sortie de la batterie en fonction du temps, et pour différents débits.

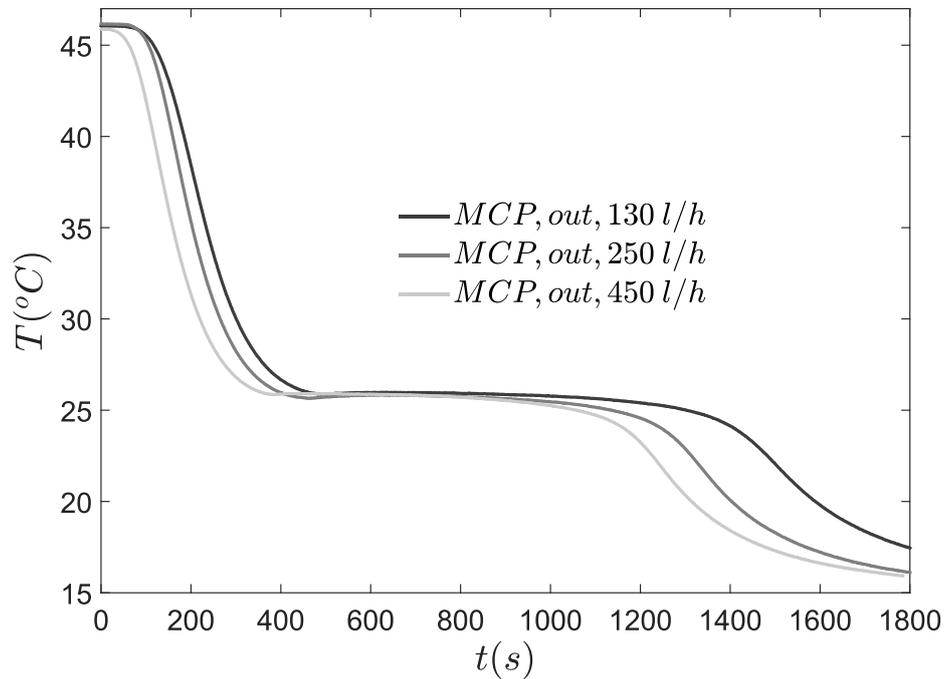


Figure 14 - Evolution de la T°C du MCP en sortie de la batterie en fonction du temps – phase de déstockage

Comme vu précédemment, la décharge thermique s'effectue plus rapidement à mesure que le débit augmente mais que son impact n'est pas significatif pour des débits importants. On peut également noter que pour les 3 courbes le plateau se forme à la même température, à savoir 26°C.

### 4.3 Influence de la température d'entrée du fluide

Cette partie vise à évaluer l'influence de la température d'entrée du fluide caloporteur sur le stockage thermique. La Figure 15 illustre l'évolution de la température du MCP en sortie de la colonne en fonction du temps lors d'une charge thermique, pour un débit de 250L/h.

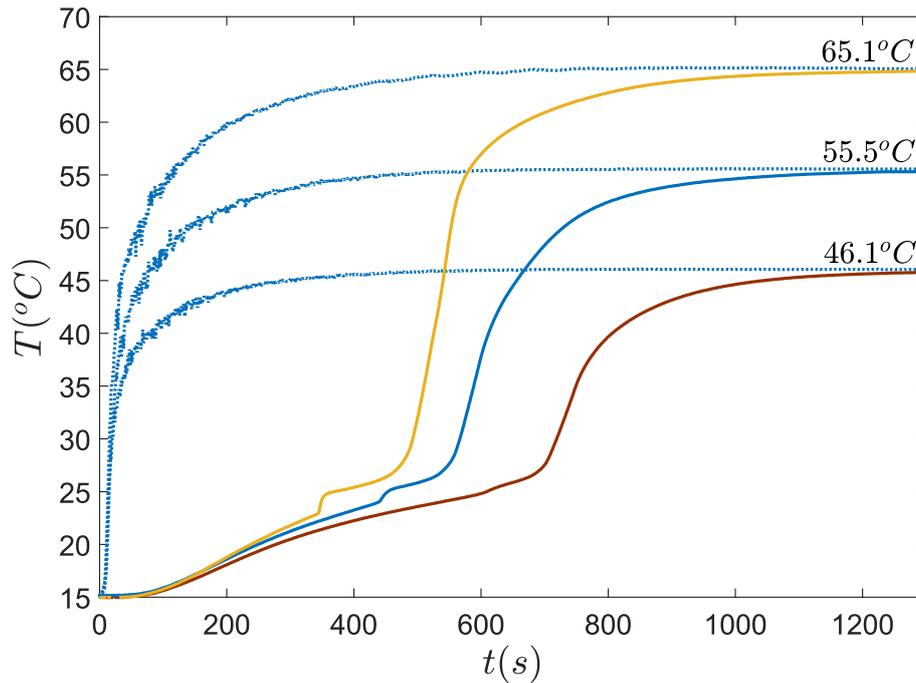


Figure 15 - Thermogrammes du MCP en sortie de colonne lors d'une charge thermique pour différentes  $T^{\circ}C$  d'entrée du fluide

La température initiale pour les 3 expériences est de  $15^{\circ}C$  et la température d'entrée du fluide caloporteur est représentée par les courbes bleues en trait pointillés.

On remarque assez clairement que la longueur du pseudo-plateau diminue à mesure que la température d'entrée du fluide augmente, signifiant que la charge thermique s'effectue plus rapidement. Ceci s'explique par une augmentation des transferts thermiques due à une différence de température plus élevée entre le fluide et le MCP. De plus, on s'aperçoit qu'une augmentation de la température d'entrée du fluide induit, à la fin du changement de phase, une croissance plus abrupte avant d'atteindre la température de consigne.

Par ailleurs, on observe sur la Figure 15 un phénomène assez singulier, au niveau du pseudo-plateau qui se manifeste par une brusque augmentation de la température sur une plage de quelques degrés lors du changement de phase. Ce phénomène semble s'intensifier à mesure que la température d'entrée du fluide augmente. En effet, le phénomène est inexistant pour une température d'entrée de  $46^{\circ}C$ . Il est légèrement perceptible lorsque la température d'entrée est de  $55^{\circ}C$  et il est entièrement visible lorsque la température d'entrée est fixée à  $65^{\circ}C$ . Ce phénomène n'apparaît que lors d'une charge thermique.

#### 4.4 Phénomène de décrochage

Afin de bien comprendre le phénomène physique mis en jeu, nous avons évalué le comportement thermique du MCP dans toute la batterie pour une température d'entrée du fluide de  $65^{\circ}C$ . La Figure 16 montre l'évolution de ces thermogrammes à différentes hauteurs au sein de la colonne en fonction du temps lors d'une charge thermique.

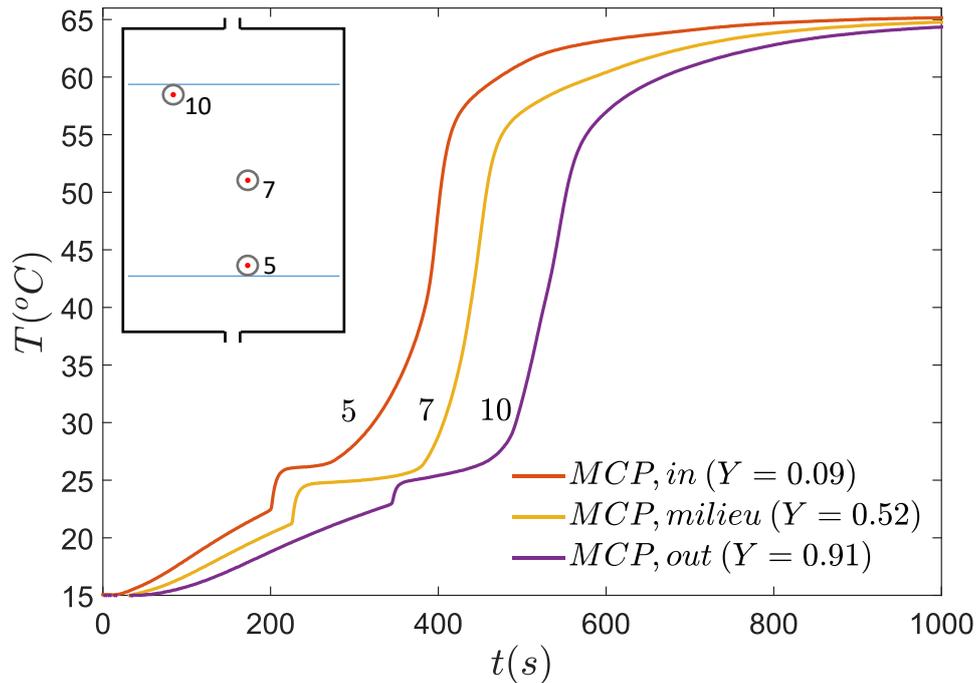


Figure 16 - Thermogrammes du MCP au sein de la colonne lors d'une charge thermique à  $65^{\circ}\text{C}$

Les résultats indiquent clairement que le phénomène n'est pas anodin car il se manifeste dans toute la colonne à différentes hauteurs. Ce phénomène apparaît uniquement en phase de fusion. La question est désormais de découvrir son origine.

D'après la Figure 16, on constate qu'une augmentation abrupte de la température se manifeste dans la gamme de température relative au changement d'état. De cette augmentation s'ensuit un palier de changement de phase.

L'hypothèse est la suivante : la densité du MCP solide étant supérieure à celle du MCP liquide, il se produirait un phénomène de décrochage de la partie solide le long du thermocouple à l'intérieur de la bille. Pour expliquer le phénomène, on se propose de décrire schématiquement un scénario possible illustrée en Figure 17.

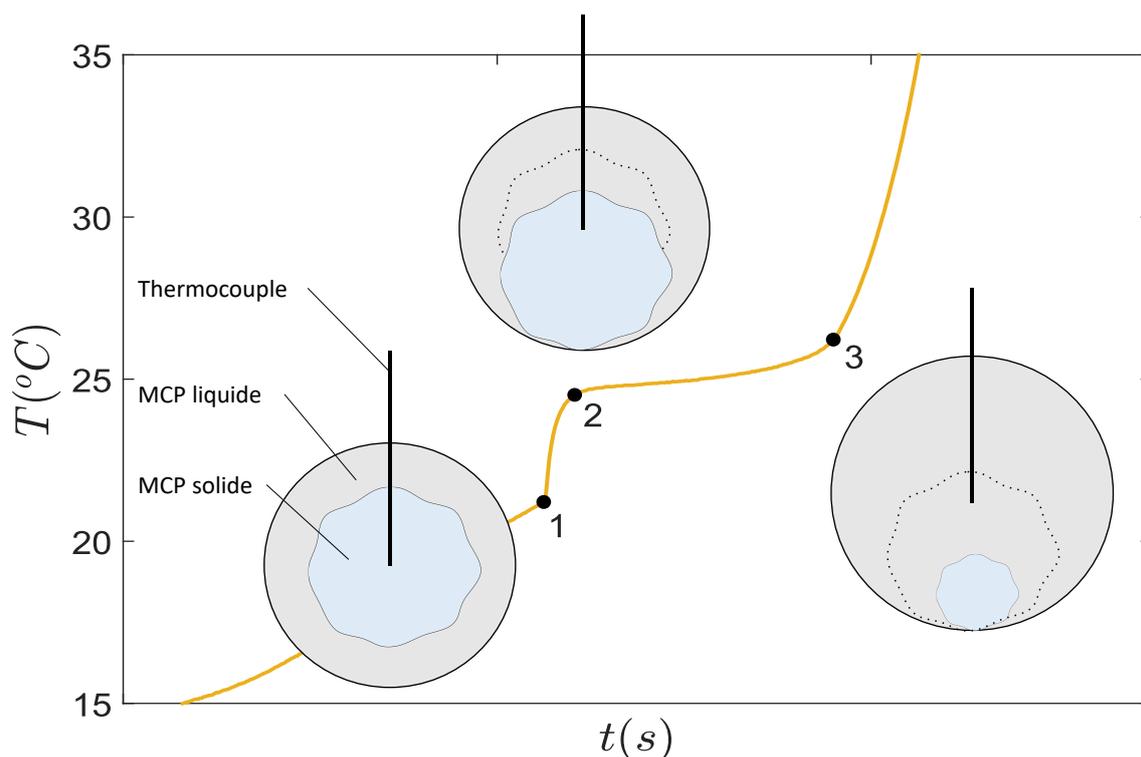


Figure 17 – Schéma explicatif du scénario probable de décrochage, suivant l'évolution de la température du thermocouple

Avant que la température n'atteigne le point 1, le matériau commence à fondre au niveau de la paroi créant une couche de MCP liquide sur toute la périphérie. Puis une fois le point 1 atteint, le MCP solide (« glaçon ») qui est resté jusque-là accroché au thermocouple chute brutalement, ce qui explique le saut en température jusqu'au point 2. Enfin, le MCP solide continue son processus de fusion qui se manifeste par un palier (évolution du point 2 au point 3). Au point 3, le thermocouple est uniquement entouré de MCP liquide.

En outre, la température de transition gel-liquide  $T_g$  du RUB 10 étant de  $45^\circ\text{C}$ , au-delà de cette température le MCP perd sa rigidité et son aspect gélifiant, ce qui favorise les déplacements au sein de la bille. Par conséquent, plus la température du matériau est supérieure à la température de transition gel-liquide  $T_g$  et plus le phénomène de décrochage est important (cf. Figure 15).

Dans l'optique de confirmer cette hypothèse, nous envisageons par la suite de mettre en place un dispositif valide qui permettrait d'observer visuellement le phénomène à l'aide d'une caméra.

## 4.5 Durée de stockage

On définit la durée de stockage  $t_s$  comme étant la durée entre le moment où la température du MCP en entrée de la colonne atteint  $T_{onset,m} = 20,7^\circ\text{C}$  et le moment où la température du MCP en sortie atteint  $40^\circ\text{C}$ , température pour laquelle le MCP est totalement liquide. Par conséquent, sur cet écart de température la chaleur latente est entièrement stockée

dans la batterie. La Figure 18 présente l'évolution de la durée de stockage  $t_s$  en fonction du débit pour différentes températures d'entrée de fluide  $T_{f,in}$ .

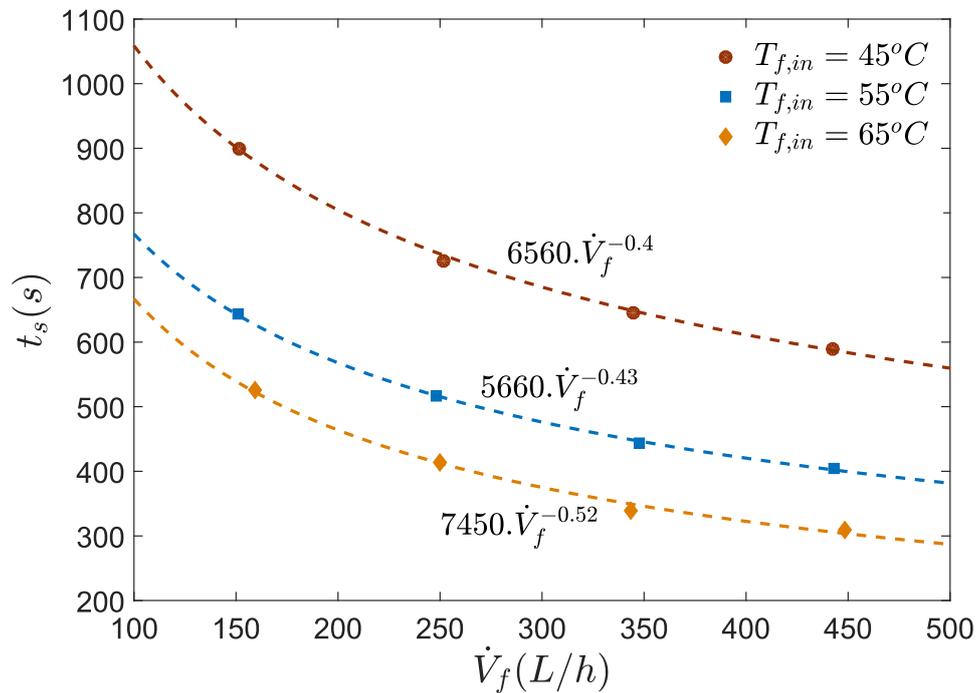
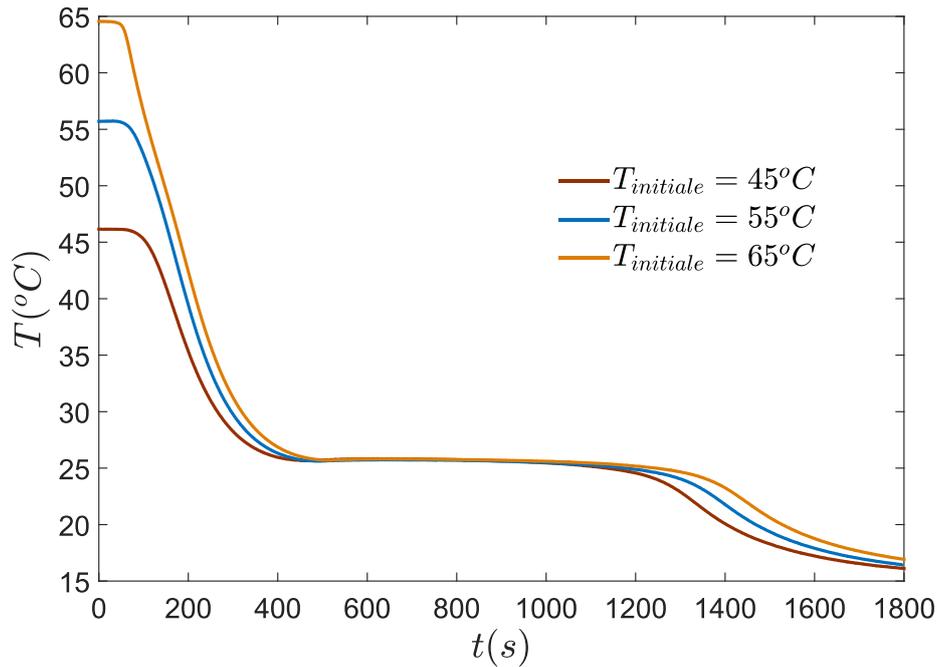


Figure 18 - Variations de  $t_s$  en fonction du débit

Les données expérimentales ont été approximées par des courbes de tendance en loi de puissance négative de type  $\alpha\dot{V}_f^{-\beta}$ . En observant ces lois, tout laisse à penser que la valeur de  $\beta$  augmente à mesure que la température d'entrée du fluide  $T_{f,in}$  augmente. On note que les 3 courbes sont décroissantes et qu'elles offrent un bon accord avec les points obtenus. A partir de ces résultats, on atteste de nouveau que l'augmentation du débit accélère les transferts thermiques et donc de ce fait, réduit la durée de stockage  $t_s$ . De plus, nous observons qu'une augmentation de  $T_{f,in}$  implique une diminution assez conséquente de la durée de stockage  $t_s$ , ce qui vient confirmer le constat fait dans la partie 4.3.

## 4.6 Influence de la température initiale

Cette partie vise à évaluer l'influence de la température initiale de la batterie sur le déstockage thermique. La Figure 19 illustre l'évolution de la température du MCP en sortie de la colonne en fonction du temps lors d'une décharge thermique, pour un débit de 250 L/h.



**Figure 19 - Thermogrammes du MCP en sortie de colonne lors d'une décharge thermique**

Les courbes évoluent de manière totalement analogue tout au long de la décharge. Elles commencent par décroître puis, se stabilisent exactement à la même température lors de la solidification pour former le plateau de changement d'état. Elles diffèrent uniquement sur le temps de décharge qui est légèrement retardé à mesure que la température initiale soit élevée. Par conséquent, la température initiale n'a pas de grande influence sur le déstockage thermique de la batterie.

## 4.7 Durée de déstockage

On définit la durée de déstockage  $t_d$  comme étant la durée entre le moment où la température du MCP en entrée de la colonne atteint  $T_{onset,c} = 26,5^{\circ}C$  et le moment où la température du MCP en sortie atteint  $T_{endset,c} = 21,2^{\circ}C$ . Sur cet écart de température, la chaleur latente est déstockée à 100%.

La Figure 20 présente l'évolution de la durée de déstockage  $t_d$  en fonction du débit pour différentes températures initiales de la batterie.

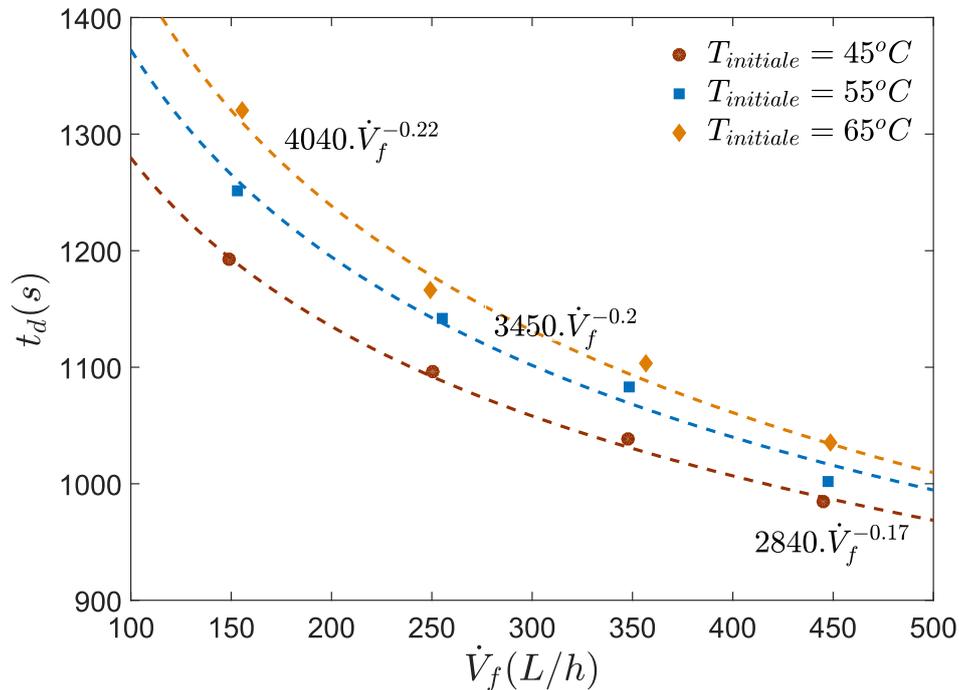


Figure 20 - Variations de  $t_d$  en fonction du débit

Comme pour la durée de stockage  $t_s$ , nous avons approximé nos données par des courbes de tendance en loi de puissance négative de type  $\alpha \dot{V}_f^{-\beta}$ . La valeur de la puissance augmente à mesure que la température  $T_{initiale}$  augmente. Les 3 courbes sont décroissantes et présentent un bon accord avec les données expérimentales. On peut également affirmer qu'une augmentation du débit implique une diminution de la durée de déstockage  $t_d$ , ce qui semble instinctif. De plus, il est à noter qu'une température  $T_{initiale}$  plus élevée n'a que très peu d'impact sur la durée de déstockage  $t_d$ .

## 4.8 Pertes de charge

Dans ce type de système où un fluide traverse un milieu poreux, le calcul des pertes de charge est nécessaire notamment pour évaluer la résistance à la pression des parois de la batterie mais également pour estimer la puissance mécanique de la pompe à fournir. Un paragraphe est consacré aux pertes de charge au sein des lits de particules dans le chapitre IV.

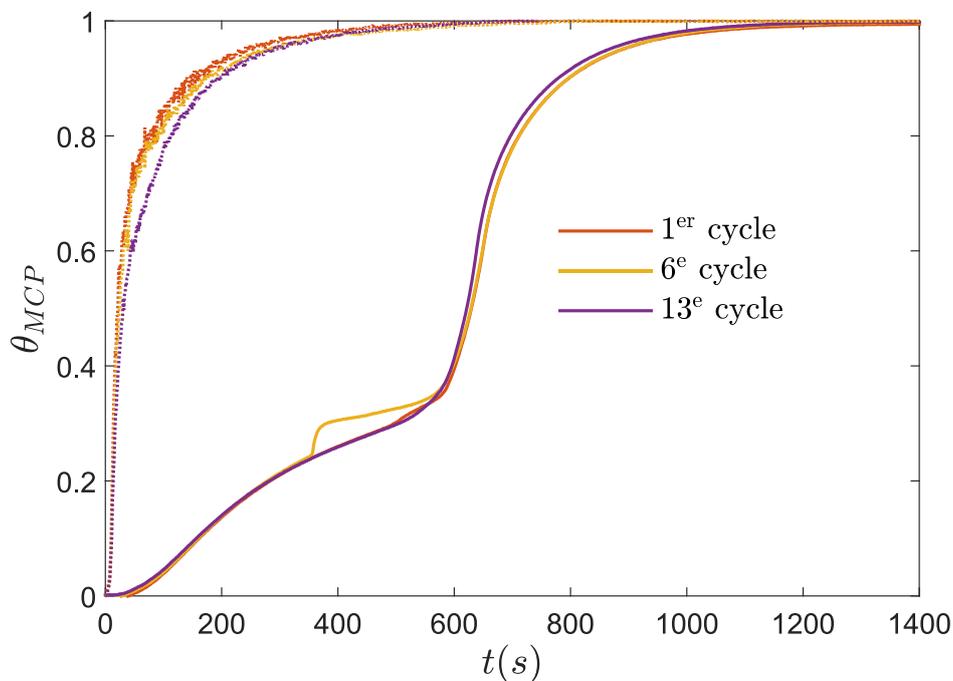
Nous avons étudié les pertes de charge aussi bien lors de la charge que de la décharge thermique et ce, pour plusieurs débits (150 à 450 L/h). Les pertes de charges ont été mesurées en évaluant la différence de pression  $\Delta P$  entre l'entrée et la sortie de la batterie. Nous avons obtenu des valeurs de pertes de charge très faibles. Elles oscillent autour de  $\Delta P = 5 \text{ mbar} \pm 2$  pour une phase de stockage et de  $\Delta P = 3 \text{ mbar} \pm 2$  pour une phase de déstockage thermique. La raison provient essentiellement de la configuration du lit qui a une porosité élevée. Ainsi,

le lit de billes ne constitue aucunement un obstacle (en termes de pertes de charge) pour notre dispositif.

## 4.9 Reproductibilité

En vue de s'assurer de la reproductibilité de nos expériences, un test de cyclage a été réalisé aussi bien pour le processus de stockage que de déstockage thermique. Un cycle représente une charge suivi d'une décharge complète. Tous les cycles réalisés dans un test de cyclage sont expérimentés dans les mêmes conditions, à savoir un débit de 250 L/h, une température initiale dans la batterie  $T_{initiale} = 15^{\circ}\text{C}$  et une température d'entrée de fluide  $T_{f,in} = 45^{\circ}\text{C}$ .

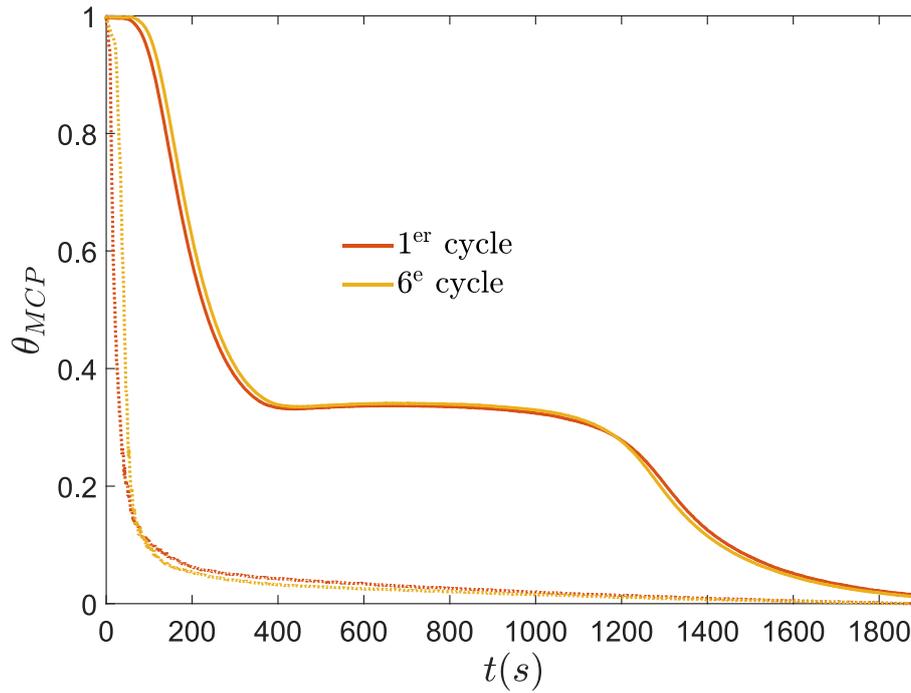
La Figure 21 montre les profils de température adimensionnée du MCP au milieu de la batterie ( $Y=0,52$  et thermocouple n°7) et du fluide en entrée (thermocouple n°1), en fonction du temps lors d'une charge thermique.



*Figure 21 - Profils de  $T^{\circ}\text{C}$  du MCP (trait plein) et du fluide (trait pointillés) pour différents cycles lors d'une charge thermique*

Bien qu'un phénomène de décrochage ait eu lieu lors du 6ème cycle, la superposition uniforme de ces 3 courbes indique clairement que le lit de billes n'est pas affecté par le cyclage et que par conséquent, nos expériences peuvent être considérées comme reproductibles.

La reproductibilité est également prouvée pour un processus de déstockage avec la Figure 22 qui illustre les profils de température du MCP adimensionnée en sortie de la batterie ( $Y=0,91$  et thermocouple n°10) et du fluide en entrée, en fonction du temps lors d'une décharge thermique.



*Figure 22 - Profils de T°C du MCP (trait plein) et du fluide (trait pointillés) pour différents cycles lors d'une décharge thermique*

Il s'observe de manière manifeste que les courbes de décharge se confondent presque parfaitement.

Ainsi, nous pouvons conclure que, hormis le phénomène de décrochage susceptible de se manifester lors d'une charge thermique, toute expérience testée sur ce dispositif est considérée comme reproductible aussi bien pour la charge que pour la décharge.

## 5 Conclusion et perspectives

Une plateforme de simulation constituée d'une batterie thermique, élément central du système, renfermant des billes de MCP a été développée dans cette étude.

Le MCP sélectionné est du Rubitherm RT 27. Afin de prévenir les fuites à l'intérieur des billes, le MCP a été emprisonné dans une matrice polymère pour former du RUB 10. Ce dernier a ensuite été introduit à chaud dans des billes de diamètre 20mm.

Ce chapitre a permis de valider notre prototype de batterie thermique et d'analyser ses performances comme la durée de stockage  $t_s$  et les pertes de charge  $\Delta P$  de la batterie à travers différents paramètres tels que le débit du fluide  $\dot{V}_f$ , la température d'entrée  $T_{f,in}$  et la température initiale  $T_0$  du fluide.

Plusieurs expériences ont été réalisées. Les principaux résultats indiquent :

- Augmentation du débit => charge/décharge thermique plus rapide ;
- Augmentation de la température d'entrée du fluide => charge thermique plus rapide
- Les durées de stockage  $t_s$  et déstockage  $t_d$  suivent des courbes de lois en  $\alpha \dot{V}_f^{-\beta}$
- Pertes de charge quasi nulles
- Phénomène de décrochage

Un phénomène assez singulier que l'on nomme « phénomène de décrochage » apparaît lors d'une charge thermique pendant la transition de phase du MCP. Elle se manifeste par une brusque augmentation de la température. En raison d'une densité du MCP solide plus élevée, on émet l'hypothèse d'une chute brutale de la phase solide le long du thermocouple qui serait à l'origine de cette variation abrupte de la température. Nous envisageons à l'avenir de confirmer cette hypothèse en réalisant un dispositif qui permettrait l'observation de ce phénomène.

A terme, le but est d'intégrer du MCP d'origine végétale à haut point de fusion (70°C) dans notre dispositif afin de répondre aux enjeux de notre étude.

La prochaine étape consiste à faire varier les paramètres physiques influant sur les transferts de chaleur dans l'optique d'optimiser les performances dynamiques et thermiques de la batterie. Pour ce faire, nous allons développer une simulation numérique que nous présenterons dans le chapitre V.

# **Chapitre IV**

**Ecoulement et transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP : théorie et état de l'art**



## Table des matières

1	Introduction.....	103
2	Structure du remplissage.....	104
2.1	Porosité du lit.....	104
2.2	Effet de paroi .....	106
2.3	Influence de la forme des particules .....	107
3	Lois de pertes de charges .....	108
3.1	De la loi de Darcy à Ergun .....	109
3.2	Corrélations diverses .....	110
4	Modèles de transferts thermiques .....	112
4.1	Modèle homogène .....	113
4.2	Modèle hétérogène .....	115
4.2.1	Modèle de Schumann .....	115
4.2.2	Modèle de diffusion concentrique.....	116
4.2.3	Modèle continu à phase solide .....	119
4.3	Etude comparative de modèles .....	122
4.4	Autres approches .....	124
5	Conclusion .....	125
	Bibliographie.....	126



## Nomenclature

$R$	rayon du lit	$m$
$D$	diamètre du lit	$m$
$d_p$	diamètre de la particule	$m$
$R_i$	rayon interne de la zone annulaire	$m$
$R_0$	rayon externe de la zone annulaire	$m$
$U$ ou $u_f$	vitesse du fluide	$m.s^{-1}$
$\rho$	masse volumique	$kg.m^{-3}$
$\mu$	viscosité dynamique	$Pa.s$
$\lambda$	conductivité thermique	$W.m^{-1}.K^{-1}$
$\varphi$	sphéricité	-
$J_0$	fonction de Bessel de 1 <sup>ère</sup> espèce	

### *Symboles grecs*

$\varepsilon$	porosité du lit
$\varepsilon_b$	porosité du remplissage ( <i>bulk porosity</i> )
$\varepsilon_{min}$	porosité minimum dans la zone proche de la paroi

### *Indices et exposants*

$f$	fluide
$p$	particule



## **1 Introduction**

Au sein des lits de particules de MCPs, les transferts de chaleur et de masse sont des procédés particulièrement complexes car ils mettent en jeu de la mécanique des fluides au sein d'un milieu à deux phases (liquide et solide) en y associant du transfert de chaleur avec changement d'état.

Ce chapitre vise à présenter les caractéristiques essentielles et les phénomènes mis en jeu au sein des lits fixes de particules. Dans un premier temps il s'attachera à décrire la structure du remplissage d'un lit faisant intervenir un certain nombre de paramètres tels que la porosité, l'effet de paroi et l'influence de la forme des particules. Puis, il évoquera l'étude des lois et corrélations des pertes de charge pour un milieu poreux. Enfin, la dernière partie sera consacrée exclusivement aux modèles de transferts thermiques au sein des lits fixes de particules de MCPs et à leurs études numériques associées.

## 2 Structure du remplissage

La structure du remplissage a une grande influence sur les propriétés locales du liquide et sur les transferts de masse et de chaleur. C'est la raison pour laquelle, avant toutes analyses sur les transferts de masse et de chaleur, il est essentiel d'avoir une bonne compréhension de la répartition spatiale du lit de particules. Ainsi, dans un premier temps, il est primordial d'évaluer la porosité et d'établir une fonction de répartition via un certain nombre de paramètres et de conditions. La fonction ainsi établie, s'intégrera dans la théorie du remplissage pour le lit granulaire étudié. Une petite erreur sur les valeurs de porosité peut avoir de grosses conséquences sur les pertes de charges à calculer [1].

La structure du remplissage au sein d'un lit granulaire fixe possède trois paramètres géométriques importants : le diamètre de la particule (ou diamètre équivalent), la forme de la particule et la surface spécifique. Le diamètre équivalent a pour objectif de comparer la structure du remplissage avec des particules ayant des géométries distinctes (cylindrique, cubique...) [2].

### 2.1 Porosité du lit

La porosité est définie comme étant le rapport entre le volume du fluide sur le volume total. D'après De Klerk (2003) [3], la porosité du lit peut être affectée par le mode de remplissage, par le rapport entre le diamètre du lit et le diamètre de la particule  $D/d_p$ , par la forme, la taille et la surface des particules et par la hauteur du lit. Compte tenu de l'importance de la porosité  $\varepsilon$  sur beaucoup de paramètres et du phénomène relativement aléatoire de la distribution des particules au sein du lit, des méthodes ont été adoptées afin de rendre le plus précis possible le calcul de la porosité.

Dans notre étude, nous nous intéresserons particulièrement au lit de particules sphériques. Van Antwerpen et al. (2010) [4] ont répertorié dans un article de revue les différentes corrélations qui décrivent l'évolution de la porosité  $\varepsilon$  au sein des lits de particules sphériques. Quelques corrélations sont présentées dans les Tableaux 1 et 2. Elles sont divisées en deux catégories : les modèles oscillatoires, décrits pour la plupart par des fonctions de Bessel, et les modèles exponentiels basés sur les variations de la porosité moyenne du lit. Toutes les corrélations traitent de l'effet de paroi sur la porosité. Ainsi, la porosité  $\varepsilon$  dépend du rayon  $r$  du lit.

Chapitre IV : Ecoulement et transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP :  
théorie et état de l'art

Auteurs	Corrélation	Paramètres
	Cylindrique	$x = 2 \frac{R-r}{d_p} - 1$
Martin (1978) [5]	$\varepsilon(x) = \begin{cases} \varepsilon_{\min} + (1 + \varepsilon_{\min})x^2 & -1 \leq x \leq 0 \\ \varepsilon_b + (\varepsilon_{\min} - \varepsilon_b)e^{-x/4} \cos\left(\frac{\pi}{C}x\right) & x > 0 \end{cases}$	$C = \begin{cases} 0.816 & D/d_p = \infty \\ 0.876 & D/d_p = 20.8 \end{cases}$ $\varepsilon_{\min} = [0.20 - 0.26]$
	Cylindrique	$a = \begin{cases} 7.45 - \frac{3.15}{D/d_p} & 2.02 \leq D/d_p \leq 13 \\ 7.45 - \frac{11.25}{D/d_p} & 13 < D/d_p \end{cases}$
Mueller (1992) [6]	$\varepsilon(r) = \varepsilon_b + (1 - \varepsilon_b)J_0\left(a \frac{r}{d_p}\right)e^{-b \frac{r}{d_p}}$	$b = 0.315 - \frac{0.725}{D/d_p}$ $\varepsilon_b = 0.365 + \frac{0.22}{D/d_p}$
	Annulaire	
De Klerk (2003) [3]	$\varepsilon(z) = 2.14z^2 - 2.53z + 1 ; z \leq 0.637$ $\varepsilon(z) = \varepsilon_b + 0.29e^{-0.6z} [\cos(2.3\pi(z - 0.16))] + 0.15e^{-0.9z}$ $z > 0.637$	$z = \frac{r - R_i}{d_p} ; R_i \leq r \leq \frac{R_0 + R_i}{2}$ $z = \frac{R_0 - r}{d_p} ; \frac{R_0 + R_i}{2} \leq r \leq R_0$

Tableau 1 - Corrélations pour des variations oscillatoires de la porosité dans la direction radiale

Auteurs	Corrélation	Paramètres
	Annulaire	
White and Tien (1987) [7]	$\varepsilon(r) = \left[ 1 + \left( \frac{1 - \varepsilon_b}{\varepsilon_b} \right) \sqrt{1 - \exp\left(-2 \frac{r - R_i}{d_p}\right)} \right]^{-1}$ $\varepsilon(r) = \left[ 1 + \left( \frac{1 - \varepsilon_b}{\varepsilon_b} \right) \sqrt{1 - \exp\left(-2 \frac{R_0 - r}{d_p}\right)} \right]^{-1}$	$R_i \leq r \leq \frac{R_0 + R_i}{2}$ $\frac{R_0 + R_i}{2} \leq r \leq R_0$

Tableau 2 - Corrélation pour des variations exponentielles de la porosité moyenne dans la direction radiale

Par ailleurs, la plupart des corrélations trouvées dans la littérature correspondent à des lits dont les diamètres sont bien supérieurs aux diamètres des particules qui les composent mais elles sont souvent inappropriées pour des rapports  $D/d_p < 4$ . [Bai et al. \(2009\) \[1\]](#) ont modélisé numériquement la porosité pour des lits ayant de tels rapports. Les modèles sont appliqués pour des lits de particules sphériques et cylindriques et les résultats affirment l'incompatibilité de la plupart des corrélations empiriques pour des rapports  $D/d_p$  faibles.

Si la plupart des recherches ont été effectuées uniquement sur la dépendance radiale, quelques études ont été néanmoins menées pour évaluer la dépendance axiale (la hauteur) de la porosité. [Zou et Yu \(1995\) \[8\]](#) ont remarqué que dans la plupart des cas, seul l'effet de la paroi était considéré et la dépendance axiale était, à juste titre, négligée. Cependant, lorsque la hauteur du lit est faible, ils estiment que la dépendance axiale doit être considérée. Les résultats ont montré que la porosité des lits (à forte ou faible densité) commençait à augmenter lorsque  $d_p/H > 0,05$ . Néanmoins, aucune corrélation n'a été établie.

## 2.2 Effet de paroi

Dans un lit de particules, la vitesse locale du fluide est un facteur essentiel pour déterminer les performances globales du lit en termes de coefficients de transfert de chaleur et de masse, de distribution du temps de séjour et de pertes de pression. A proximité de la paroi, la disposition des particules change. Ceci conduit à une porosité élevée qui génère une forte augmentation de la vitesse locale du fluide et qui impacte donc sur les transferts de masse et de chaleur. Par conséquent, dans certains cas, l'hypothèse de l'homogénéité de la vitesse du fluide et de la porosité n'est plus valide [\[9\]](#).

Les pertes de pression pour les écoulements de fluide à travers les lits granulaires sont généralement évaluées grâce à l'équation d'[Ergun \(1952\) \[10\]](#) qui dépend de deux paramètres : la porosité et la vitesse du fluide.

$$\frac{d_p}{\rho_f U^2} \frac{\Delta P}{L} = \left( 150 + 1.75 \frac{\text{Re}}{(1-\varepsilon)} \right) \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 \text{Re}} \quad (1)$$

avec  $\Delta P$  la perte de pression piézométrique,  $U$  la vitesse du fluide,  $\rho_f$  la densité du fluide,  $d_p$  le diamètre de la particule,  $\varepsilon$  la porosité,  $L$  la hauteur du lit et  $\text{Re}$  le nombre de Reynolds modifié défini par :

$$\text{Re} = \frac{\rho_f U d_p}{\mu_f} \quad (2)$$

Cependant, dans le cas des lits où l'effet de paroi n'est pas négligeable, c'est-à-dire lorsque la valeur de la porosité change aux abords de la paroi, l'équation d'Ergun n'est plus valide et doit être modifiée en ajustant ces deux paramètres (cf. partie 3).

[Eisfeld et Schnitzlein \(2001\) \[11\]](#) ont évalué l'effet de la paroi sur les pertes de pression dans les lits granulaires. Dans leur article de revue, ils ont constaté, à travers 24 corrélations différentes que l'approche de [Reichert \[12\]](#) est la plus adaptée pour corriger

l'équation d'Ergun. Ils mettent en évidence l'influence de la paroi qui entraîne une augmentation des pertes de pression dans le régime ultra-laminaire  $Re < 10$  et une diminution dans le régime turbulent, par rapport à un lit de particules identique de hauteur infinie.

A travers la littérature, on note que l'effet de la paroi doit être pris en considération particulièrement pour des rapports  $D/d_p$  suffisamment faibles. [Di Felice et Gibilaro \(2004\) \[13\]](#) ont établi un modèle simple en adaptant l'équation d'Ergun pour des rapports  $D/d_p < 5$ . Les résultats s'accordent avec leur modèle.

[Suzuki et al. \(2008\) \[14\]](#) ont étudié la distribution de la porosité locale près de la paroi des lits de particules cylindriques en utilisant la tomographie aux rayons X commandée par ordinateur. Ils ont mis en exergue l'influence de la paroi sur la distribution de la porosité, notamment la régularité (structure en ligne droite) de la disposition des particules au voisinage de la paroi. La régularité des particules dépend de leur distance à la paroi. Plus la distance est grande et plus la régularité diminue (lignes en zigzag).

### 2.3 Influence de la forme des particules

D'après [Singh et al. \(2006\) \[15\]](#) la forme des particules est un des facteurs importants qui impacte sur les performances d'un lit de particules. Généralement, les études théoriques et numériques au sein des lits fixes sont réalisées avec des remplissages sphériques et leurs évaluations sont jusqu'à ce jour bien élaborées. Par contre, les remplissages de lit fixe avec des particules cylindriques ou autres sont bien moins étudiés et caractérisés. En réalité, si les particules cylindriques sont dans certaines études expérimentales utilisées au détriment des particules sphériques, c'est surtout pour des raisons de simplicité quant à la fabrication. En effet, les particules cylindriques s'extrudent. Cependant, le comportement du remplissage cylindrique est totalement différent d'un remplissage sphérique puisque les cylindres ont des libertés d'orientation et leur surface n'est pas uniforme (surface plane, courbe ou angulaire). Ces différences sont d'ailleurs clairement mises en évidence dans la littérature avec des valeurs de porosité qui varient de  $\varepsilon = 0,25$  [\[16\]](#) à  $\varepsilon = 0,445$  [\[17\]](#) pour un remplissage cylindrique : une gamme de valeurs beaucoup plus grande que pour des sphères.

[Singh et al. \(2013\) \[18\]](#) ont effectué une étude expérimentale sur les transferts thermiques d'un lit granulaire de porosité faible composé de particules de stockage de différentes tailles, c'est-à-dire de sphéricités différentes. La sphéricité est définie comme suit :

$$\varphi = \frac{A_{sp}}{A_p} \quad (3)$$

avec  $A_{sp}$  la surface de la sphère de même volume que la particule et  $A_p$  la surface de la particule. La vitesse du fluide, la porosité  $\varepsilon$  et la sphéricité  $\varphi$  sont les paramètres qui influent grandement sur le nombre de Nusselt  $Nu$  et sur le coefficient de frottement  $f$ .

La Figure 1 montre l'influence de la sphéricité  $\varphi$  sur le nombre de Nusselt  $Nu$  pour une porosité  $\varepsilon = 0,275$ .

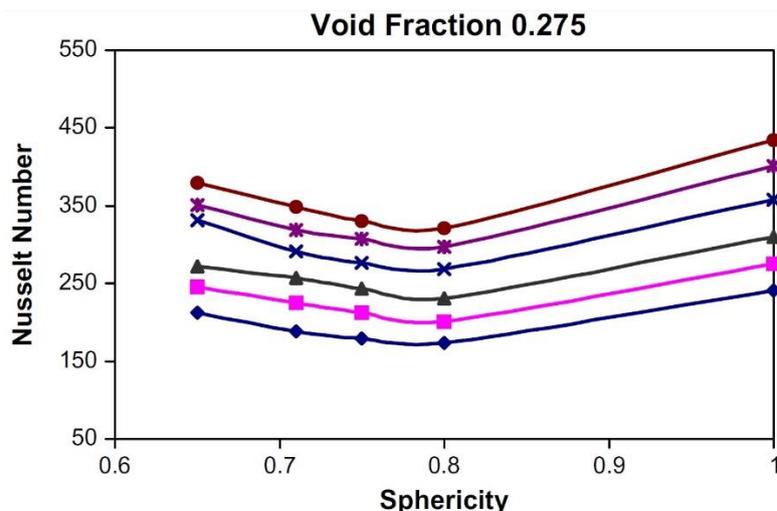


Figure 1 - Variation du nombre de Nusselt en fonction de la sphéricité pour des valeurs de Reynolds différentes et pour une porosité  $\varepsilon = 0.275$  [18]

La valeur maximale obtenue pour un nombre de Nusselt  $Nu$  correspond aux éléments dont la sphéricité  $\varphi = 1$  (sphère) alors que les valeurs minimales s'obtiennent pour les éléments dont  $\varphi = 0,8$  (cube).  $Nu$  est maximal pour des particules sphériques (sphéricité  $\varphi = 1$ ) et pour une porosité minimale  $\varepsilon = 0,275$ .

Le coefficient de frottement  $f$  est minimal pour des particules cubiques (sphéricité  $\varphi = 0,8$ ) et pour une porosité maximale  $\varepsilon = 0,48$ . Des corrélations ont été établies pour obtenir  $Nu$  et  $f$ . On sait que la stratification améliore l'efficacité du système. Or, une diminution de la porosité entraîne une augmentation de la stratification.

Zhang et al. (2006) [19] ont élaboré un algorithme pour reconstruire la structure du remplissage d'un lit en présentant la position locale et l'orientation de chaque particule cylindrique au moyen de la tomographie aux rayons X. Les particules ont tendance à s'aligner orthogonalement en fonction du rayon à mesure que la densité du remplissage augmente. Cette tendance est due à l'effet de paroi.

### 3 Lois de pertes de charges

L'étude des pertes de charges est un des enjeux les plus importants au sein des lits de particules notamment en raison de la résistance de l'écoulement au sein du milieu poreux. Il est indispensable d'établir des expressions pour évaluer les pertes de charge. La modélisation de l'écoulement à travers un milieu poreux est un des plus vieux enjeux pour les ingénieurs et les chercheurs, et continue de l'être aujourd'hui en raison de sa complexité [20].

Un graphe entre les pertes de pression et le diamètre de la particule est présenté en Figure 2. On observe que pour un diamètre de particule spécifique, une augmentation de la vitesse du fluide implique une augmentation des pertes de pression.

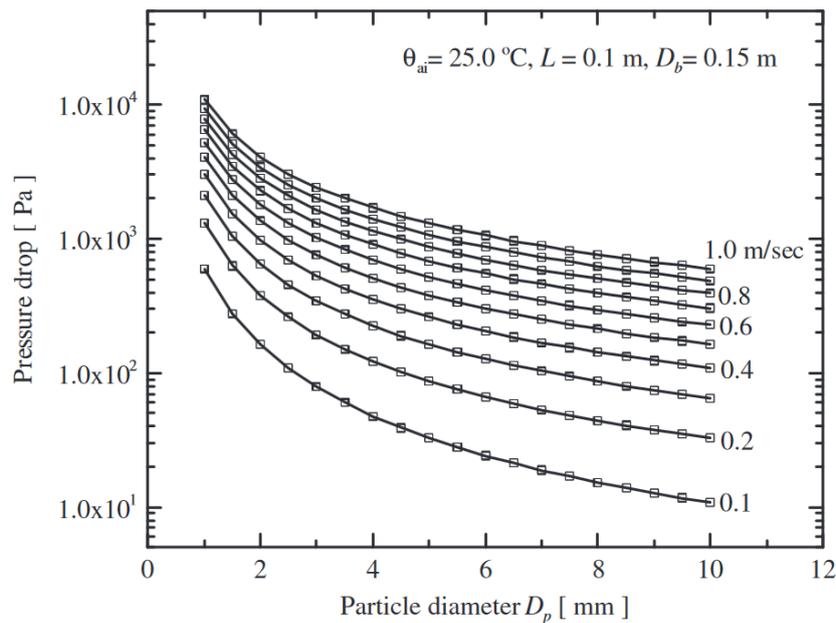


Figure 2 - Pertes de pression au sein d'un lit absorbant d'humidité en fonction du diamètre de la particule pour différentes vitesses d'écoulement [21]

### 3.1 De la loi de Darcy à Ergun

A l'origine, la première théorie qui met en relation les pertes de charge avec la vitesse de l'écoulement dans un milieu poreux est la loi de Darcy énoncée en 1856 dans son célèbre ouvrage [22]. Par la suite, cette loi se verra transformée par les équations de Kozeny-Carman qui présentent des expressions générales pour déterminer les pertes de pression par rapport à la porosité du milieu et aux caractéristiques du matériel composant le lit [23].

Cependant, ces lois s'appliquent uniquement à des écoulements de faibles débits car elles prennent seulement en considération les effets visqueux. Par la suite, en 1930, Forchheimer [24] a proposé une correction à la théorie de Darcy appelé théorie de Darcy-Forchheimer en prenant en compte, outre les effets visqueux, les effets inertiels de l'écoulement. Ainsi, la perte de charge est la somme d'un terme visqueux caractérisé par la dépendance linéaire de la vitesse de l'écoulement et d'un terme inertiel caractérisé par la dépendance de degré nième de la vitesse de l'écoulement, comme suit :

$$\frac{\Delta P}{L} = \alpha U + \alpha' U^n \quad (4)$$

avec  $\Delta P$  la perte de pression piézométrique,  $L$  la hauteur du lit,  $U$  la vitesse moyenne de l'écoulement sur la section de passage,  $\alpha$  et  $\alpha'$  deux paramètres empiriques.

Le premier terme de l'équation 4 est prédominant pour des débits d'écoulement faibles où les pertes sont principalement dues au frottement de surface entre le solide et le fluide tandis que le second terme sera prédominant pour des débits d'écoulement importants où les pertes sont essentiellement dues aux tourbillons de turbulence causés par la contraction et

l'élargissement de l'écoulement. Une des formes particulières de l'équation de Darcy-Forchheimer, sans doute la plus connue et la plus utilisée par les ingénieurs et les chercheurs pour évaluer les pertes de charges dans les lits de particules est l'équation d'Ergun [10] :

$$\frac{\Delta P}{L} = \frac{150\mu_f (1-\varepsilon)^2}{\varphi_p^2 d_p^2 \varepsilon^3} U + \frac{1.75\rho_f (1-\varepsilon)}{\varphi_p d_p \varepsilon^3} U^2 \quad (5)$$

avec  $U$  la vitesse du fluide,  $\mu_f$  la viscosité dynamique du fluide,  $\rho_f$  la densité du fluide,  $\varepsilon$  la porosité,  $d_p$  le diamètre de la particule et  $\varphi_p$  le facteur de forme de la particule (sphéricité). On l'écrit également sous une forme faisant intervenir le nombre de Reynolds  $Re$  :

$$\frac{d_p}{\rho_f U^2} \frac{\Delta P}{L} = \left( 150 + 1.75 \frac{Re}{(1-\varepsilon)} \right) \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 Re} \quad (6)$$

Ergun a démontré que son équation s'adapte aux sphères, aux cylindres et aux solides broyés pour une large gamme de débits avec une précision acceptable. Il faut noter qu'une petite différence sur la valeur de la porosité peut avoir de grandes conséquences sur les pertes de charges.

### 3.2 Corrélations diverses

Le diamètre d'une particule de forme quelconque est défini en fonction de sa sphéricité :

$$d_p = \frac{6V_p}{A_p \varphi_p} = \frac{6V_p}{A_{sp}} \quad (7)$$

avec  $A_p$  et  $V_p$  respectivement la surface et le volume de la particule (non sphérique) et  $A_{sp}$  la surface de la sphère de même volume que la particule.

Si l'équation d'Ergun est jusqu'à aujourd'hui la plus utilisée et la plus célèbre dans le calcul des pertes de charge pour l'écoulement à travers les lits granulaires [25], il existe néanmoins dans la littérature un grand nombre de corrélations qui apportent des versions modifiées. Les raisons proviennent principalement du fait que l'équation d'Ergun manque de précision pour des écoulements turbulents et pour des rapports faibles entre le diamètre du lit et le diamètre de la particule  $D/d_p$  qui jouent un rôle déterminant dans l'effet de paroi. Ainsi, les corrélations ont essentiellement pour but de corriger, sous certaines conditions, les différences entre les résultats prédits et les données expérimentales observées. Les coefficients de l'équation 5 prennent respectivement comme valeurs 150 et 1,75 [10], 200 et 1,75 [26], 180 et une gamme de valeurs de [1,8 – 4] [27]. Les autres versions modifiées pour l'analyse de l'écoulement et des pertes de pression sont présentées dans le Tableau 3.

Chapitre IV : Ecoulement et transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP :  
théorie et état de l'art

Auteurs	Corrélation	Equation	Rang d'application
Ergun (1952) [10]	$\frac{d_p}{\rho_f U^2} \frac{\Delta P}{L} = \left( 150 + 1.75 \frac{\text{Re}}{(1-\varepsilon)} \right) \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 \text{Re}}$	(6)	$\text{Re} < 750$
Paterson et al. (1986) [28]	$\frac{d_p}{\rho_f U^2} \frac{\Delta P}{L} = \left( 150A + 1.75B \frac{\text{Re}}{(1-\varepsilon)} \right) \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 \text{Re}}$ $A = 1 + 1.22 \frac{d_p}{D} ; B = e^{1.66 \left( \left( 1 - \frac{d_p}{D} \right)^2 - 1 \right)}$	(8)	$25 < \frac{\text{Re}}{1-\varepsilon} < 900$ $3,5 < D/d_p < 22$
Mehta et Hawley (1969) [29]	$\frac{d_p}{\rho_f U^2} \frac{\Delta P}{L} = \left( 150M + 1.75 \frac{\text{Re}}{(1-\varepsilon)} \right) M \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 \text{Re}}$ $M = 1 + \frac{4d_p}{6(1-\varepsilon)D}$	(9)	$0,18 < \frac{\text{Re}}{1-\varepsilon} < 9,55$ $7 < D/d_p$
Liu et al. (1994) [30]	$\frac{d_p}{\rho_f U^2} \frac{\Delta P}{L} = \left( 85.2A + \frac{0.69B \text{Re}_\varepsilon^3}{16^2 + \text{Re}_\varepsilon^2} \right) \left( \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^{11/3} \text{Re}} \right)$ $\text{Re}_\varepsilon = \text{Re} \frac{1 + (1-\varepsilon^{1/2})^{1/2}}{(1-\varepsilon)\varepsilon^{1/6}} ; A = \left( 1 + \pi \frac{d_p}{6(1-\varepsilon)D} \right)^2$ $B = 1 - \frac{\pi^2 d_p}{24D} \left( 1 - \frac{0.5d_p}{D} \right)$	(10)	$\frac{\text{Re}}{1-\varepsilon} < 1600$
Yu et al. (2002) [31]	$\frac{d_p}{\rho_f U^2} \frac{\Delta P}{L} = \left( 203 + 1.95 \frac{\text{Re}}{(1-\varepsilon)} \right) \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 \text{Re}}$	(11)	$750 < \text{Re} < 2500$
Harrison et al. (2013) [32]	$\frac{d_p}{\rho_f U^2} \frac{\Delta P}{L} = \left( 119.8A + 4.63B \left( \frac{\text{Re}}{(1-\varepsilon)} \right)^{5/6} \right) \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 \text{Re}}$ $A = \left( 1 + \pi \frac{d_p}{6(1-\varepsilon)D} \right)^2 ; B = 1 - \frac{\pi^2 d_p}{24D} \left( 1 - \frac{0.5d_p}{D} \right)$	(12)	$0,32 < \text{Re} < 7700$

Tableau 3 - Différentes corrélations reliant les pertes de charge à la vitesse d'écoulement

Paterson et al. (1986) [28] ont concentré leur travail sur l'effet des faibles rapports de diamètres  $D/d_p$  et ont présenté une technique pour mesurer les profils de vitesse radiale. Ils ont proposé une forme modifiée de l'équation d'Ergun (équation 8).

Mehta et Hawley (1969) [29] ont développé une approche simplifiée pour corriger l'effet de paroi, en modifiant le rayon hydraulique dans l'équation d'Ergun ou plus exactement dans le nombre de Reynolds. Ils prennent en considération l'effet du rapport entre le diamètre de la particule et le diamètre de la colonne sur le rayon hydraulique. Si  $d_p \ll D$  ( $M \sim 1$ ), ainsi l'équation modifiée 9 devient l'équation d'Ergun.

Liu et al. (1994) [30] ont présenté une équation modifiée de la « théorie de Kozeny-Carman » et ont développé une nouvelle corrélation des pertes de pression applicable aux écoulements laminaires et turbulents pour des colonnes de petits et grands diamètres (cf. équation 10).

Yu et al. (2002) [31] ont réalisé des expériences sur des lits granulaires utilisant des particules sphériques de trois tailles différentes. Prenant en considération leurs propres données sur une gamme de [750 – 2000] pour le nombre de Reynolds, dans leur évaluation ils obtiennent comme valeurs pour les constantes 203 et 1,95 (au lieu de 150 et 1,75 pour l'équation d'Ergun – cf. équation 11).

Harrison et al. (2013) [32] ont proposé une corrélation qui combine l'équation de Tallmadge (1970) [33] avec les termes correctifs dus à l'effet de paroi proposés par Liu et al. (1994) [30]. Puis ils ont effectué une analyse de données afin de déterminer les meilleures valeurs pour les constantes dans l'équation. Leur équation était plus précise que 5 autres corrélations qu'ils avaient sélectionnées dans la littérature (cf. équation 12).

En somme, l'équation d'Ergun décrit les écoulements pour des régimes aussi bien laminaires que turbulents et met en lien les pertes de pression avec le nombre de Reynolds  $Re$  et la porosité au sein des lits de particules. Cependant, celle-ci est particulièrement appropriée pour des régimes d'écoulement de faibles débits et pour des rapports  $D/d_p$  élevés. Dans le cas contraire, il est préférable d'utiliser les corrélations proposées dans la littérature et adaptées au système étudié. Parmi elles, une en particulière est tout de même à retenir en raison de sa précision et son rang d'application. Il s'agit de la corrélation proposée par Harrison et al. (équation 12) qui combine les corrélations de Tallmadge et de Liu et al. Cette corrélation prédit les pertes de charge au sein des lits de particules avec une grande précision, pour des valeurs s'échelonnant de  $0,32 < Re < 7700$  ;  $0,33 < \varepsilon < 0,88$  et  $8,3 < D/d_p < 50$ .

## 4 Modèles de transferts thermiques

Notre étude concerne essentiellement le réchauffement d'un fluide qui traverse un lit granulaire et qui échange sa chaleur avec les particules solides. Il y a encore quelques années, ce phénomène était décrit par un modèle à une dimension où la température du fluide était uniforme sur chaque section perpendiculaire à l'écoulement. L'échange thermique à travers la paroi des particules solides était alors caractérisé par des coefficients appelés « coefficient de transfert thermique total ».

Jusqu'à aujourd'hui, plusieurs modèles ont été développés pour simuler le comportement dynamique et thermique des systèmes de stockage de chaleur. Souvent, ces systèmes sont des réservoirs cylindriques remplis de particules sphériques de MCPs qui permettent le stockage de grande quantité d'énergie par chaleur latente. Ces systèmes renferment ainsi un lit fixe de particules de MCPs qui est traversé par un fluide caloporteur afin de réaliser la charge ou la décharge thermique par échange convectif. Ce chapitre a pour but de décrire explicitement les différents modèles établis et de résumer un certain nombre de travaux et de résultats issus de la littérature, notamment les plus récents. Cela peut s'avérer fondamental pour comprendre et optimiser les différentes approches numériques.

Les modèles numériques se divisent principalement en deux groupes : le modèle homogène et le modèle hétérogène. Le premier considère le système solide-liquide comme un milieu homogène équivalent avec une température locale unique. Ainsi, la température du solide (MCPs) et la température du liquide (fluide caloporteur) sont supposées égales. Par conséquent, cette approche néglige le gradient de température entre les deux milieux. Le modèle hétérogène prend en considération les deux phases -liquide et solide - et repose sur l'écriture et la résolution d'un système d'équations aux dérivées partielles issues de bilans (équations de conservation d'énergie, équation de continuité...). Pour chacune de ces approches, on rencontre des modèles uni- ou bi-dimensionnels selon que le gradient radial est considéré ou pas.

La condition d'uniformité radiale n'étant généralement pas remplie, il peut s'avérer primordial de prendre en compte le gradient de température radial lorsque celui-ci est élevé et une approche plus précise peut alors être exigée. Il a été prouvé que la température « moyenne » prédite par le modèle à une dimension peut grandement différer de la vraie température moyenne radiale. Ces considérations ont donc conduit à l'adoption de modèle à deux dimensions.

## 4.1 Modèle homogène

Etant donné que le modèle homogène considère les milieux solide et liquide comme un seul milieu alors l'équation de conservation prend en compte aussi bien les termes pour la phase solide que pour la phase liquide. En outre, la température est considérée unique et représente celle du système bi-phasique solide-liquide. L'équation de conservation d'énergie s'écrit ainsi :

$$\varepsilon \rho_f C_{p_f} \left( \frac{\partial T}{\partial t} + u_f \frac{\partial T}{\partial y} \right) + (1 - \varepsilon) \rho_{MCP} \frac{\partial H_{MCP}}{\partial t} = \lambda_{eff,y} \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \lambda_{eff,r} \left( \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{\partial T}{r \partial r} \right) \quad (13)$$

avec  $\rho_f$  la densité du fluide,  $C_{p_f}$  la capacité calorifique du fluide,  $u_f$  la vitesse du fluide,  $\lambda_{eff}$  la conductivité thermique effective,  $T$  la température locale,  $H_{MCP}$  l'enthalpie massique du MCP et  $\varepsilon$  la porosité.

Plusieurs mécanismes sont impliqués dans le transfert de chaleur dans la direction radiale. Afin de limiter la complexité des calculs, le lit et le fluide sont supposés continus et tous les transferts de chaleur dans la direction radiale sont supposés se produire par « conduction effective ». Evidemment, la conductivité effective caractérisant ce mode de transfert n'est pas une conductivité au sens propre du terme : il comprend de la conduction dans le solide et le fluide et de la convection dans la direction radiale.

Si on considère que la conduction radiale est négligeable alors il suffit de supprimer le terme radial dans l'égalité 13. Le premier terme de cette équation représente la puissance reçue du fluide par unité de volume. Il est composé d'un terme temporel et d'un terme advectif puisque le fluide se déplace au sein du système. Le second terme représente la puissance reçue du MCP par unité de volume. Dans la partie droite de l'équation, les deux termes correspondent à la conduction effective axiale et radiale au sein du milieu homogène solide-fluide.

Les pertes thermiques n'ont pas été stipulées et peuvent être rajoutées dans l'équation 13. Celles-ci ont lieu au niveau des parois externes du système et mettent en jeu un coefficient d'échange convectif entre l'environnement et le lit de particules. Le flux convectif  $\Phi_w$  décrivant les pertes thermiques s'écrit comme suit :

$$\Phi_w = a_w h_w (T_w - T) \quad (14)$$

avec  $a_w$  l'aire de la surface externe par unité de volume,  $h_w$  le coefficient global d'échange convectif entre l'environnement et le lit,  $T_w$  la température extérieure et  $T$  la température du lit. On peut tenir compte de ce flux dans l'équation de conservation.

Le modèle homogène est très peu utilisé car l'hypothèse d'une température locale unique pour les deux milieux solide et liquide n'est valable que lorsque les particules de MCP ont une conductivité proche de celle du fluide ou lorsqu'elles ont un faible diamètre.

[Nagano et al. \(2004\) \[34\]](#) ont proposé l'étude d'un modèle numérique homogène unidimensionnel pour analyser les performances thermiques d'un échangeur de chaleur à air composé de particules de MCPs. L'utilisation du modèle homogène se justifie par la petite taille des particules d'un diamètre d'environ 1-3 mm et par la faible vitesse d'écoulement du fluide. La résolution numérique a été effectuée par méthode explicite des différences finies. Un montage expérimental a été conçu afin de valider le modèle. Les résultats numériques sont en accord avec les résultats expérimentaux notamment au sujet de la durée complète du changement de phase.

[Anderson et al. \(2015\) \[35\]](#) ont également présenté un modèle homogène afin d'étudier le stockage de chaleur au sein d'un lit de particules d'alumine traversé par de l'air. Puisque la capacité et la conductivité thermique du MCP ont des valeurs plus élevées que celle du fluide caloporteur (air) et que le nombre de Biot est inférieur à 0,1 alors le modèle est considéré comme valide, les températures du solide et du liquide sont supposées égales et la conduction interne au sein de la particule est négligée. Le modèle est validé par l'expérience notamment en étudiant la température au sein du lit de particules à différentes hauteurs.

## 4.2 Modèle hétérogène

Le modèle hétérogène traite séparément le transfert de chaleur du milieu solide et du milieu liquide au sein du système. Il s'établit sur un système de deux équations couplées, liées par le flux convectif à l'interface liquide-solide (fluide caloporteur - particule de MCP). La résolution de ces équations doit se faire simultanément.

Il existe trois types de modèle hétérogène : le modèle de Schumann, le modèle de diffusion concentrique et le modèle continu à phase solide.

### 4.2.1 Modèle de Schumann

Le premier modèle hétérogène a été établi par [Schumann \(1929\) \[36\]](#). Il est unidimensionnel et prend en compte la convection à l'interface liquide-solide (fluide caloporteur – particule de MCP) et les pertes thermiques avec l'environnement. En revanche, ce modèle a ses limites puisqu'il ne prend en considération ni la conduction thermique axiale au sein du fluide et du solide, ni la diffusion radiale à l'intérieur de la particule. Seule la convection entre le fluide caloporteur et les particules de MCPs régit le processus de transfert de chaleur. Son système d'équations est le suivant :

Pour la phase liquide :

$$\varepsilon \rho_f C_p \left( \frac{\partial T_f}{\partial t} + u_f \frac{\partial T_f}{\partial y} \right) = a_p h_{MCP-fluide} (T_{MCP} - T_f) \quad (15)$$

Pour la phase solide :

$$(1 - \varepsilon) \rho_{MCP} \frac{\partial H_{MCP}}{\partial t} = a_p h_{MCP-fluide} (T_f - T_{MCP}) \quad (16)$$

avec  $a_p$  le rapport entre la somme des surfaces des particules du lit sur le volume total du lit, défini comme suit :

$$a_p = \frac{6(1 - \varepsilon)}{d_p}, \quad \text{d'après [Kaviany \[37\]](#)} \quad (17)$$

Pour la phase liquide de l'équation de conservation, le premier terme représente la puissance reçue du fluide par unité de volume. Le terme qui se trouve dans la partie droite de l'équation correspond au flux convectif à l'interface fluide-MCP.

Pour la phase solide de l'équation de conservation, le premier terme représente la puissance reçue du MCP par unité de volume.

[Sanderson et Cunningham \(1995\) \[38\]](#) ont étudié ce modèle notamment pour expliquer l'influence de la taille de la particule de MCP sur la stratification axiale de la température au sein du lit granulaire.

Le modèle de Schumann ne prend pas en compte la conduction interne à l'intérieur de la particule. Cependant, lorsque la conductivité thermique du MCP est faible (ce qui constitue la majorité des cas) ou lorsque la taille de la particule est élevée, alors la résistance thermique interne ne peut être négligée. Certains auteurs ont considéré la conduction interne à l'intérieur de la particule.

Felix Regin et al. (2009) [39] ont analysé le comportement d'un système de stockage d'énergie thermique par chaleur latente à lit granulaire. Le lit est composé de capsules sphériques remplies de cire de paraffine en tant que MCP. Ils ont pour cela développé un modèle numérique utilisant des équations de conservation similaires aux équations de Schumann, en incluant la résistance thermique interne au sein de la particule dans le coefficient convectif global entre le fluide et le MCP. Le phénomène de changement de phase des MCPs a été analysé par méthode enthalpique.

Tumilowicz et al. (2014) [40] ont aussi développé un modèle numérique basé sur la méthode de Schumann, en y intégrant également la méthode enthalpique aussi bien pour un système utilisant des matériaux de remplissage à phase unique qu'à changement de phase.

#### 4.2.2 Modèle de diffusion concentrique

Le modèle de diffusion concentrique<sup>1</sup> est un modèle hétérogène à deux phases qui a la particularité de considérer la conduction thermique à l'intérieur de la particule de MCP. Les particules étant sphériques, la conduction est radiale. Précisons que lorsque le MCP commence à fondre au sein de la particule, deux modes de transfert thermique sont à l'œuvre : la conduction dans la partie solide et la convection naturelle dans la partie liquide. Cependant, en raison de la complexité des calculs le modèle ne prend pas en compte la convection. Ceci étant, on peut inclure un facteur correctif pour améliorer le modèle.

Généralement, les modèles numériques négligent la conduction interne et supposent la température au sein de la particule comme uniforme. Par conséquent, dans le modèle de diffusion concentrique deux gradients de température sont considérés : le flux convectif entre le fluide caloporteur et la paroi externe de la particule, et la conduction thermique interne dans la particule.

Ce modèle considère le lit de particules comme un milieu poreux isotrope et le divise en plusieurs couches dans la direction axiale. Toutes les sphères d'une même couche sont supposées se comporter de la même manière et chaque couche peut être modélisée et discrétisée à l'aide d'une seule sphère comme ceci est illustré dans la Figure 3 :

---

<sup>1</sup> L'expression anglaise que l'on retrouve dans la littérature scientifique est « concentric dispersion model ». Cependant, nous avons préféré traduire « dispersion » par « diffusion » car le terme de « dispersion » en physique est très largement utilisé dans la théorie des ondes et non dans l'étude des transferts de masse ou de chaleur, où l'on privilégie plutôt le terme de « diffusion ».

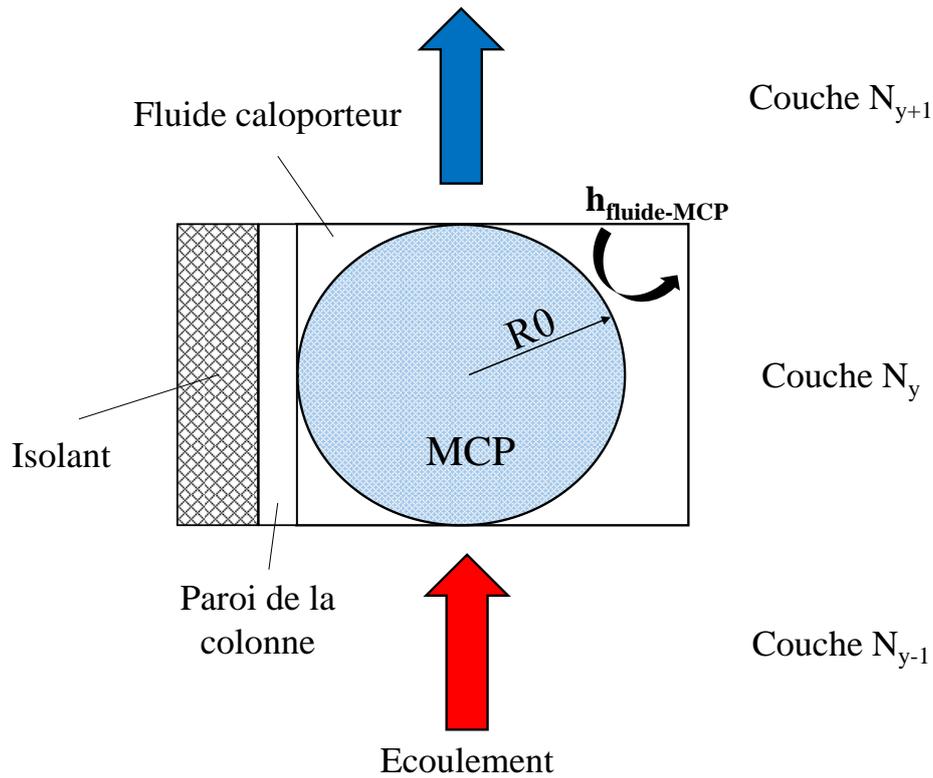


Figure 3 – Schéma d'une couche discrétisée par une seule sphère dans le modèle de diffusion concentrique

Le système d'équations de conservation d'énergie comprend deux expressions couplées avec une condition aux limites à la surface de la sphère. L'une pour le transfert thermique au sein de la phase liquide et la seconde pour la conduction interne à l'intérieur de la particule (phase solide).

Pour la phase liquide :

$$\varepsilon \rho_f C p_f \left( \frac{\partial T_f}{\partial t} + u_f \frac{\partial T_f}{\partial y} \right) = \varepsilon \lambda_f \frac{\partial^2 T_f}{\partial y^2} + a_p h_{MCP-fluide} (T_{MCP|_{r=r_0}} - T_f) \quad (18)$$

Pour la diffusion thermique au sein de la particule :

$$\rho_{MCP} \frac{\partial H_{MCP}}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( \lambda_{MCP} r^2 \frac{\partial T_{MCP}}{\partial r} \right) \quad (19)$$

Avec la condition aux limites à l'interface entre la surface de la sphère ( $r = r_0$ ) et le fluide :

$$-\lambda_p \frac{\partial T_{MCP}}{\partial r} \Big|_{r=r_0} = h_{MCP-fluide} (T_{p|_{r=r_0}} - T_f) \quad (20)$$

Tous les auteurs suivants ont utilisé le modèle de diffusion concentrique pour leur système de stockage d'énergie thermique.

Wei et al. (2005) [41] ont étudié numériquement et expérimentalement un système de stockage d'énergie thermique utilisant des MCP. Dans les études numériques, le MCP a été encapsulé de quatre manières différentes (sphère, cylindre, rectangle et tube creux) pour étudier les effets des configurations géométriques. Il a été démontré que les capsules sphériques ont les meilleures performances en termes de dégagement de chaleur parmi les quatre types de capsules étudiées.

Peng et al. (2014) [42] ont étudié le comportement d'un système de stockage thermique par chaleur latente à lit de particules de MCP. Le phénomène de changement de phase au sein de la capsule de MCP est analysé par méthode enthalpique. Les résultats obtenus sont validés par les expériences d'Izquierdo-Barrientos et al. [43]. Ils indiquent que la diminution de la taille de la capsule de MCP ou de la vitesse d'entrée du fluide, ou encore l'augmentation de la hauteur du lit ont pour effet d'augmenter l'efficacité de la charge.

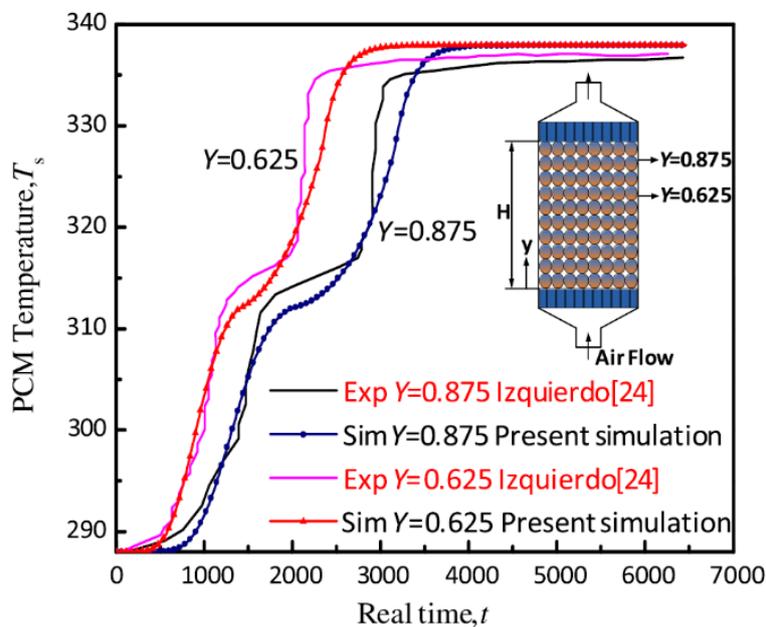
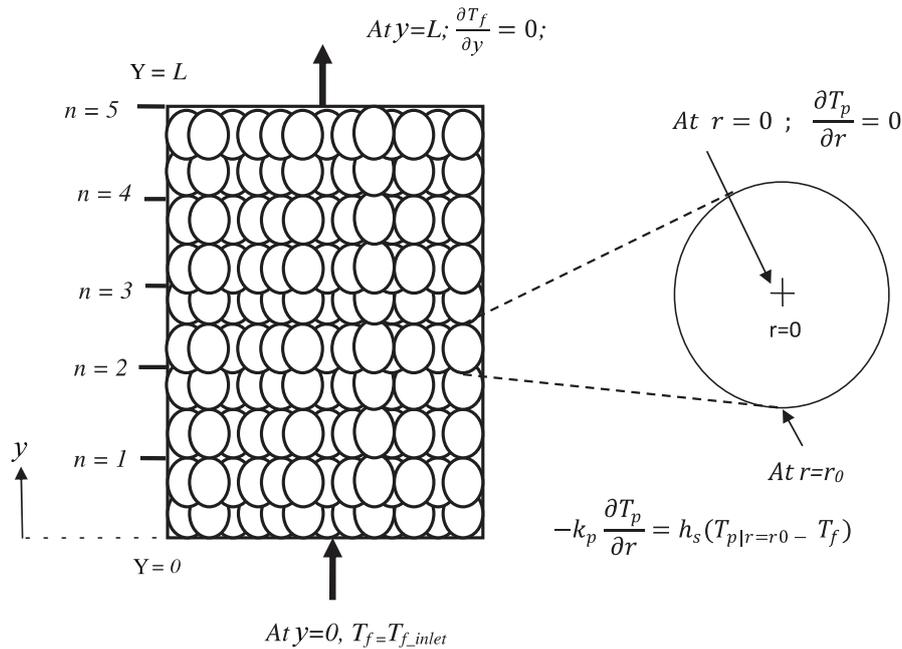


Figure 4 – Comparaison entre les résultats numériques (modèle de diffusion concentrique) et les données expérimentales de Izquierdo-Barrientos et al. (2013) [42]

Karthikeyan et al. (2014) [44] ont étudié les performances d'un système solaire de stockage à lit granulaire rempli de capsules sphériques de MCP. Ils ont réalisé un modèle numérique basé sur la méthode enthalpique. Le schéma de principe utilisé pour leur modélisation est décrit à la Figure 5. Les résultats de la simulation indiquent qu'une augmentation du débit et de la température d'entrée du fluide caloporteur et une diminution de la taille de la capsule améliorent les transferts convectifs entre le fluide et les capsules de MCP.



Ismail et Henriquez (2002) [45] et Bédécarrats et al. (2009) [46] ont également exploité le modèle de diffusion concentrique dans leur étude numérique pour simuler un système de stockage renfermant un lit de particules de MCPs. D'autres auteurs ont utilisé la méthode des volumes finis pour résoudre ce modèle [47]–[50].

### 4.2.3 Modèle continu à phase solide

Ce modèle considère le lit de particules de MCPs comme un milieu continu et non comme un milieu composé de particules indépendantes. De ce fait, la conduction thermique interne dans la particule n'est pas prise en compte. En revanche, la conduction dans les directions axiale (modèle unidimensionnel) ou/et radiale (modèle bidimensionnel) au sein du milieu solide peut être considérée. Le système d'équation de conservation d'énergie comprend deux expressions couplées, une pour la phase liquide et une autre pour la phase solide.

Pour la phase liquide :

$$\varepsilon \rho_f C_{p_f} \left( \frac{\partial T_f}{\partial t} + u_f \frac{\partial T_f}{\partial y} \right) = \varepsilon \lambda_f \frac{\partial^2 T_f}{\partial y^2} + a_p h_{MCP-fluide} (T_{MCP} - T_f) \quad (21)$$

Pour la phase solide :

$$(1 - \varepsilon) \rho_{MCP} \frac{\partial H_{MCP}}{\partial t} = (1 - \varepsilon) \lambda_{MCP} \frac{\partial^2 T_{MCP}}{\partial y^2} + a_p h_{MCP-fluide} (T_f - T_{MCP}) \quad (22)$$

Ce modèle est le seul à prendre en considération la conduction thermique radiale au sein du milieu solide, même si celle-ci augmente considérablement le temps de calcul. La prise en compte de cette conduction radiale a son importance notamment lorsque le débit d'écoulement est faible ou lorsque celui-ci est mal distribué en entrée du système. En effet, plusieurs paramètres significatifs comme la porosité du lit ou la vitesse du fluide au sein du système peuvent gagner en précision si l'on décide de leur ajouter la dépendance radiale (cf. 2.1).

Bellan et al. (2014) [51] ont étudié un modèle bidimensionnel continu à phase solide afin d'analyser le comportement dynamique d'un système de stockage d'énergie thermique à lit de particules, composé de capsules sphériques contenant des MCP (nitrate de sodium). Il a été découvert que l'augmentation de la taille de la capsule, du débit d'écoulement ou la diminution du nombre de Stefan implique une augmentation de la taille de la zone de transition thermique, ce qui diminue le temps de décharge effectif.

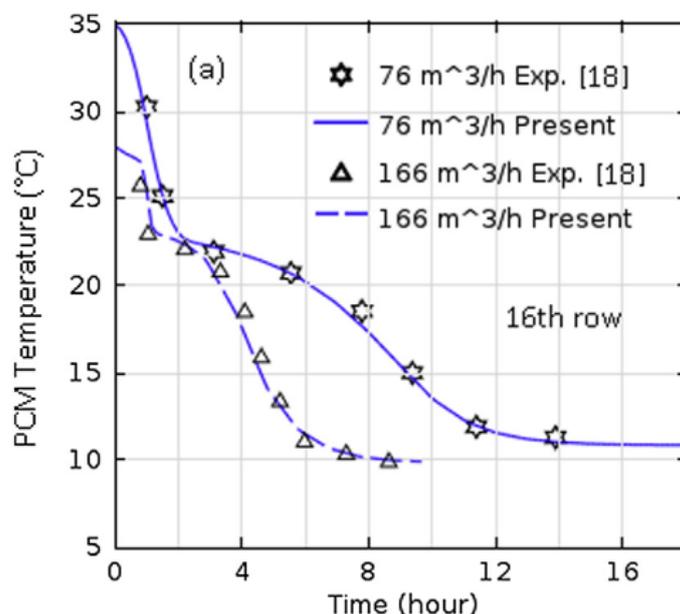


Figure 6 - Comparaison numérique et expérimentale concernant l'évolution de la température du MCP durant une phase de décharge thermique [51]

Arkar et Medved (2005) [52] ont développé un système de stockage d'énergie thermique à chaleur latente contenant des sphères de paraffine qui s'intègrent dans les bâtiments. Ils utilisent un modèle bidimensionnel continu à phase solide pour leur étude numérique. Des modifications ont été apportées au modèle pour prendre en compte le caractère non-uniforme de la porosité des MCP et de la vitesse du fluide. Ces deux dernières caractéristiques sont la conséquence d'un faible rapport de diamètre tube/sphère adapté au système. Une comparaison des résultats numériques et expérimentaux confirme l'hypothèse liée à l'importance de la connaissance des propriétés thermiques du MCP, notamment pour les processus lents.

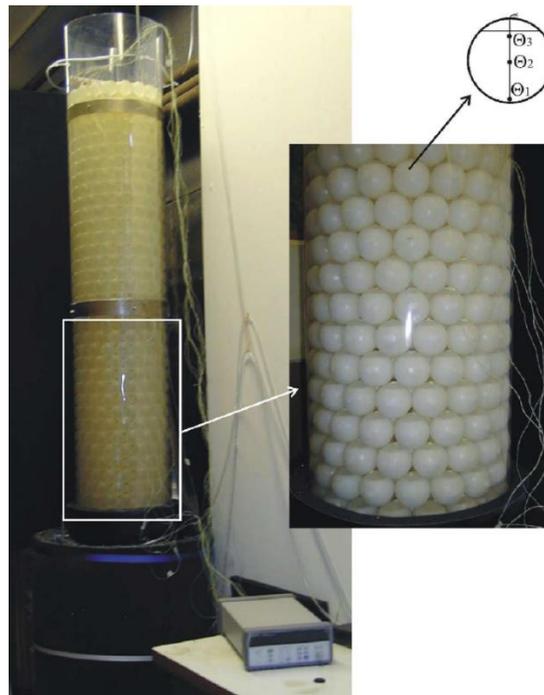


Figure 7 - Le système de stockage d'énergie thermique à chaleur latente développé par [Arkar and Medved \(2005\)](#) [52]

[Benmansour et al. \(2006\)](#) [53] ont également appliqué un modèle bidimensionnel. Son objectif est de développer une analyse numérique de la réponse transitoire d'un système de stockage d'énergie thermique à lit de particules de MCPs. L'équation d'énergie du fluide a été résolue par la méthode implicite des directions alternées tandis que l'équation d'énergie du MCP a été résolue par la méthode explicite. Les valeurs expérimentales pour la distribution de température se rapprochent favorablement des résultats numériques pour une large gamme du nombre de Reynolds.

D'autres auteurs [54]–[56] ont également exploité ce modèle. Certaines de leurs conclusions sont à relever. Les résultats indiquent que les performances du système de stockage par chaleur latente peuvent être optimisées en sélectionnant judicieusement la température de fusion des MCPs. Il est également démontré que l'efficacité de la décharge est optimisée pour des faibles nombres de Reynolds et pour des hauteurs élevées de colonne.

Une des manières d'améliorer les performances d'un système de stockage à chaleur latente est de concevoir un système à multicouche de MCP. Le but est de maximiser le coefficient de transfert thermique entre le fluide et les MCPs. [Yang et al. \(2014\)](#) [56] et [Aldoss et Rahman \(2014\)](#) [57] ont développé et étudié de tels systèmes. Les résultats démontrent que plus le nombre d'étages augmentent et plus les performances du système à multicouche augmentent. Néanmoins, il a été remarqué que l'utilisation de plus de trois étages n'apporte pas d'amélioration significative.

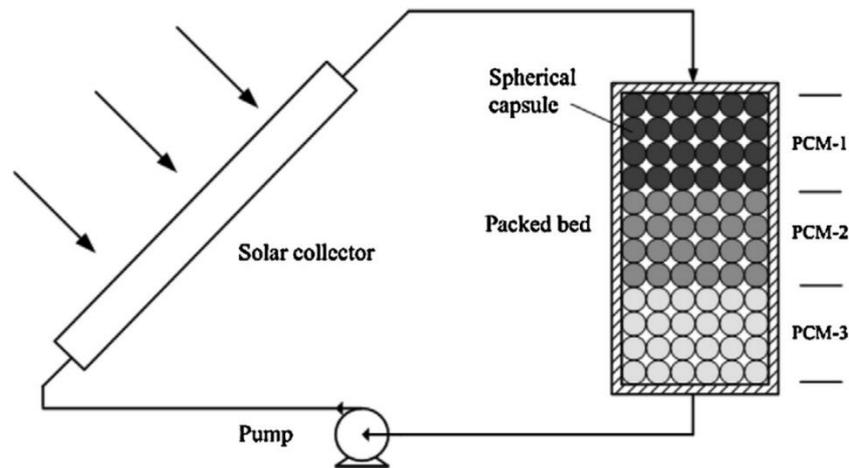


Figure 8 - Schéma de principe d'un collecteur solaire multi-MCP [56]

En conclusion de cette partie sur les différents modèles existants aussi bien homogènes qu'hétérogènes, nous retiendrons quelques résultats significatifs permettant d'obtenir les meilleures performances en termes de transfert de chaleur et de charge/décharge thermique au sein des lits fixes de particules de MCPs.

- 1) Les capsules de forme sphérique ont les meilleures performances pour les échanges de chaleur avec le milieu environnant.
- 2) La diminution de la taille de la capsule de MCP ou de la vitesse d'entrée du fluide, ou encore l'augmentation de la hauteur du lit augmente l'efficacité de la charge/décharge.
- 3) L'efficacité de la charge/décharge est également améliorée si l'on augmente la température de changement de phase [47].
- 4) Les systèmes à couches multiples de MCP améliorent les performances dynamiques en termes de vitesse de charge/décharge.
- 5) Ces résultats apportent des suggestions pour optimiser la conception et faciliter le dimensionnement d'un système de stockage composé d'un lit fixe rempli de particules de MCP.

### 4.3 Etude comparative de modèles

Plusieurs méthodes ont été adoptées par les scientifiques pour modéliser le phénomène de transfert de chaleur lors d'un changement de phase liquide-solide mais la comparaison des différents modèles développés et leur validité pour un tel problème ne sont pas clairement mentionnées dans la littérature.

Karthikeyan et Velraj (2012) [58] présentent une étude comparative de 3 modèles mathématiques différents pour les systèmes de stockage de forme cylindrique à lit de particules, contenant des capsules sphériques de paraffine. Les techniques de modélisation

Chapitre IV : Ecoulement et transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP : théorie et état de l'art

enthalpique permettent d'ajuster le comportement du changement de phase de la paraffine pour une certaine gamme de température.

Ismail et Stuginsky Jr (1999) [59] ont évalué le temps de calcul des quatre principaux modèles décrits précédemment (modèles homogène et hétérogènes). Les résultats sont présentés dans le Tableau 3.

Modèles	Temps de calcul (s)
Modèle homogène 1D	7.1
Modèle homogène 2D	141.5
<b>Modèles hétérogènes</b>	
Modèle de Schumann	29.6
Modèle de diffusion concentrique	574.6
Modèle continu à phase solide 1D	51.6
Modèle continu à phase solide 2D	1277.7

*Tableau 4 – Temps de calcul de chaque modèle*

On observe que l'approche bidimensionnelle accroît considérablement le temps de calcul (25 fois plus long) par rapport au modèle unidimensionnel. Par conséquent, la prise en compte de la dépendance radiale au sein de la modélisation ne doit être considérée que pour des études de cas bien spécifiques. En effet, lorsque le débit d'écoulement est faible ou lorsque l'écoulement en entrée du système est mal distribué ou encore lorsque les pertes thermiques sont importantes, il sera alors recommandé de prendre en considération la dépendance radiale.

En somme, s'il y avait à choisir un modèle qui constituerait un bon compromis en termes de précision et de temps de calcul, ce serait le modèle continu à phase solide puisqu'il est moins chronophage que le modèle de diffusion concentrique et plus précis que le modèle de Schumann ou que le modèle homogène.

Par ailleurs, étant donné qu'il est assez difficile d'étudier l'écoulement du fluide dans un système aussi complexe qu'un lit fixe de particules de MCP, les variations de la vitesse d'écoulement dans une section transversale du système ne sont pas prises en compte et tous ces modèles adoptent dans leur résolution une vitesse moyenne d'écoulement à travers le lit. D'ailleurs, aucun de ces modèles ne décrit convenablement la configuration de l'écoulement à travers les vides formés par le remplissage des particules. Ceci a pour conséquence de ne pas déterminer avec une grande précision le transfert de chaleur entre le fluide caloporteur et les particules de MCP.

C'est la raison pour laquelle d'autres approches numériques ont été développées afin d'apporter une plus grande précision sur les transferts de chaleur opérés au sein d'un système de stockage thermique composé de particules de MCPs.

#### 4.4 Autres approches

Xia et al. (2010) [60] ont développé un modèle numérique appelé « modèle effectif de lit de particules » qui a la particularité d'analyser et d'observer les champs de température et de pression du fluide caloporteur à travers les vides formés par les particules sphériques de MCPs comme décrit dans la Figure 9. Elle étudie également la conduction thermique interne à l'intérieur des particules. Cependant, la résolution de leur modélisation requiert un temps de calcul conséquent. Le modèle a été validé avec des résultats expérimentaux issus de la littérature. Leur étude porte essentiellement sur l'influence de la disposition des particules de MCPs dans le lit et sur l'influence de l'épaisseur de l'encapsulation sur les performances thermiques du système.

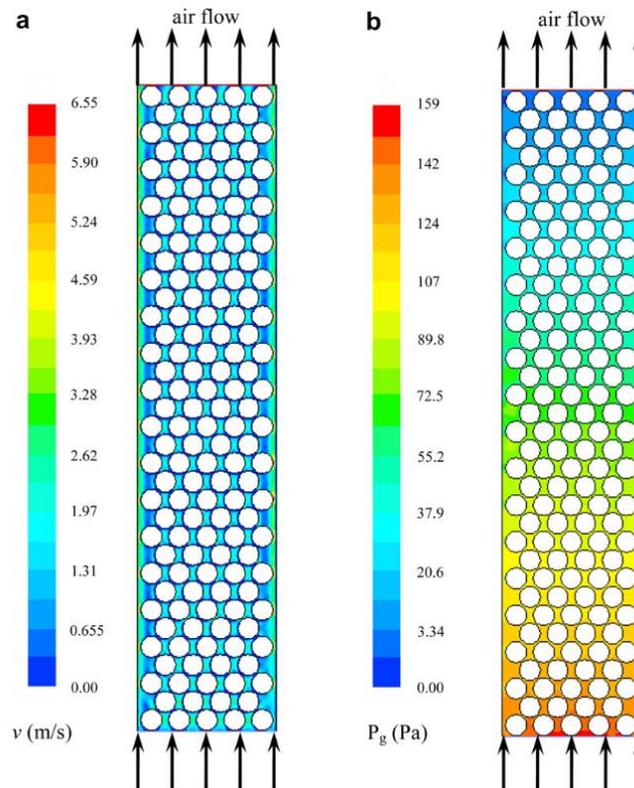


Figure 9 - Champs de  $T^{\circ}C$  et de pression au sein d'un lit fixe de particules [60]

Amin et al. (2014) [61] présentent un modèle mathématique pour ce type de système de stockage thermique rempli de sphères de MCP. Utilisant la méthode  $\epsilon$ -NTU, une représentation 2D adéquate a été développée afin de prédire le transfert de chaleur durant le changement de phase. Une corrélation convenable a été développée démontrant la validité de la méthode  $\epsilon$ -NTU pour les systèmes de lits de particules de MCP.

## 5 Conclusion

Dans ce chapitre, il a été présenté et décrit d'une manière générale une grande partie de la théorie liée aux lits fixes de particules, en y associant un état de l'art sur les modèles de transferts de masse et de chaleur. Plusieurs conclusions sont à retenir.

L'étude sur la porosité d'un lit fixe de particules sphériques, pour tout type de configuration, a été largement étudiée et une multitude de corrélations se trouvent aujourd'hui dans la littérature scientifique. En outre, il a été établi que la porosité a tendance à augmenter lorsqu'on se rapproche de la paroi du système, ce qui génère une forte augmentation de la vitesse locale du fluide et qui, par conséquent, impacte sur les transferts thermiques. Par ailleurs, il a été prouvé qu'une diminution de la porosité du lit entraîne une augmentation de la stratification, ce qui engendre une amélioration de l'efficacité du système.

La forme des particules remplissant le lit est également un facteur à prendre en considération dans l'évaluation des transferts de masse et de chaleur. Il a été démontré parmi différentes sphéricités (cube, cylindre, sphère...), qu'un lit de particules sphériques avait une valeur du nombre de Nusselt  $Nu$  maximale, ce qui signifie des transferts de chaleur optimum.

Pour évaluer les pertes de charge dans les lits fixes de particules, la corrélation la plus connue est l'équation d'[Ergun](#). Cependant, une nouvelle corrélation plus précise a été proposée par [Harrison et al. \(2013\) \[32\]](#) adaptée à plusieurs régimes d'écoulement et à une large gamme de configuration de lit.

En vue d'étudier numériquement les transferts de masse et de chaleur au sein des lits fixes de particules, plusieurs modèles ont été développés, fondés sur les équations de conservation. Ces modèles se divisent en 2 catégories : le modèle homogène et hétérogène. Ce qui est à retenir est que le meilleur compromis en termes de précision et de temps de calcul serait le modèle continu à phase solide (modèle hétérogène).

## Bibliographie

- [1] H. Bai, J. Theuerkauf, P. A. Gillis, et P. M. Witt, « A Coupled DEM and CFD Simulation of Flow Field and Pressure Drop in Fixed Bed Reactor with Randomly Packed Catalyst Particles », *Ind. Eng. Chem. Res.*, vol. 48, n° 8, p. 4060-4074, avr. 2009.
- [2] R. Aris, « On shape factors for irregular particles-I. The steady-state problem. Diffusion and reaction: R. Aris, *Chem. Engng Sci.*: 262–268, 1957 », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 50, n° 24, p. 3897-3898, déc. 1995.
- [3] A. de Klerk, « Voidage variation in packed beds at small column to particle diameter ratio », *AIChE J.*, vol. 49, n° 8, p. 2022-2029, août 2003.
- [4] W. van Antwerpen, C. G. du Toit, et P. G. Rousseau, « A review of correlations to model the packing structure and effective thermal conductivity in packed beds of mono-sized spherical particles », *Nucl. Eng. Des.*, vol. 240, n° 7, p. 1803-1818, juill. 2010.
- [5] H. Martin, « Low pecllet number particle-to-fluid heat and mass transfer in packed beds », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 33, n° 7, p. 913-919, janv. 1978.
- [6] G. E. Mueller, « Radial void fraction distributions in randomly packed fixed beds of uniformly sized spheres in cylindrical containers », *Powder Technol.*, vol. 72, n° 3, p. 269-275, nov. 1992.
- [7] S. M. White et C. L. Tien, « Analysis of flow channeling near the wall in packed beds », *Wärme - Stoffübertrag.*, vol. 21, n° 5, p. 291-296, 1987.
- [8] R. P. Zou et A. B. Yu, « The packing of spheres in a cylindrical container: the thickness effect », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 50, n° 9, p. 1504-1507, 1995.
- [9] A. Guardo, M. Coussirat, F. Recasens, M. A. Larrayoz, et X. Escaler, « CFD studies on particle-to-fluid mass and heat transfer in packed beds: Free convection effects in supercritical fluids », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 62, n° 18–20, p. 5503-5511, sept. 2007.
- [10] S. Ergun, « Fluid Flow Through Packed Columns, Ergun », *Scribd*, 1952. [En ligne]. Disponible sur: <https://fr.scribd.com/doc/306554469/Fluid-Flow-Through-Packed-Columns-Ergun>. [Consulté le: 23-mai-2016].
- [11] B. Einfeld et K. Schnitzlein, « The influence of confining walls on the pressure drop in packed beds », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 56, n° 14, p. 4321-4329, juill. 2001.
- [12] W. Reichelt, « Zur Berechnung des Druckverlustes einphasig durchströmter Kugel- und Zylinderschüttungen », *Chem. Ing. Tech. - CIT*, vol. 44, n° 18, p. 1068-1071, sept. 1972.
- [13] R. Di Felice et L. G. Gibilaro, « Wall effects for the pressure drop in fixed beds », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 59, n° 14, p. 3037-3040, juill. 2004.
- [14] M. Suzuki, T. Shinmura, K. Iimura, et M. Hirota, « Study of the Wall Effect on Particle Packing Structure Using X-ray Micro Computed Tomography », *Adv. Powder Technol.*, vol. 19, n° 2, p. 183-195, janv. 2008.
- [15] R. Singh, R. P. Saini, et J. S. Saini, « Nusselt number and friction factor correlations for packed bed solar energy storage system having large sized elements of different shapes », *Sol. Energy*, vol. 80, n° 7, p. 760-771, juill. 2006.
- [16] L. H. S. Roblee, R. M. Baird, et J. W. Tierney, « Radial porosity variations in packed beds », *AIChE J.*, vol. 4, n° 4, p. 460-464, déc. 1958.
- [17] D. Coelho, J.-F. Thovert, et P. M. Adler, « Geometrical and transport properties of random packings of spheres and aspherical particles », *Phys. Rev. E*, vol. 55, n° 2, p. 1959-1978, févr. 1997.

Chapitre IV : Ecoulement et transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP :  
théorie et état de l'art

- [18] H. Singh, R. P. Saini, et J. S. Saini, « Performance of a packed bed solar energy storage system having large sized elements with low void fraction », *Sol. Energy*, vol. 87, p. 22-34, janv. 2013.
- [19] W. Zhang, K. E. Thompson, A. H. Reed, et L. Beenken, « Relationship between packing structure and porosity in fixed beds of equilateral cylindrical particles », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 61, n° 24, p. 8060-8074, déc. 2006.
- [20] S. Liu et J. H. Masliyah, « Single Fluid Flow in Porous Media », *Chem. Eng. Commun.*, vol. 148-150, n° 1, p. 653-732, juin 1996.
- [21] S. K. Yeboah et J. Darkwa, « A critical review of thermal enhancement of packed beds for water vapour adsorption », *Renew. Sustain. Energy Rev.*, vol. 58, p. 1500-1520, mai 2016.
- [22] H. (1803-1858) Darcy, *Les fontaines publiques de la ville de Dijon : exposition et application des principes à suivre et des formules à employer dans les questions de distribution d'eau... / par Henry Darcy,...* Paris: V. Dalmont, 1856.
- [23] G. Q. Lu et X. S. Zhao, *Nanoporous Materials: Science and Engineering. Online version available at :*  
[https://app.knovel.com/web/toc.v/cid:kpNMSE0003/viewerType:toc/root\\_slug:nanoporous-materials/url\\_slug:nanoporous-materials](https://app.knovel.com/web/toc.v/cid:kpNMSE0003/viewerType:toc/root_slug:nanoporous-materials/url_slug:nanoporous-materials), vol. 4. PUBLISHED BY IMPERIAL COLLEGE PRESS AND DISTRIBUTED BY WORLD SCIENTIFIC PUBLISHING CO., 2004.
- [24] P. Forchheimer, *Hydraulik , von Philipp Forchheimer*. Leipzig: B. G. Teubner, 1930.
- [25] L. Douglas, R. H. Perry, C. Giorgio, C. M. Yon, et D. W. Green, *Perry's Chemical Engineers' Handbook*. McGraw-Hill Professional Publishing, 1997.
- [26] M. Leva, *Fluidization*. New York; Toronto; London: McGraw-Hill, 1959.
- [27] I. F. Macdonald, M. S. El-Sayed, K. Mow, et F. A. L. Dullien, « Flow through Porous Media-the Ergun Equation Revisited », *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, vol. 18, n° 3, p. 199-208, août 1979.
- [28] W. R. Paterson, J. M. R. Burns, N. B. Griffiths, K. R. Kesterton, et A. J. Paveley, « Experimental studies of transport processes in packed beds of low tube-to-particle diameter ratio, World Congress III of Chemical Engineering Tokyo », p. 304-307, 1986.
- [29] D. Mehta et M. C. Hawley, « Wall Effect in Packed Columns », *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, vol. 8, n° 2, p. 280-282, avr. 1969.
- [30] S. Liu, A. Afacan, et J. Masliyah, « Steady incompressible laminar flow in porous media », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 49, n° 21, p. 3565-3586, janv. 1994.
- [31] J. Yu, M. Zhang, W. Fan, Y. Zhou, et G. Zhao, « Study on performance of the ball packed-bed regenerator: experiments and simulation », *Appl. Therm. Eng.*, vol. 22, n° 6, p. 641-651, avr. 2002.
- [32] L. D. Harrison, K. M. Brunner, et W. C. Hecker, « A Combined Packed-Bed Friction Factor Equation: Extension to Higher Reynolds Number with Wall Effects », *AIChE J.*, vol. 59, n° 3, p. 703-706, mars 2013.
- [33] J. A. Tallmadge, « Packed bed pressure drop—an extension to higher Reynolds numbers », *AIChE J.*, vol. 16, n° 6, p. 1092-1093, nov. 1970.
- [34] K. Nagano, S. Takeda, T. Mochida, et K. Shimakura, « Thermal characteristics of a direct heat exchange system between granules with phase change material and air », *Appl. Therm. Eng.*, vol. 24, n° 14-15, p. 2131-2144, oct. 2004.

- [35] R. Anderson, L. Bates, E. Johnson, et J. F. Morris, « Packed bed thermal energy storage: A simplified experimentally validated model », *J. Energy Storage*, vol. 4, p. 14-23, déc. 2015.
- [36] T. E. W. Schumann, « Heat transfer: A liquid flowing through a porous prism », *J. Frankl. Inst.*, vol. 208, n° 3, p. 405-416, sept. 1929.
- [37] M. Kaviany, *Principles of Heat Transfer*. John Wiley & Sons, 2002.
- [38] T. M. Sanderson et G. T. Cunningham, « Performance and efficient design of packed bed thermal storage systems. Part 1 », *Appl. Energy*, vol. 50, n° 2, p. 119-132, 1995.
- [39] A. Felix Regin, S. C. Solanki, et J. S. Saini, « An analysis of a packed bed latent heat thermal energy storage system using PCM capsules: Numerical investigation », *Renew. Energy*, vol. 34, n° 7, p. 1765-1773, juill. 2009.
- [40] E. Tumilowicz, C. L. Chan, P. Li, et B. Xu, « An enthalpy formulation for thermocline with encapsulated PCM thermal storage and benchmark solution using the method of characteristics », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 79, p. 362-377, déc. 2014.
- [41] J. Wei, Y. Kawaguchi, S. Hirano, et H. Takeuchi, « Study on a PCM heat storage system for rapid heat supply », *Appl. Therm. Eng.*, vol. 25, n° 17-18, p. 2903-2920, déc. 2005.
- [42] H. Peng, H. Dong, et X. Ling, « Thermal investigation of PCM-based high temperature thermal energy storage in packed bed », *Energy Convers. Manag.*, vol. 81, p. 420-427, mai 2014.
- [43] M. A. Izquierdo-Barrientos, C. Sobrino, et J. A. Almendros-Ibáñez, « Thermal energy storage in a fluidized bed of PCM », *Chem. Eng. J.*, vol. 230, p. 573-583, août 2013.
- [44] S. Karthikeyan, G. Ravikumar Solomon, V. Kumaresan, et R. Velraj, « Parametric studies on packed bed storage unit filled with PCM encapsulated spherical containers for low temperature solar air heating applications », *Energy Convers. Manag.*, vol. 78, p. 74-80, févr. 2014.
- [45] K. A. R. Ismail et J. R. Henríquez, « Numerical and experimental study of spherical capsules packed bed latent heat storage system », *Appl. Therm. Eng.*, vol. 22, n° 15, p. 1705-1716, oct. 2002.
- [46] J. P. Bédécarrats, J. Castaing-Lasvignottes, F. Strub, et J. P. Dumas, « Study of a phase change energy storage using spherical capsules. Part II: Numerical modelling », *Energy Convers. Manag.*, vol. 50, n° 10, p. 2537-2546, oct. 2009.
- [47] M. Wu, C. Xu, et Y.-L. He, « Dynamic thermal performance analysis of a molten-salt packed-bed thermal energy storage system using PCM capsules », *Appl. Energy*, vol. 121, p. 184-195, mai 2014.
- [48] N. G. Barton, « Simulations of air-blown thermal storage in a rock bed », *Appl. Therm. Eng.*, vol. 55, n° 1-2, p. 43-50, juin 2013.
- [49] M. Hänchen, S. Brückner, et A. Steinfeld, « High-temperature thermal storage using a packed bed of rocks – Heat transfer analysis and experimental validation », *Appl. Therm. Eng.*, vol. 31, n° 10, p. 1798-1806, juill. 2011.
- [50] Z. Ait Hammou et M. Lacroix, « A new PCM storage system for managing simultaneously solar and electric energy », *Energy Build.*, vol. 38, n° 3, p. 258-265, mars 2006.
- [51] S. Bellan *et al.*, « Numerical analysis of charging and discharging performance of a thermal energy storage system with encapsulated phase change material », *Appl. Therm. Eng.*, vol. 71, n° 1, p. 481-500, oct. 2014.
- [52] C. Arkar et S. Medved, « Influence of accuracy of thermal property data of a phase change material on the result of a numerical model of a packed bed latent heat storage with spheres », *Thermochim. Acta*, vol. 438, n° 1-2, p. 192-201, nov. 2005.

Chapitre IV : Ecoulement et transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP :  
théorie et état de l'art

- [53] A. Benmansour, M. A. Hamdan, et A. Bengueuddach, « Experimental and numerical investigation of solid particles thermal energy storage unit », *Appl. Therm. Eng.*, vol. 26, n° 5–6, p. 513-518, avr. 2006.
- [54] T. Kousksou, F. Strub, J. Castaing Lasvignottes, A. Jamil, et J. P. Bédécarrats, « Second law analysis of latent thermal storage for solar system », *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, vol. 91, n° 14, p. 1275-1281, sept. 2007.
- [55] W. Foudhil, B. DHIFAoui, S. BEN JABRALLAH, Y. DUTIL, et D. R. Rousse, « Simulation numérique du stockage thermique sensible et latent dans un canal vertical poreux : performance et comparaison », 2013.
- [56] L. Yang, X. Zhang, et G. Xu, « Thermal performance of a solar storage packed bed using spherical capsules filled with PCM having different melting points », *Energy Build.*, vol. 68, Part B, p. 639-646, janv. 2014.
- [57] T. K. Aldoss et M. M. Rahman, « Comparison between the single-PCM and multi-PCM thermal energy storage design », *Energy Convers. Manag.*, vol. 83, p. 79-87, juill. 2014.
- [58] S. Karthikeyan et R. Velraj, « Numerical investigation of packed bed storage unit filled with PCM encapsulated spherical containers – A comparison between various mathematical models », *Int. J. Therm. Sci.*, vol. 60, p. 153-160, oct. 2012.
- [59] K. A. R. Ismail et R. Stuginsky Jr, « A parametric study on possible fixed bed models for pcm and sensible heat storage », *Appl. Therm. Eng.*, vol. 19, n° 7, p. 757-788, juill. 1999.
- [60] L. Xia, P. Zhang, et R. Z. Wang, « Numerical heat transfer analysis of the packed bed latent heat storage system based on an effective packed bed model », *Energy*, vol. 35, n° 5, p. 2022-2032, mai 2010.
- [61] N. A. M. Amin, M. Belusko, et F. Bruno, « An effectiveness-NTU model of a packed bed PCM thermal storage system », *Appl. Energy*, vol. 134, p. 356-362, déc. 2014.



# **Chapitre V**

**Transfert thermique au sein d'un lit fixe de particules de MCP : approche numérique**



## Table des matières

1	Introduction.....	135
2	Modélisation numérique .....	136
2.1	Description du modèle.....	136
2.2	Conditions initiales et limites .....	139
2.3	Propriétés du MCP.....	139
2.4	Fluide caloporteur.....	142
2.5	Schéma numérique .....	142
2.6	Validation du modèle.....	144
3	Résultats et discussions.....	146
3.1	Profils de température du MCP .....	146
3.2	Influence de $H_{lit}$ .....	148
3.3	Influence de $T_{f,in}$ .....	148
3.4	Suivi du front de fusion .....	149
3.5	Efficacité.....	153
3.6	Durée de stockage.....	156
3.7	Pertes de charge .....	158
3.8	Durée de déstockage .....	160
3.9	Puissance de déstockage de la batterie .....	162
3.10	Dimensionnement de la future batterie.....	162
4	Conclusion et perspectives.....	165
	Bibliographie.....	166



## 1 Introduction

Un prototype de batterie thermique a été mis au point et des expérimentations ont été menées. Cela a permis de constituer une première base de données (cf. chap. III). L'étape suivante qui est l'objet de ce chapitre est de développer une modélisation numérique pour simuler le comportement dynamique et thermique d'une unité de stockage. Cette modélisation permettra d'évaluer l'influence des principaux paramètres physiques (débit, hauteur de lit, diamètre de particule) sur la cinétique des échanges thermiques.

La batterie, considérée dans ce travail, a la même configuration que celle étudiée sur notre dispositif expérimental. Elle est constituée d'un lit fixe de particules de MCP de taille centimétrique. En vue de répondre aux objectifs de notre étude, le Rubitherm RT 27 injecté dans les particules a été remplacé par un alcool gras pur, le Nacol 22-98 de température de fusion égale à 70°C, étant ainsi le matériau à haut point de fusion qui garantira une stabilisation élevée de la température dans la batterie.

Une des principales difficultés qui apparaît dans la modélisation est la prise en compte du changement de phase. Elle apparaît dans la non-linéarité des propriétés physiques à l'interface liquide-solide et dans le déplacement de cette interface au cours du temps. En l'absence de solution analytique pour des matériaux de dimension finie, deux types de méthodes ont été développés : les méthodes à suivi d'interface et celles à domaine fixe. Les méthodes à suivi d'interface nécessitent l'utilisation de schémas numériques avec maillage fixe ou mobile afin de connaître la position exacte de l'interface à chaque pas de temps. Les méthodes à domaine fixe, comme la méthode enthalpique, ou la méthode de la capacité calorifique apparente, considère un seul jeu d'équations de bilans pour les deux phases.

Dans le cadre de notre travail, nous avons opté pour la méthode de la capacité calorifique massique apparente  $C_{p_{app}}$  pour caractériser les propriétés de changement de phase du matériau. Une expression analytique gaussienne est prise en compte pour modéliser l'évolution du  $C_{p_{app}}$ .

Le modèle numérique exploité dans ce travail est le modèle de diffusion concentrique. Il s'agit d'un modèle hétérogène à deux phases qui a la particularité de prendre en compte la conduction thermique au sein des billes (cf. chap. IV - 4.2.2).

Dans un premier temps, nous décrivons le modèle numérique adopté pour notre simulation en précisant les conditions initiales et limites, les propriétés du MCP et du fluide caloporteur, et l'algorithme de calcul. Dans un second temps, nous procéderons à la validation de notre modèle avant de présenter les résultats de notre simulation évaluant l'effet des paramètres de contrôle sur les échanges thermiques.

## 2 Modélisation numérique

### 2.1 Description du modèle

Afin de décrire et d'expliquer convenablement le modèle numérique établi, il est important de détailler la configuration de l'unité de stockage thermique. Celle-ci est une enceinte cylindrique aux parois parfaitement isolantes, chargée de particules sphériques remplies de MCP et traversée par un fluide caloporteur. La batterie est dans une position verticale. Dans les parties supérieure et inférieure se trouvent des filtres-diffuseurs qui permettent à la fois d'homogénéiser la répartition du fluide caloporteur dans l'enceinte et de maintenir les billes de particules à des positions fixes pendant le passage du fluide. Le schéma général et simplifié de l'unité de stockage est illustré à la Figure 1.

Lors du processus de charge/décharge, le fluide caloporteur entre à température constante par le bas de la batterie pour céder/accumuler de la chaleur par transfert convectif. La charge/décharge est considérée comme complète lorsque la température devient uniforme sur l'ensemble du système. Avant de détailler les équations du modèle, il est fondamental de préciser les hypothèses :

- Les parois sont supposées parfaitement calorifugées et on pose de ce fait, une condition de flux nul sur les parois latérales en contact avec l'extérieur.
- Les filtres-diffuseurs ne sont pas pris en compte dans le modèle.
- L'écoulement du fluide caloporteur est axial selon l'axe noté  $y$  et s'effectue du bas vers le haut.
- Le modèle est unidimensionnel selon l'axe  $y$ .
- La vitesse de l'écoulement est supposée constante et uniforme.
- Les propriétés des MCPs sont constantes au-delà du changement d'état, excepté pour la capacité thermique massique  $C_p$  qui dépend de la température du matériau.
- Le lit est fixe et composé de particules sphériques de MCP de même diamètre.
- La porosité  $\varepsilon$  est isotrope et constante.
- La hauteur du lit est supérieure ou égale au diamètre d'une particule
- Le transfert de chaleur radiatif est négligé.
- Il n'y a aucune source de chaleur interne au sein de la batterie.

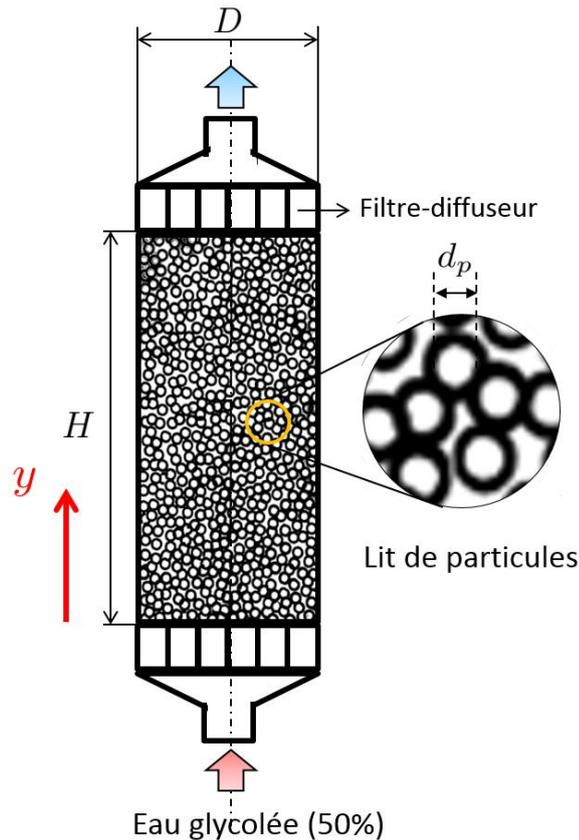


Figure 1 - Représentation schématique de la colonne de stockage

La hauteur et le diamètre du lit de particules sont notés  $H_{lit}$  et  $D$ . Le contenu du réservoir est chargé de particules de MCP de diamètre  $d_p$  avec une porosité de  $\varepsilon$ . La vitesse de l'écoulement du fluide caloporteur sera notée  $u_f$ . On adopte la même configuration que la batterie thermique de notre dispositif expérimental, à ceci près que le volume du lit est de 5L. La porosité est supposée être la même. Les principaux paramètres de la batterie sont résumés dans le Tableau 1 :

<i>Paramètres</i>	
Volume du lit $V$	5 L
Hauteur du lit $H_{lit}$	176,3 mm
Diamètre du réservoir $D$	190 mm
Diamètre de la particule de MCP $d_p$	20 mm
Nombre de particules $N_p$	690
Porosité $\varepsilon$	0,422

Tableau 1 - Principaux paramètres de la batterie

La fusion/solidification du lit de particules de MCP traversé par le fluide caloporteur est régie par les équations de conservation. Dans notre simulation, le modèle de diffusion concentrique à deux phases est considéré, prenant en compte la conduction thermique à l'intérieur de la particule de MCP. Malgré un temps de calcul pouvant parfois être long, nous avons fait ce choix par souci de précision.

Dans cette configuration, le lit s'observe comme un milieu poreux isotrope et chaque couche peut être modélisée et discrétisée à l'aide d'une seule sphère. Le système d'équations

de conservation d'énergie comprend deux expressions couplées : une phase liquide correspondant au transfert thermique dans le fluide caloporteur et une phase solide correspondant à la conduction interne à l'intérieur de la particule de MCP. Les particules étant supposées parfaitement sphériques, la conduction se fait radialement. En considérant les hypothèses stipulées précédemment, les équations du modèle sont les suivantes :

Phase fluide :

$$\varepsilon \rho_f C p_f \left( \frac{\partial T_f}{\partial t} + u_f \frac{\partial T_f}{\partial y} \right) = \varepsilon \lambda_f \frac{\partial^2 T_f}{\partial y^2} + a_p h_f (T_{p|r=r_0} - T_f) \quad (1)$$

Phase solide (conduction au sein de la particule) :

$$\rho_p \frac{\partial H_p}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( \lambda_p r^2 \frac{\partial T_p}{\partial r} \right) \quad (2)$$

où  $T_f$  et  $T_p$  représentent la température du fluide et de la particule de MCP respectivement,  $H_p$  l'enthalpie massique de la particule,  $C_p$  la capacité calorifique massique,  $\rho$  la masse volumique et  $\lambda$  la conductivité thermique. Le paramètre  $a_p$  désigne la surface spécifique de la particule par unité de volume (en  $m^{-1}$ ) et s'exprime comme suit :

$$a_p = \frac{6(1 - \varepsilon)}{d_p} \quad (3)$$

Cette expression est définie comme étant le rapport entre la somme des surfaces des particules du lit sur le volume total du lit.

Par ailleurs, un bilan de masse n'est pas nécessaire puisqu'à l'évidence la masse est conservée à travers notre système.

Le coefficient de transfert convectif entre le fluide et les particules de MCP au sein du lit de stockage noté  $h_f$ , est défini par :

$$h_f = \frac{Nu \lambda_f}{d_p} \quad (4)$$

et la corrélation utilisée pour le nombre de Nusselt  $Nu$  est celle proposée par [Wakao et al. \[1\]](#) :

$$Nu = 2 + 1.1 Re_p^{0.6} Pr^{1/3} \quad (5)$$

Les nombres de Reynolds  $Re_p$  et de Prandtl  $Pr$  s'écrivent respectivement :

$$Re_p = \frac{\rho_f d_p \varepsilon u_f}{\mu_f} \quad (6)$$

$$Pr = \frac{C p_f \mu_f}{\lambda_f} \quad (7)$$

## 2.2 Conditions initiales et limites

Les conditions initiales et les conditions limites du système sont :

$$t = 0; \forall y; \forall r \quad T_f(y, t = 0) = T_p(r, y, t = 0) = T_{initiale} \quad (8)$$

$$y = 0; t > 0 \quad T_f(y = 0, t) = T_{f,in} \quad (9)$$

$$y = H_{lit}; t > 0 \quad \frac{\partial T_f}{\partial y}(y = H_{lit}, t) = 0 \quad (10)$$

$$r = 0; \forall y; t > 0 \quad \frac{\partial T_p}{\partial r}(r = 0, y, t) = 0 \quad (11)$$

A la paroi de la particule :

$$r = r_0; \forall y; t > 0 \quad -\lambda_p \left. \frac{\partial T_p}{\partial r} \right|_{r=r_0} = h_f (T_{p|r=r_0} - T_f) \quad (12)$$

A l'instant initial, la température est homogène dans toute la batterie et égale à  $T_{initiale}$  aussi bien pour le MCP que pour le fluide.

A tout instant  $t > 0$ , la température d'entrée du fluide est toujours égale à  $T_{f,in}$ .

A la paroi de la particule, le flux conductif interne est égale au flux convectif entre le fluide caloporteur et la surface de la particule.

## 2.3 Propriétés du MCP

Le matériau considéré dans notre étude est du Nacol 22-98, un alcool gras pur qui présente une température de fusion  $T_m$  autour de 70°C et dont les propriétés thermo-physiques sont résumées ici :

### Propriétés thermodynamiques

$$T_m = 70^\circ\text{C}$$

$$Cp_s = 1,41 \text{ kJ.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

$$Cp_l = 1,57 \text{ kJ.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

$$L_{lat} = 181 \text{ kJ.kg}^{-1}$$

$$T_{onset} = 66,7^\circ\text{C}$$

$$T_{endset} = 72,18^\circ\text{C}$$

### Propriétés physiques

$$\rho_s = 850 \text{ kg.m}^{-3}$$

$$\rho_l = 780 \text{ kg.m}^{-3}$$

$$\lambda_s = 0,28 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

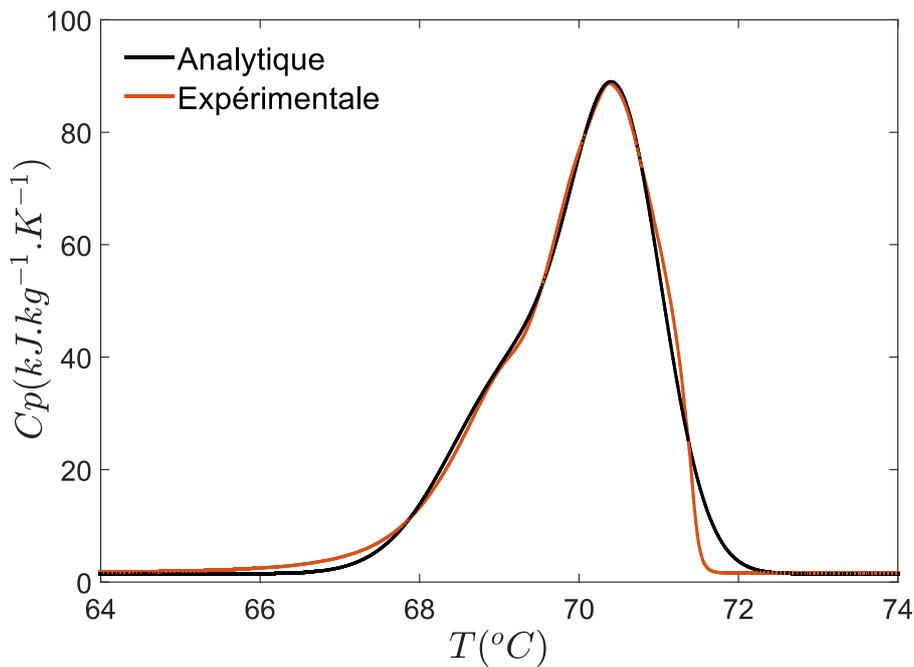
$$\lambda_l = 0,18 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

Les propriétés thermo-physiques de ce matériau ont été mesurées avec les mêmes instruments et en suivant le même protocole que ceux utilisés et présentés dans le chapitre II - section 2.2.

La Figure 2 présente la courbe expérimentale de la fusion du Nacol 22-98 obtenue par calorimétrie différentielle (DSC) avec une vitesse calorimétrique de 1°C/mn. L'équation 2 met en jeu la capacité thermique massique  $C_p$  du MCP à travers la variation d'enthalpie de la particule. Dans le cadre de notre étude, nous faisons le choix d'adopter la méthode de la capacité thermique apparente, noté  $C_{p_{app}}$ , afin de caractériser le changement d'état du matériau. De ce fait, on se propose de la modéliser par une expression analytique de type gaussienne qui s'écrit :

$$C_{p_{app}} = C_{p_{moy}} + \frac{K_1}{\sigma_1 \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(T-\mu_1)^2}{2\sigma_1^2}} + \frac{K_2}{\sigma_2 \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(T-\mu_2)^2}{2\sigma_2^2}} \quad (13)$$

où les espérances  $\mu_1$  et  $\mu_2$  sont égales respectivement à 70,5°C et 69,25°C, les écart-types  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  à 0,56°C et 0,85°C, les coefficients multiplicateurs  $K_1$  et  $K_2$  à 104 kJ.kg<sup>-1</sup> et 77,5 kJ.kg<sup>-1</sup> et  $C_{p_{moy}}$  représente la capacité calorifique massique moyenne du MCP, égale à 1,49 kJ.kg<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>.



**Figure 2 – Capacité thermique massique de la fusion du Nacol 22-98. En rouge, les données expérimentales obtenues par DSC et en noir, l'approche analytique de type gaussienne**

On peut clairement affirmer que la capacité calorifique apparente  $C_{p_{app}}$  obtenue par approche analytique (courbe noire) est en bon accord avec les données expérimentales du  $C_p$  réelle (courbe rouge).

Par ailleurs, la modélisation doit également prendre en compte les caractéristiques du changement d'état au regard des propriétés thermo-physiques du MCP. En effet, les valeurs de la masse volumique  $\rho_p$  et de la conductivité thermique  $\lambda_p$  du matériau changent lorsque s'opère la transition de phase. Ainsi, le processus de changement d'état peut être subdivisé en 3 phases : phase solide, phase de transition et phase liquide avec les caractéristiques suivantes :

(1) Phase solide :

$$T_p < T_{onset} ; \quad \lambda_p = \lambda_s \quad (14)$$

(2) Phase de transition :

$$T_{onset} < T_p < T_{endset} ; \quad \lambda_p \text{ évolue linéairement tel que :}$$

$$\lambda_p = \lambda_s + \frac{\lambda_s - \lambda_l}{T_{onset} - T_{endset}} (T - T_{onset}) \quad (15)$$

(3) Phase liquide :

$$T_{endset} < T_p ; \quad \lambda_p = \lambda_l \quad (16)$$

S'agissant de la masse volumique  $\rho_p$ , nous avons décidé de fixer une valeur constante et égale à la moyenne entre  $\rho_s$  et  $\rho_l$  afin que la masse de MCP soit toujours conservée au sein des particules (puisque leur volume demeure constant dans le modèle). Ainsi la masse volumique  $\rho_p$  vaut  $815 \text{ kg.m}^{-3}$ . Dans les conditions réelles, le matériau subirait une rétraction volumique de 8% lors de son passage entre la phase solide et la phase liquide (cf. Chapitre III).

## 2.4 Fluide caloporteur

Le fluide caloporteur utilisé dans notre modélisation sera de l'eau glycolée à 50% comme dans notre étude expérimentale. Les propriétés de ce fluide sont dépendantes de la température et s'expriment ainsi :

$$\rho_f = 1085 - 0,71.T(^{\circ}C) \quad (\text{kg.m}^{-3}) \quad (17)$$

$$\lambda_f = 0,419 \quad (\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}) \quad (18)$$

$$Cp_f = 3215 + 4,3.T(^{\circ}C) \quad (\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}) \quad (19)$$

$$\mu_f = 5,5 * 10^{-3} . e^{-0,021.T(^{\circ}C)} \quad (\text{Pa.s}) \quad (20)$$

$$\nu_f = \frac{\mu_f}{\rho_f} \quad (\text{m}^2.\text{s}^{-1}) \quad (21)$$

## 2.5 Schéma numérique

Les équations de conservation sont modélisées *via* le logiciel « Matlab » et sa résolution est effectuée en 1D selon l'axe  $y$  par méthode des différences finies. Au sein de la future batterie, les particules seront de taille millimétrique. Le rapport entre le diamètre de la colonne et le diamètre de la particule  $D/d_p$  sera alors suffisamment élevé (de l'ordre de 200) pour considérer les effets de bord négligeables. Ainsi, l'hypothèse d'une simulation 1D selon l'axe de la colonne  $y$  qui suppose d'avoir une température uniforme sur une section perpendiculaire au sens de l'écoulement, peut être justifiée.

Le maillage a été construit en discrétisant respectivement la hauteur  $H_{lit}$  en  $N_y = 6$  nœuds, espacés d'un pas de  $\Delta y = 35,26$  mm, et le rayon de la particule  $r_p$  en  $N_r = 101$  nœuds, espacés d'un pas de  $\Delta r = 0,1$  mm. Compte tenu de la répartition aléatoire des particules de MCP au sein du lit et du fait que celles-ci ne forment pas des couches parallèles et superposées comme implémentées dans notre modélisation, il serait imprécis et inapproprié d'augmenter le nombre de nœuds  $N_y$  selon l'axe  $y$ . De ce fait, un pas d'espace de  $\Delta y = 35,26$  mm est acceptable pour évaluer les échanges thermiques dans des zones dont la hauteur serait au moins 1,5 fois supérieure au diamètre d'une particule.

En vue de résoudre les équations différentielles, l'algorithme présenté sur la Figure 3 utilise un schéma implicite d'ordre 1 en temps et d'ordre 2 en espace. On appelle  $i$  le pas de temps et  $i_{\max}$  le temps final de la modélisation.

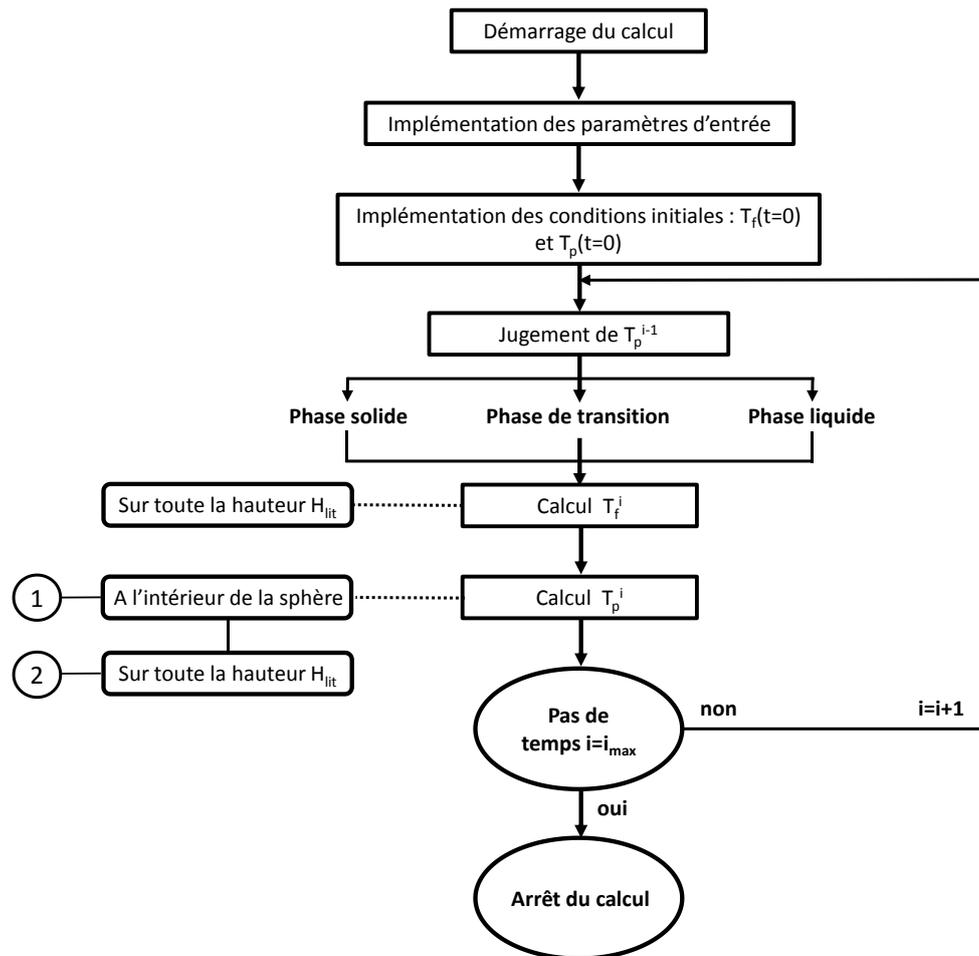


Figure 3 - Schéma du procédé du calcul numérique

Expliquons de manière détaillée les différentes étapes du procédé de calcul :

Etape 1 : Les paramètres d'entrée et les conditions initiales sont à indiquer. Au démarrage du calcul, ceux-ci sont implémentés dans des « variables ».

Etape 2 : La température du MCP est évaluée pour chaque point du maillage dans la particule et ce, sur toute la hauteur du lit pour ainsi connaître partout la phase du matériau (solide, transition ou liquide).

Etape 3 : La résolution de l'équation 1 du modèle est réalisée permettant de calculer la température du fluide  $T_f$  au temps  $i$ , sur toute la hauteur du lit.

Etape 4 : Puis, vient la résolution de l'équation 2 pour déterminer la température du MCP pour chaque point du maillage dans la particule et ce, sur toute la hauteur du lit.

Les étapes 3 et 4 appliquent la méthode des différences finies en exploitant des matrices tri-diagonales.

Etape 5 : Les étapes de 2 à 4 sont répétées par itération jusqu'à ce que le temps  $i_{max}$  soit atteint.

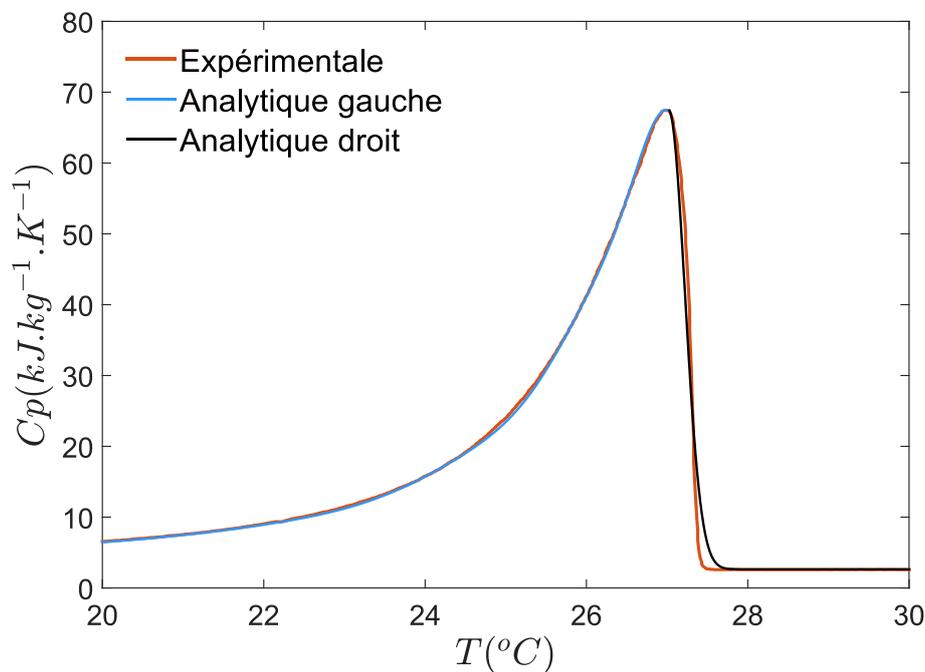
Etape 6 : Le calcul numérique s'arrête.

## 2.6 Validation du modèle

Avant de présenter une série de résultats liée à notre étude numérique, il est tout d'abord nécessaire de procéder à la validation du modèle. Pour ce faire, on propose de se fonder sur nos résultats expérimentaux présentés dans le chapitre III.

Dans l'étude expérimentale, rappelons que la batterie contient des billes chargées en RUB 10 (RT 27 + 10% polymère). Le lit est initialement à la température de 15°C ; le fluide caloporteur entre à la température  $T_{f,in}$  de 45°C et le débit est de  $\dot{V}_f=250$  L/h.

La capacité calorifique de fusion du  $C_p$  du RUB 10 est représentée Figure 4, que l'on approche par une courbe d'allure gaussienne. Il est à noter qu'en vue d'accroître la précision de l'approche analytique, nous avons modélisé un  $C_p$  gauche et un  $C_p$  droit comme illustré sur la Figure 4.



*Figure 4 - Capacité thermique massique de la fusion du RUB 10. En noir, les données expérimentales obtenues par DSC et en rouge, l'approche analytique de type gaussienne*

On peut affirmer que l'approche analytique est en bon accord avec les données expérimentales représentant le  $C_p$  du RUB 10.

L'étude comparative expérience-modélisation est présentée sur la Figure 5 à travers l'évolution de la température des particules de MCP lors du processus de charge au sein de la batterie à différentes hauteurs et pour deux débits différents (115 L/h et 250 L/h).

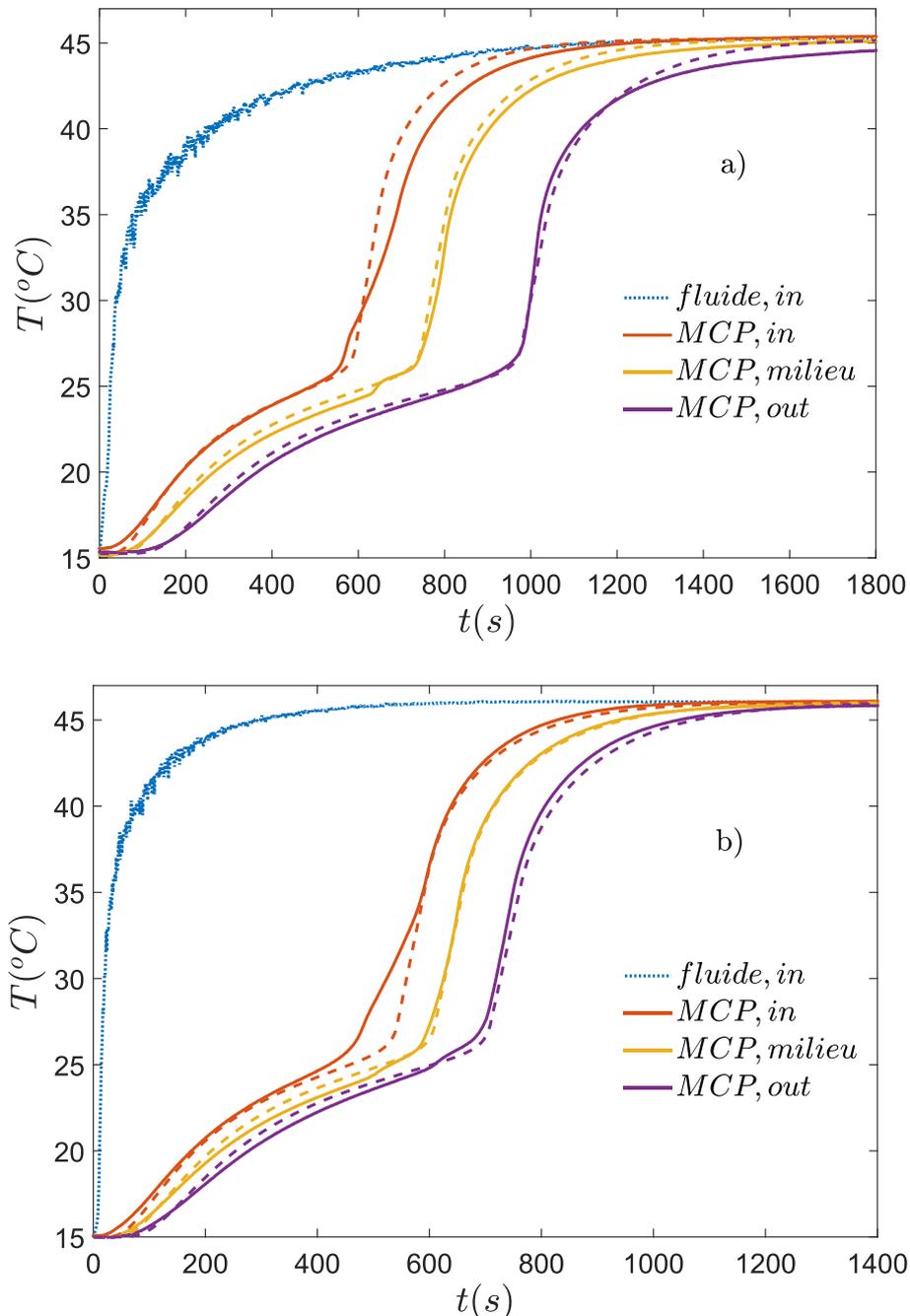


Figure 5 – Comparaison entre les résultats numériques (en pointillés) et les données expérimentales (en trait continu) obtenues via notre dispositif pour des débits de a) 115 L/h ; b) 250 L/h et pour différentes hauteurs au sein du lit

Sur la position dans la colonne de stockage, on remarque que le phénomène de changement de phase apparaît à des temps différents en raison de la stratification de la température. Les résultats numériques apparaissent en bon accord avec les résultats expérimentaux, permettant ainsi la validation du modèle.

En ce qui concerne ces simulations, pour un débit de  $\dot{V}_f=115\text{L/h}$  et de  $\dot{V}_f=250\text{L/h}$ , les valeurs moyennes du nombre de Reynolds  $\text{Re}_p$  sont respectivement de 4 et 8 ; et celles du coefficient de transfert convectif  $h_f$ , respectivement de 180 et 265  $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ .

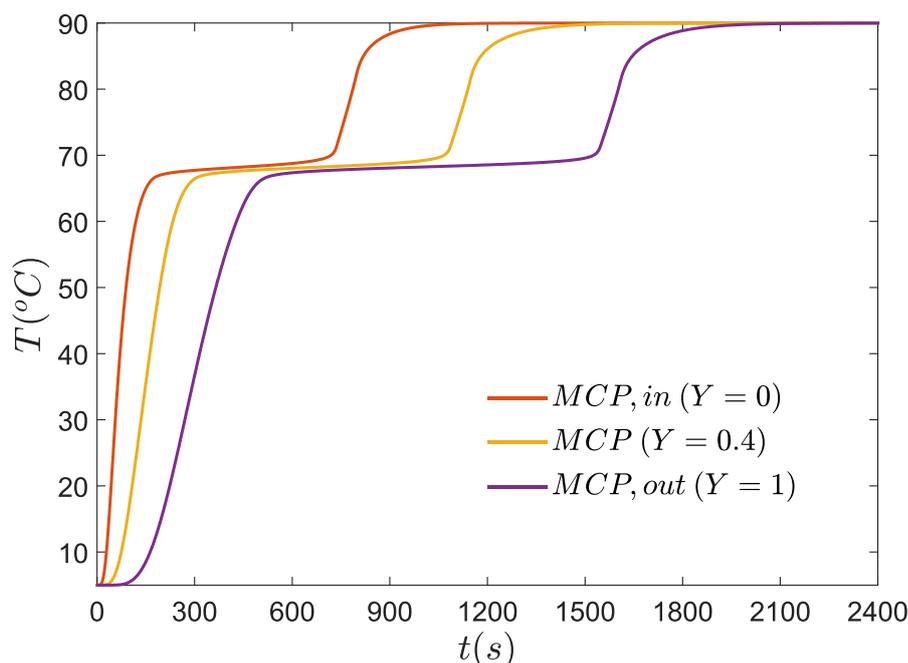
### 3 Résultats et discussions

Le modèle étant validé, nous entamons désormais une série de résultats dans l'optique de répondre à nos objectifs. Il va s'agir d'évaluer et d'optimiser les performances d'une batterie constituée de particules d'alcool gras de température de fusion  $70^{\circ}\text{C}$ , à travers des caractéristiques essentielles telles que la durée de stockage et l'efficacité. Pour ce faire, l'influence des paramètres physiques tels que le volume, le diamètre de la particule, le débit ou la température d'entrée sera étudiée.

Le fluide caloporteur entre dans la batterie avec un débit de  $\dot{V}_f=100\text{ L/h}$  (soit  $1\text{ mm/s}$ ) et une température  $T_{f,in} = 90^{\circ}\text{C}$ . Le lit de particules est initialement à la température  $T_{initiale} = 5^{\circ}\text{C}$ , correspondant à une température extérieure modérée en période hivernale. Rappelons que les dimensions de la batterie sont celles indiquées dans le Tableau 1. Par la suite, la température du MCP correspondra à la température moyenne de la particule.

#### 3.1 Profils de température du MCP

La Figure 6 montre l'évolution de la température du MCP à différentes hauteurs adimensionnées ( $Y=y/H_{lit}$ ) au sein de la batterie lors d'un processus de charge thermique.



**Figure 6 – Evolution de la température du MCP à différentes hauteurs adimensionnées lors d'un processus de charge thermique**

Le transfert thermique entre le fluide et le solide s'effectue par convection. Les valeurs moyennes du nombre de Reynolds  $Re_p$  et du coefficient de transfert convectif  $h_f$  sont respectivement de 20 et  $325\text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ . Chacune des courbes peut être divisée en cinq sections : la 1<sup>ère</sup> section est la période du début de charge thermique (très courte) où la température reste à la température initiale de  $5^{\circ}\text{C}$ , le MCP n'ayant absorbé aucune énergie. La 2<sup>ème</sup> section est la période de charge où le MCP commence à emmagasiner de l'énergie par

chaleur sensible. La 3<sup>ème</sup> section correspond à une absorption d'énergie par chaleur latente. Celle-ci démarre à la température de  $T_{onset} = 66,7^{\circ}\text{C}$  et se termine à la température de  $T_{endset} = 72,18^{\circ}\text{C}$ . L'évolution de la température dans cette section s'effectue plus lentement en raison de la forte quantité d'énergie absorbée par le MCP. La 4<sup>ème</sup> section est équivalente à la 2<sup>ème</sup> section où le transfert d'énergie se fait par chaleur sensible. Enfin, dans la dernière section, on atteint la température maximale de  $90^{\circ}\text{C}$ .

L'évolution du stockage de l'énergie au sein de la batterie a été calculée au moyen de  $L\%$ . Rappelons que celle-ci correspond au rapport entre l'enthalpie latente emmagasinée au temps  $t$  et la chaleur latente du MCP. Elle a donc été déterminée dans l'intervalle de temps correspondant au changement d'état. Elle est définie comme suit :

$$L_{\%}(t) = \frac{1}{L_{lat}} \left( \int_{T_{onset}}^{T(t)} C_{p_{MCP}} dT - C_{p_{moy}}(T(t) - T_{onset}) \right) * 100 \quad (22)$$

avec  $C_{p_{moy}} = 1,49 \text{ kJ.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ .

Puisque tout l'intérêt de l'utilisation de MCP réside dans sa chaleur latente, ce paramètre a été introduit pour estimer l'évolution du stockage de l'énergie latente au sein de la batterie. Ici, lorsque la température moyenne des particules dans la colonne  $T(t)$  atteint  $T_{endset} = 72,18^{\circ}\text{C}$  alors  $L_{\%}$  est égale à 100%.

La courbe de l'évolution de ce stockage d'énergie (latente) au sein de la batterie en fonction du temps est présentée sur la Figure 7.

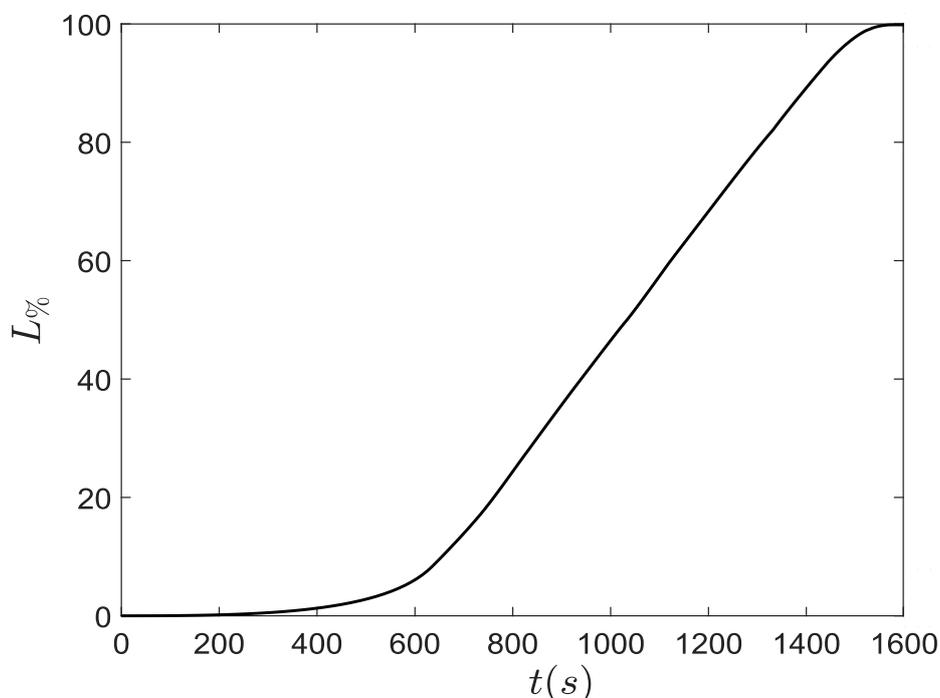


Figure 7 – Evolution du stockage d'énergie latente emmagasinée dans la batterie en fonction du temps

L'évolution de  $L_{\%}$  se fait en 3 étapes. Elle est dans un premier temps nulle de  $t = 0$ s jusqu'à  $t = 200$ s environ, période pendant laquelle le lit emmagasine de la chaleur sensible

uniquement. Puis, elle commence à croître, indiquant que la température du MCP dans le lit a atteint la température  $T_{onset}$ . Enfin, dans la 3<sup>ème</sup> étape, l'enthalpie latente évolue de manière linéaire et ce, jusqu'au stockage complet, à savoir lorsque le lit de MCP atteint une température supérieure ou égale à  $T_{endset}$ .

### 3.2 Influence de $H_{lit}$

La modélisation constitue un outil pour estimer l'influence de certains paramètres de contrôle sur la dynamique des échanges. On se propose de l'utiliser pour connaître l'influence de la hauteur du lit  $H_{lit}$  (ou du volume du lit) sur l'évolution de la température du MCP. Concrètement, cela signifie que seule une augmentation du nombre de particules dans le lit implique une modification de  $H_{lit}$ , en supposant que le diamètre de la colonne et la porosité demeurent constants et égaux respectivement à 190 mm et 0,42.

La Figure 8 présente l'évolution de la température du MCP en sortie de colonne ( $Y=1$ ) en fonction du temps, pour différentes hauteurs de lit.

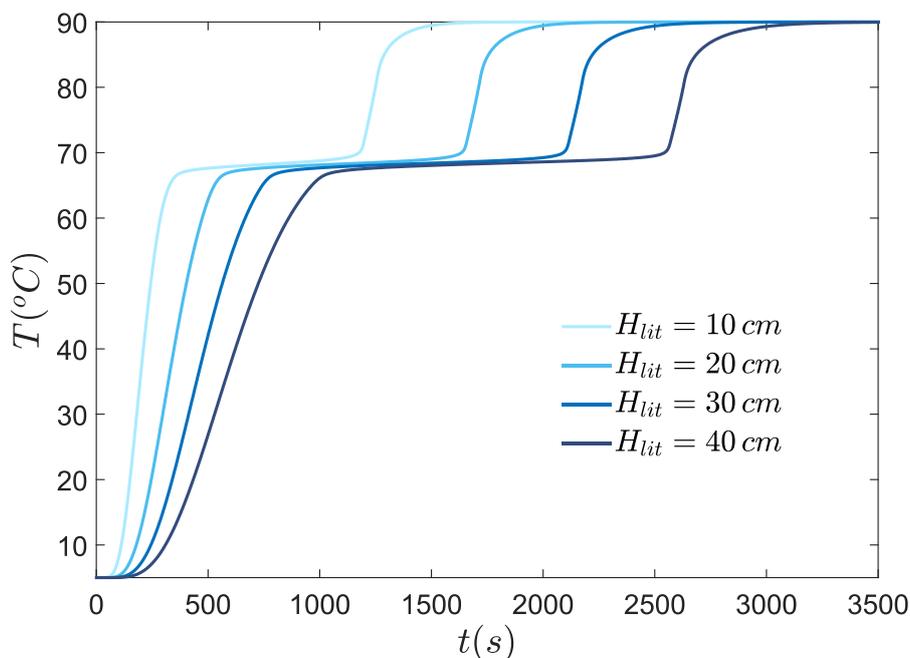


Figure 8 – Thermogrammes du MCP en sortie de colonne lors d'une charge thermique pour différents  $H_{lit}$

Les différentes courbes présentées ont exactement la même forme d'évolution. Elles se différencient par la durée du palier de changement de phase. En outre, plus  $H_{lit}$  est élevée et plus le stockage thermique est long, ce qui semble cohérent puisqu'une augmentation de la hauteur induit une augmentation du nombre de particules  $N_p$  qui implique par conséquent, d'avoir une capacité calorifique de stockage plus importante au sein de la colonne.

### 3.3 Influence de $T_{f,in}$

La Figure 9 présente l'évolution de la température du MCP en sortie de colonne ( $Y=1$ ) en fonction du temps, pour différentes températures d'entrée du fluide  $T_{f,in}$ .

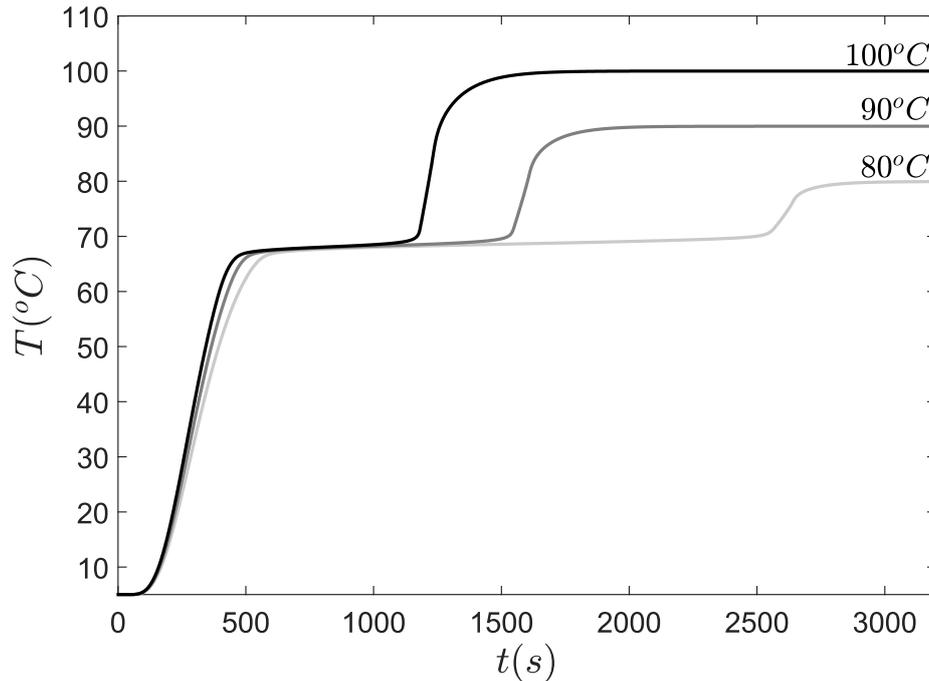


Figure 9 - Thermogrammes du MCP en sortie de colonne lors d'une charge thermique pour différentes températures d'entrée du fluide

Les résultats montrent que la longueur du plateau diminue de manière significative à mesure que la température  $T_{f,in}$  augmente. Ce constat avait déjà été fait dans notre étude expérimentale. De ce fait, le paramètre  $T_{f,in}$  apparaît être très influant sur la durée du processus de charge thermique.

### 3.4 Suivi du front de fusion

Le modèle peut également être exploité pour simuler le suivi du front de fusion, permettant notamment d'observer la stratification thermique au sein de la colonne, phénomène essentiel à évaluer pour les performances de la batterie.

Les images de la Figure 10 présentent le suivi du front de fusion du MCP (température moyenne des particules dans chaque couche) à l'intérieur de la colonne en fonction du temps. Le fluide entre par le bas à la température de 90°C. Le débit est fixé à  $\dot{V}_f=100\text{L/h}$ . La barre de couleur nuancée illustre la plage de température dans laquelle le changement d'état est observé, à savoir entre  $T_{onset}$  et  $T_{endset}$ . En dehors de cette plage, le MCP est soit sous forme liquide soit sous forme solide. Toutes les températures présentées sont celles du MCP.

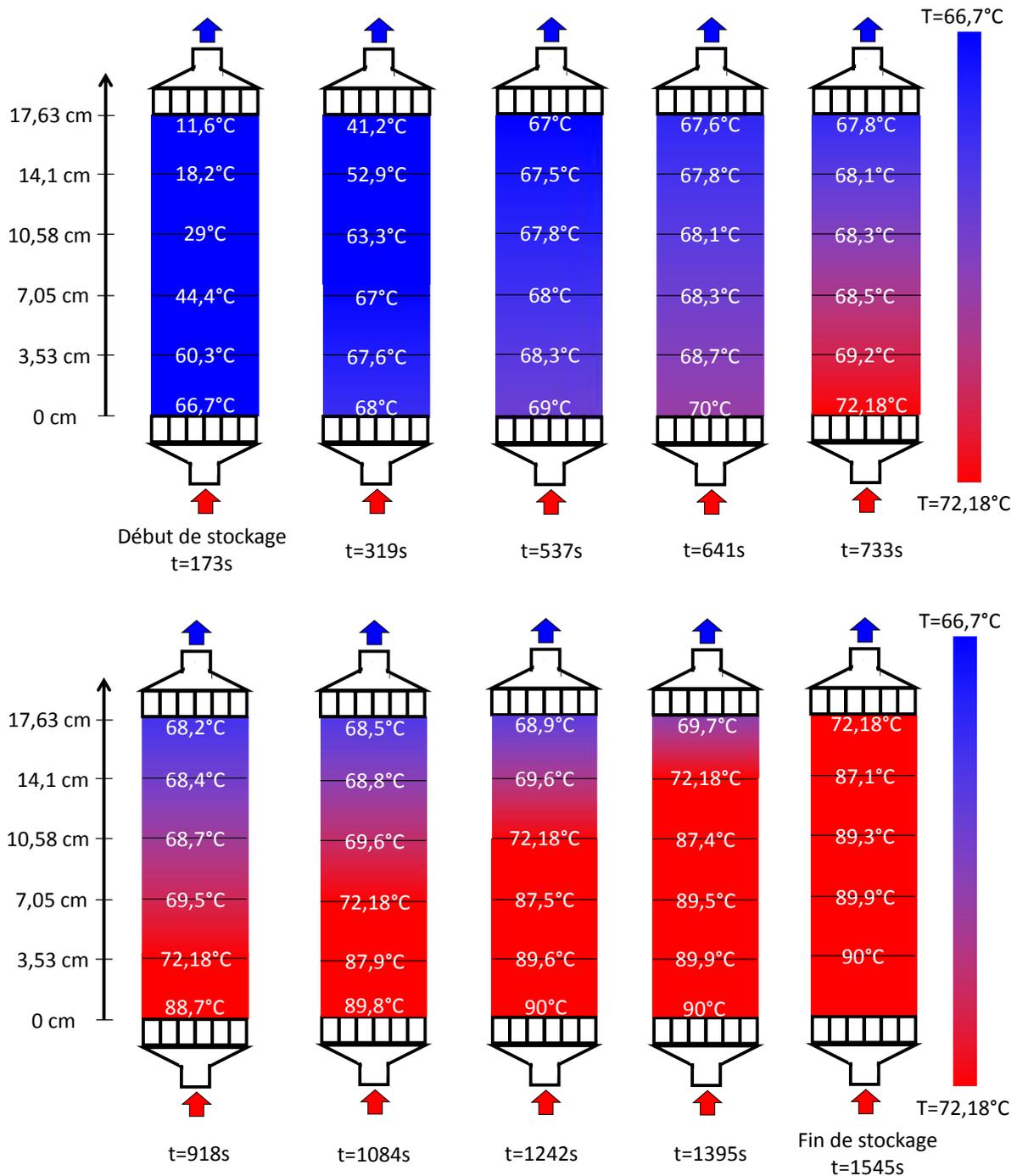


Figure 10 – Déplacement du front de fusion au sein de la colonne de stockage

Il est manifeste que le changement d'état a bien lieu entre 66,7°C et 72,18°C car dans cette plage de température, les variations thermiques du MCP sont beaucoup plus lentes, prouvant ainsi que le matériau emmagasine de la chaleur latente. Au-delà de ces températures, les variations étant plus rapides le matériau stocke de l'énergie par chaleur sensible.

Dans le cadre de cette analyse, on évalue le déplacement et la vitesse du front de fusion ainsi que l'évolution temporelle de la transition de phase du MCP dans la colonne. Bien que le changement d'état ait lieu sur une plage de températures comprises entre [66,7°C – 72,18°C], on estime que l'interface solide-liquide du front de fusion est à la température

$T_{onset}=66,7^{\circ}\text{C}$ . La Figure 11 présente le déplacement de cette interface et l'évolution de la zone de transition.

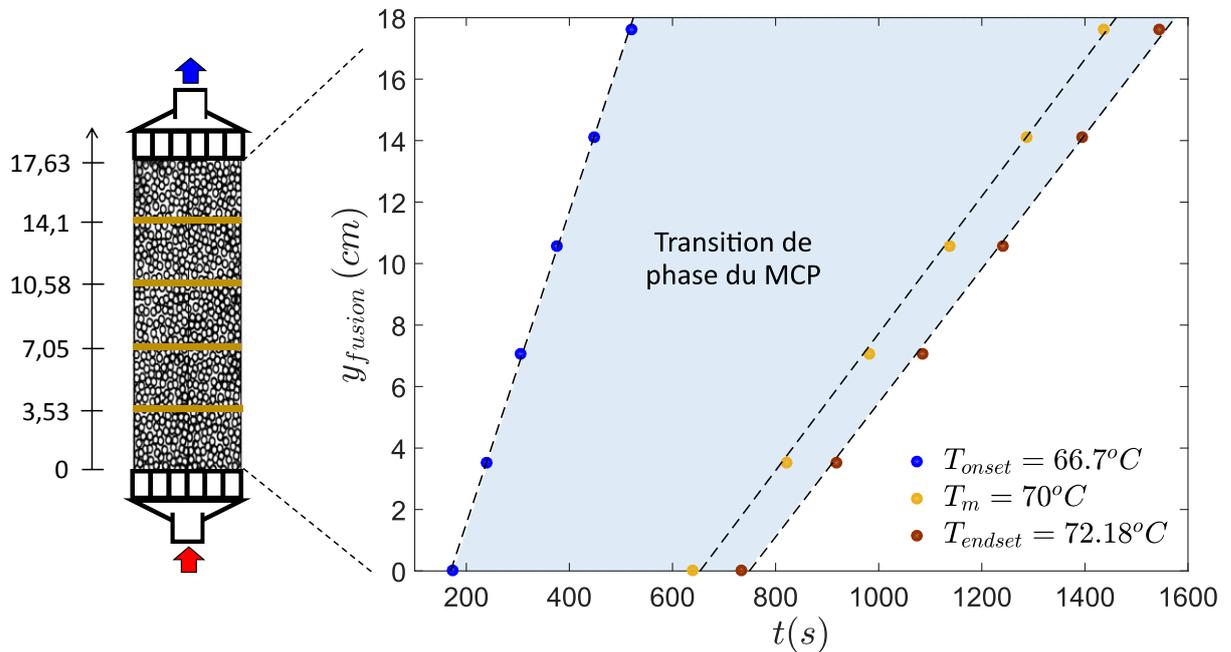


Figure 11 - Position du front de fusion en fonction du temps

On constate que la position du front de fusion  $y_{fusion}$  évolue de manière croissante et linéaire avec le temps. Le front de fusion met environ 6 mn pour traverser le lit et sa vitesse moyenne est de 3,06 cm/mn. La zone de transition de phase entre le début et la fin de la fusion met environ 23 mn pour traverser le lit.

Afin d'approfondir notre compréhension de la stratification thermique dans la colonne, nous avons observé durant la transition de phase les gradients de température entre le fluide et le MCP dans chaque couche, pour trois temps différents comme illustré Figure 12.

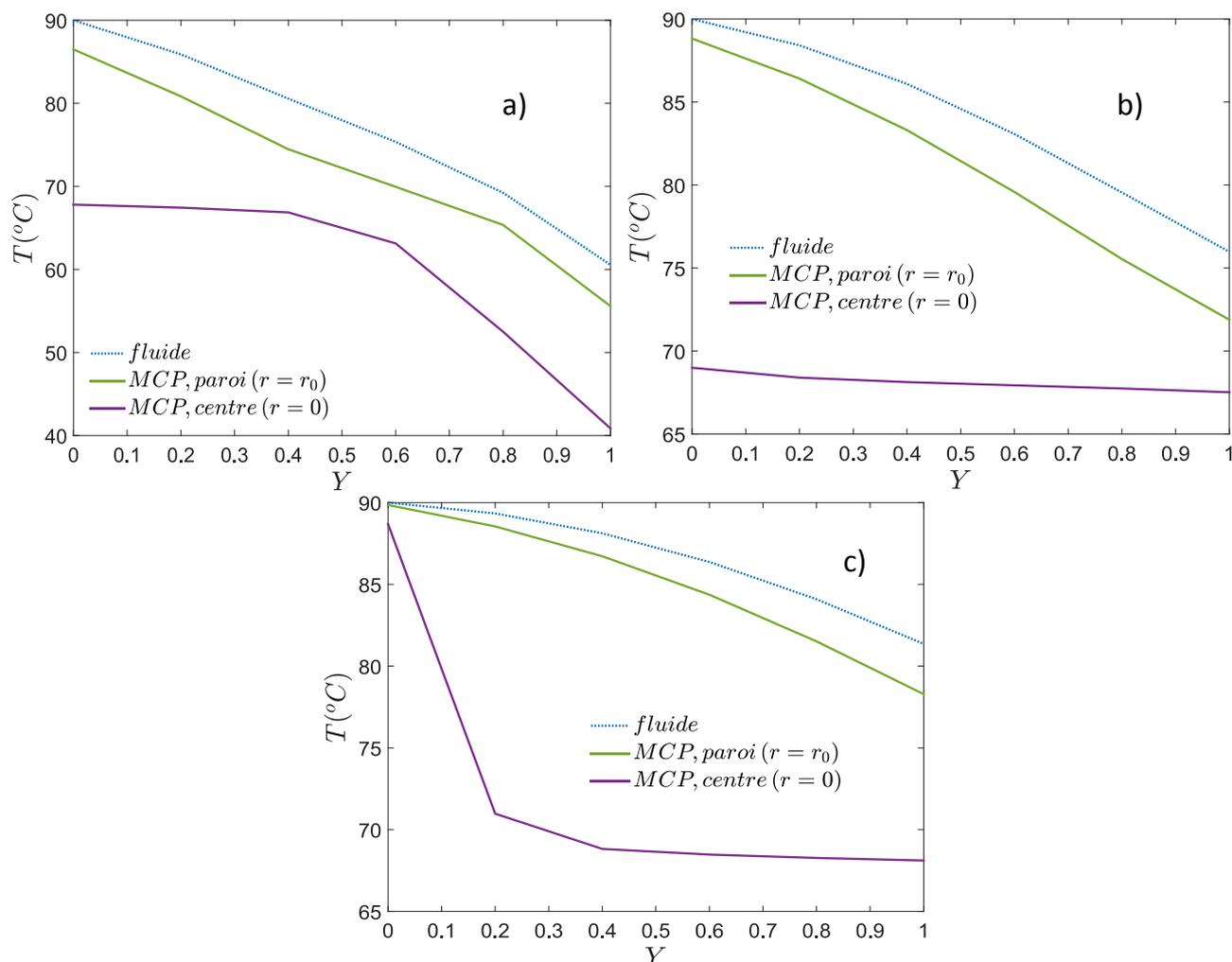


Figure 12 – Evolution de la température du fluide et du MCP dans chaque couche pour a)  $t=319s$  ; b)  $t=641s$  ; c)  $t= 918s$

D'après ces résultats, on observe l'évolution spatiale le long de la colonne d'un gradient de température assez élevé ( $\Delta T \sim 20^\circ\text{C}$ ) entre la paroi et le centre des particules. Alors que ce gradient  $\Delta T$  est relativement constant lorsque la batterie emmagasine de l'énergie par chaleur sensible, il augmente lors du début du changement d'état pour atteindre une valeur maximale de  $20^\circ\text{C}$  environ (Figure 12-a et-b). Puis, après que le gradient est progressé spatialement le long de la colonne, il diminue rapidement jusqu'à devenir nul (Figures 12-c).

Par ailleurs, on remarque dans la Figure 10 que lorsque le MCP est en cours de changement d'état, la stratification devient faible. Par exemple, entre  $t = 537s$  et  $t = 641s$ , la différence de température du matériau entre l'entrée et la sortie est au plus de  $2,4^\circ\text{C}$ . Or, on sait qu'une meilleure stratification thermique améliore l'efficacité du système. Il est donc nécessaire de modifier certains paramètres de fonctionnement afin d'optimiser la stratification. Pour ce faire, nous avons souhaité évaluer l'efficacité en fonction du débit du fluide  $\dot{V}_f$  et de la hauteur du lit  $H_{lit}$  (ou volume du lit).

### 3.5 Efficacité

La batterie à lit fixe de MCP peut être assimilée à un échangeur de chaleur puisqu'un échange thermique a lieu entre 2 milieux (fluide et MCP) physiquement séparés. Dans notre cas, lors de la charge thermique, le fluide caloporteur transfère sa chaleur au MCP se trouvant dans les billes. De ce fait, nous avons évalué l'efficacité instantanée de notre échangeur en phase de stockage qui s'exprime comme suit :

$$Eff(t) = \frac{\textit{puissance réelle échangée}}{\textit{puissance maximum transférable}} \quad (23)$$

La puissance maximale transférable s'obtient lorsque l'échangeur est de dimension infinie, c'est-à-dire lorsque la température du fluide en sortie est égale à la température initiale du lit. Ainsi,

$$\begin{aligned} Eff(t) &= \frac{\dot{m}_f C p_f (T_{f,in} - T_{f,out})}{\dot{m}_f C p_f (T_{f,in} - T_{initiale})} \\ &= \frac{T_{f,in} - T_{f,out}}{T_{f,in} - T_{initiale}} \end{aligned} \quad (24)$$

avec  $T_{f,in}$  et  $T_{f,out}$  les températures respectives d'entrée et de sortie du fluide et  $T_{initiale}$  la température initiale du lit, égale à 5°C.

La Figure 13 présente l'efficacité instantanée du lit de particules pour différents débits d'entrée.

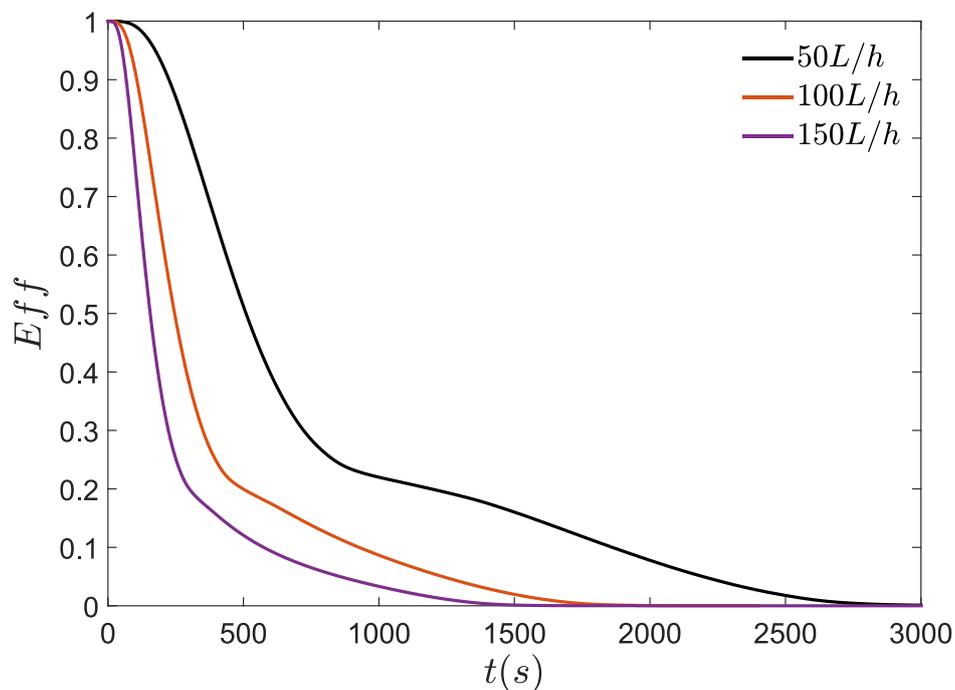


Figure 13 – Efficacité du lit en fonction du temps pour différents débits d'entrée

Quel que soit le débit, les courbes évoluent de manière décroissante avec une efficacité égale à 1 en début de stockage et une efficacité nulle en fin de stockage (puisque  $T_{f,in} = T_{f,out}$ ). Cependant, il est à noter que l'évaluation de l'efficacité doit se faire uniquement lorsqu'au démarrage du processus de stockage, le fluide en entrée traverse entièrement le lit. Autrement, l'évaluation est faussée. En effet, en entrée de la colonne les particules de fluide mettent un certain temps, appelé temps de passage, pour traverser le lit. A titre d'exemple, pour un débit d'entrée de  $\dot{V}_f = 50$  L/h le fluide met 360s, soit 6 mn pour traverser entièrement le lit. Le calcul de l'efficacité doit donc être pris en compte seulement à partir du temps  $t = 360$ s.

Pour autant, en appliquant la formule de l'efficacité (équation 24), les résultats obtenus ne permettent pas de juger des performances de notre échangeur par rapport aux paramètres de contrôle tels que le débit ou le volume du lit. C'est la raison pour laquelle nous avons introduit un nouveau facteur de performance qu'on appelle efficacité relative, notée  $Eff^*$  qui ne tient pas en compte de la chaleur sensible et qui se définit comme suit :

$$\begin{aligned}
 Eff^*(t) &= \frac{\dot{m}_f C p_f (T_{f,in} - T_{f,out})}{\dot{m}_f C p_f (T_{f,in} - T_m)} \\
 &= \frac{T_{f,in} - T_{f,out}}{T_{f,in} - T_m} \tag{25}
 \end{aligned}$$

avec  $T_m$  la température de fusion du MCP, égale à 70°C.

Autrement dit d'après l'équation 25, notre échangeur est considéré comme efficace lorsque la température du fluide en sortie est inférieure ou égale à la température de fusion du MCP.

La Figure 14 montre l'évolution de l'efficacité relative en fonction de  $L\%$  (énergie latente emmagasinée dans la batterie en %) pour différents débits d'entrée.

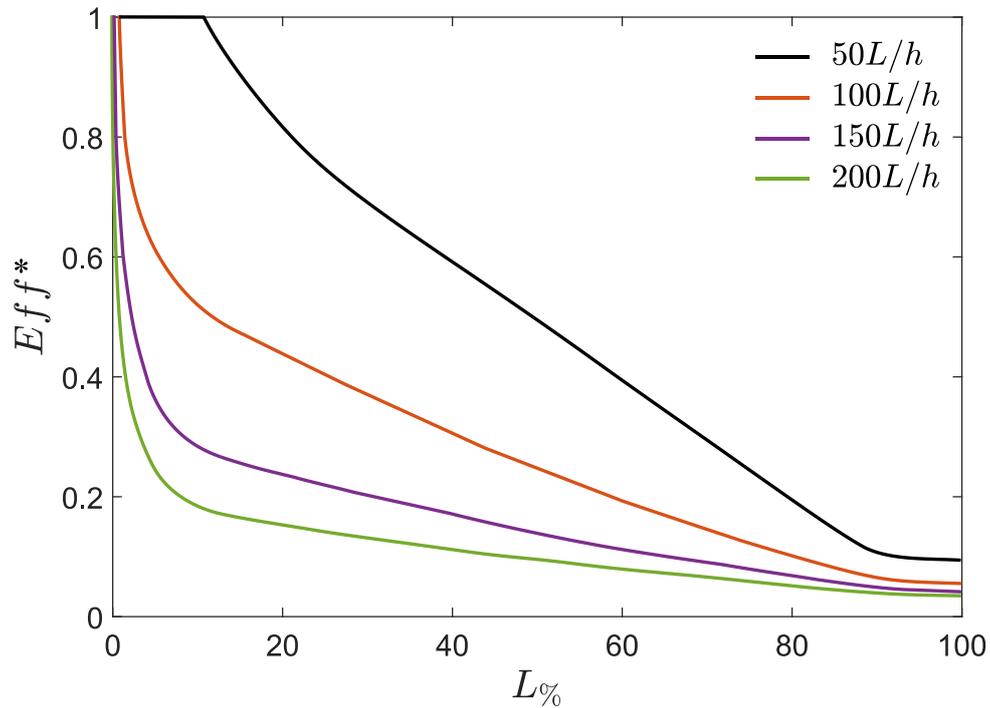


Figure 14 – Efficacité relative du lit en fonction de l'énergie latente emmagasinée pour différents débits

Les courbes sont toutes décroissantes quel que soit le débit. La batterie est donc plus efficace au début qu'à la fin du stockage et cette efficacité diminue à mesure que  $L\%$  croît. Du point de vue de l'équation 25, cela signifie qu'au début du stockage, la température de sortie du fluide  $T_{f,out}$  est inférieure ou égale à la température de fusion  $T_m$ , puis qu'elle augmente au fur et à mesure que l'énergie est stockée, jusqu'à atteindre  $T_{f,in}$ . En effet, en traversant le lit, le fluide cède sa chaleur aux particules de MCP qui utilisent cette énergie pour changer de phase. Les particules sont donc maintenues à température constante ( $70^\circ\text{C}$ ) pendant toute la durée du changement de phase, ce qui influe sur  $T_{f,out}$ . C'est pourquoi l'efficacité est plus élevée en début qu'en fin de stockage.

De plus, les courbes indiquent qu'une diminution du débit entraîne une augmentation assez significative de l'efficacité et ce, en raison d'une stratification thermique plus importante.

L'effet du volume du lit sur l'efficacité relative a également été étudié à travers la Figure 15 qui présente son évolution en fonction de  $L\%$ .

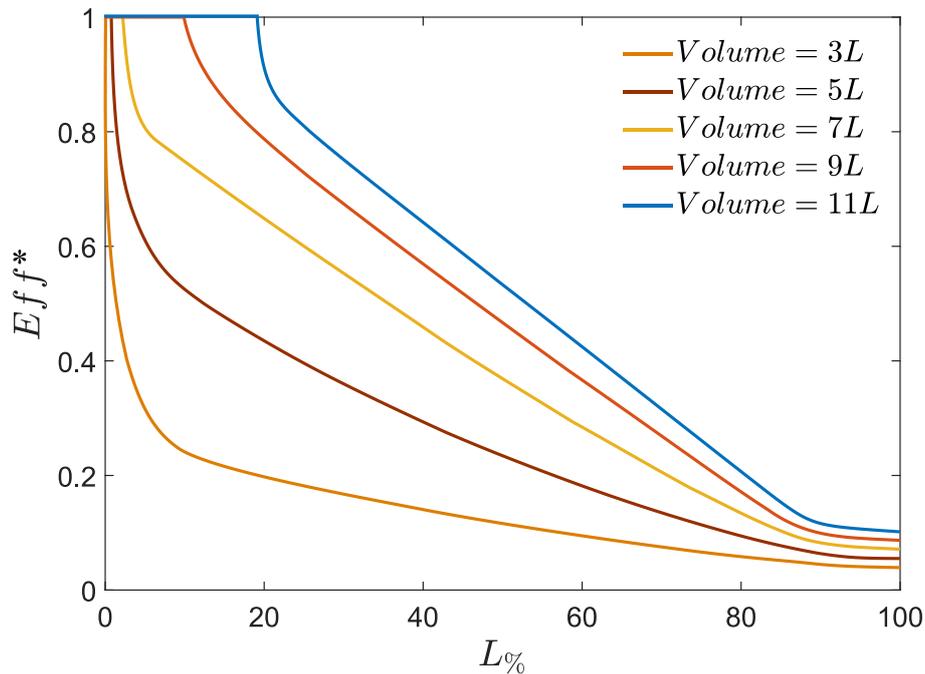


Figure 15 - Efficacité relative en fonction de l'énergie latente emmagasinée pour différents volumes du lit

La Figure 15 indique que l'efficacité relative est égale à 1 au début du stockage puis décroît en fonction de  $L\%$ . Ce constat s'observe pour les 5 courbes. Les résultats nous montrent également qu'une augmentation du volume (ou de  $H_{lit}$ ) entraîne une augmentation de l'efficacité, en raison là encore d'une stratification plus forte. En effet, une augmentation de la hauteur du lit tend à rendre la batterie plus dense énergétiquement, agissant de ce fait sur la stratification.

Pour conclure, une diminution du débit  $\dot{V}_f$  et une augmentation de  $H_{lit}$  permettra d'améliorer la stratification thermique de notre batterie et donc son efficacité. Mais quel sera son impact sur la durée de stockage  $t_s$  ?

### 3.6 Durée de stockage

Dans ce chapitre, on définit la durée de stockage  $t_s$  comme étant la durée entre le moment où la température du MCP en entrée de la colonne atteint  $T_{onset,m} = 66,7^\circ\text{C}$  et le moment où la température du MCP en sortie atteint  $T_{endset,m} = 72,18^\circ\text{C}$ . Ainsi, sur cet écart de température la chaleur latente sera entièrement stockée dans la batterie.

La Figure 16 présente l'évolution de la durée de stockage  $t_s$  en fonction du volume du lit pour différents débits d'entrée du fluide.

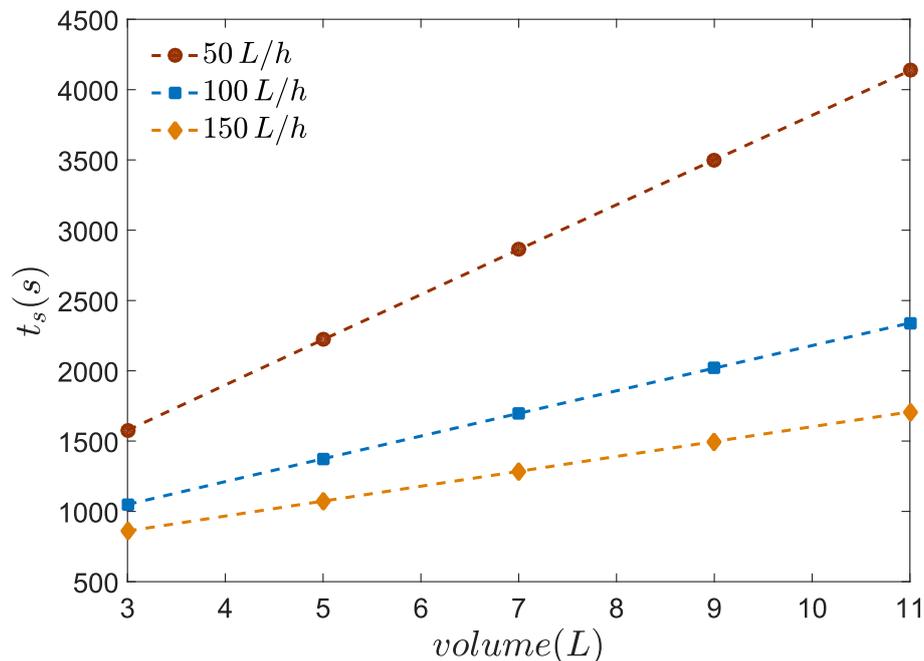


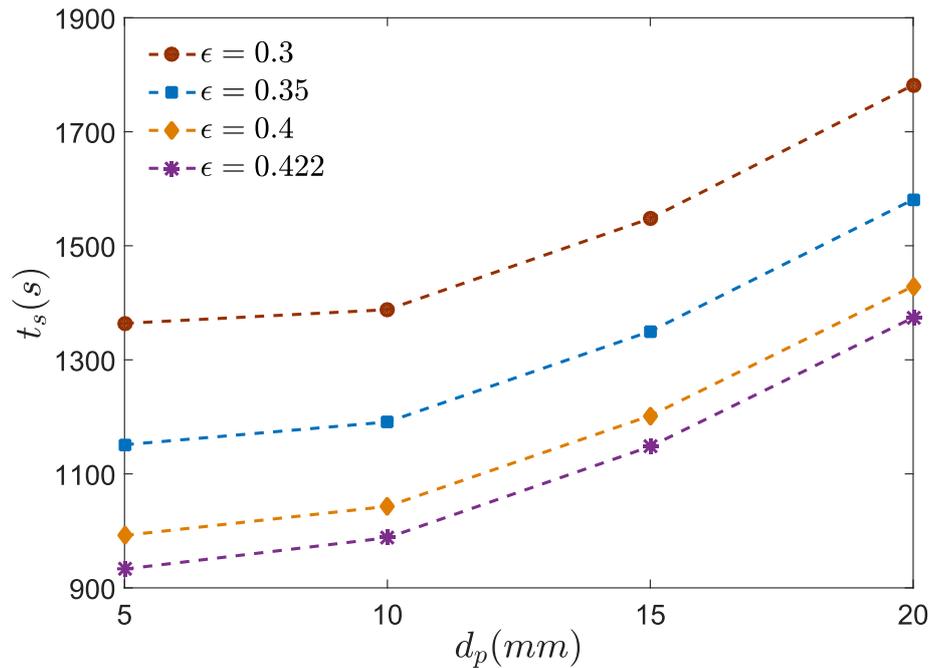
Figure 16 – Durée de stockage en fonction du volume du lit pour différents débits

Les données obtenues montrent une évolution linéaire croissante de la durée de stockage avec le volume de la colonne. La pente est d'autant plus importante que le débit imposé est faible.

Par conséquent, ces résultats (Figures 14 à 16) nous indiquent qu'il est indispensable de trouver un compromis entre les valeurs de débit  $\dot{V}_f$  et de hauteur  $H_{lit}$  afin d'atteindre un équilibre s'agissant des performances de notre batterie, qu'elles soient dynamiques avec la durée de stockage  $t_s$ , ou énergétiques avec l'efficacité relative  $Eff^*$  du lit.

A présent, nous souhaitons analyser numériquement l'effet de la taille de la particule sur  $t_s$ . D'après le chapitre IV, nous savons qu'une diminution de la taille de la particule engendre une augmentation de la stratification thermique du lit et donc par la même occasion, de son efficacité. Rappelons que dans le cadre de notre projet, les particules développées par notre partenaire industriel seront de taille millimétrique. Cependant, celles-ci seront extrudées et coupées en fines lamelles, ce qui indique qu'elles ne seront pas sphériques et n'auront pas la même taille. De plus, elles pourront se déformer sous l'effet du poids du lit. Leur forme aléatoire et leur taille vont donc influencer sur l'arrangement du lit et entraîner des irrégularités. De ce fait, la porosité du lit pourra atteindre des valeurs assez faibles.

C'est la raison pour laquelle nous avons évalué la durée de stockage  $t_s$  (cf. Figure 17) pour différentes valeurs de porosité  $\varepsilon$  du lit en fonction du diamètre de la particule  $d_p$ , en supposant que la hauteur du lit reste la même à savoir  $H_{lit} = 176,3$  mm (Volume = 5L). Une diminution de la porosité induit une augmentation du poids total du MCP et donc de ce fait, une augmentation de la capacité calorifique de stockage du lit.



*Figure 17 - Durée de stockage en fonction du diamètre de la particule de MCP pour différentes valeurs de porosité*

On note que la durée de stockage  $t_s$  est d'autant plus élevée que la taille de la particule  $d_p$  est importante. Pour des diamètres de particules très faibles, les courbes nous incitent à penser que la durée  $t_s$  tend vers une constante. Par ailleurs, une diminution de la porosité conduit à une augmentation de la durée de stockage.

Par conséquent, il est à retenir qu'en maintenant constant le volume du lit, une diminution de la taille de la particule  $d_p$  aura que des effets positifs sur les performances de la batterie, comme il est résumé ci-après :

- Système plus efficace en raison d'un rapport surface/volume ( $\sim 1/d_p$ ) plus grand.
- Augmentation de la densité calorifique du lit (car augmentation du poids total de MCP)
- Durée de stockage  $t_s$  inchangée (voire diminuée)

Il y a néanmoins un inconvénient qu'il ne faut pas omettre. Une diminution de la porosité accompagnée d'une augmentation du nombre de particules  $N_p$  au sein de la batterie implique naturellement une élévation des pertes de charges, notées  $\Delta P$ . Celles-ci doivent donc être évaluées et sont l'objet du paragraphe suivant.

### 3.7 Pertes de charge

Les pertes de charges dépendent d'un grand nombre de paramètres tels que la hauteur du lit, le diamètre de la particule, la porosité, la vitesse et les propriétés physiques du fluide. La littérature spécialisée fait état d'un certain nombre de corrélations empiriques qui ont été présentées au chapitre IV.

Parmi toutes ces corrélations, nous avons décidé d'utiliser l'équation d'Ergun [2] pour évaluer les pertes de charge dans un lit de particules, appropriée pour des régimes d'écoulement laminaires et pour des rapports  $D/d_p$  élevés. Rappelons l'équation :

$$\frac{d_p}{\rho_f u_f^2} \frac{\Delta P}{H_{lit}} = \left( 150 + 1.75 \frac{\text{Re}}{(1-\varepsilon)} \right) \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 \text{Re}} \quad (26)$$

avec  $u_f$  la vitesse du fluide,  $\rho_f$  la densité du fluide,  $\varepsilon$  la porosité,  $d_p$  le diamètre de la particule et  $\text{Re}$  le nombre de Reynolds modifiée  $\text{Re} = \frac{\rho_f u_f d_p}{\mu_f}$

Pour des débits d'entrée de l'ordre de 100 L/h correspondant à un nombre de Reynolds voisin de 3, les pertes de charges linéiques notées  $\Delta P/H_{lit}$ , varient entre  $10^1$  et  $10^5 \text{ Pa.m}^{-1}$  pour des valeurs de  $d_p$  de [1 - 20] mm. Dans le cas de notre colonne, ces pertes de charge sont suffisamment faibles pour les considérer comme négligeables (puisque avec  $H_{lit} = 176 \text{ mm}$ ,  $\Delta P < 0.2 \text{ bar}$ ).

Néanmoins, nous avons souhaité étudier les pertes de charge pour un débit plus élevé afin d'évaluer l'effet de la taille des particules. Un débit de  $\dot{V}_f = 1500 \text{ L/h}$  a été choisi (soit 15 fois le débit de référence utilisé jusqu'à présent dans notre étude) pendant une phase de stockage. Avec un tel débit d'entrée, il serait évidemment nécessaire de prendre en compte son impact sur l'efficacité du système et sur la durée de stockage.

La Figure 18 illustre les variations des pertes de charge linéiques en fonction de la taille de la particule  $d_p$  pour 2 diamètres de colonne différents, respectivement  $D=19 \text{ cm}$  et  $D=11 \text{ cm}$ .

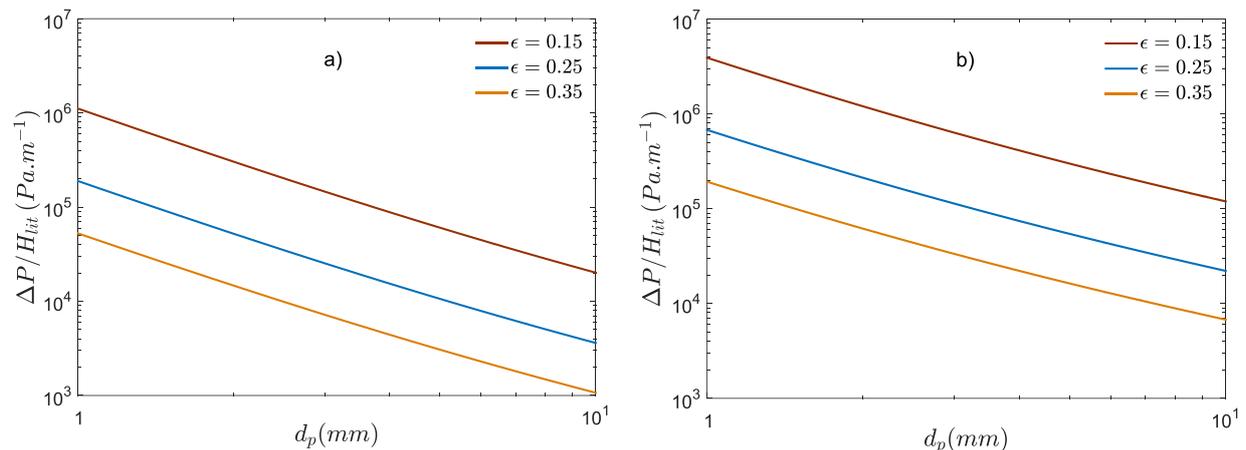


Figure 18 – Variations des pertes de charge linéiques en fonction de la taille de la particule pour des colonnes de diamètre a)  $D=19 \text{ cm}$  ; b)  $D=11 \text{ cm}$

Les courbes évoluent de manière linéairement décroissante sur une échelle logarithmique ; et plus la porosité est élevée, plus les pertes de charges sont significativement réduites. De ce fait, les résultats indiquent qu'avec un tel débit, seul une taille de particule et une porosité faibles engendrent des pertes de charges à considérer. Toutefois, une diminution

du diamètre de la colonne peut entraîner une élévation importante des pertes de charges linéiques comme on peut le remarquer sur la Figure 18-b et dans le Tableau 2.

A titre indicatif, le Tableau 2 exprime les pertes de charges  $\Delta P$  (en bar) d'une batterie de volume 5L pour différentes configurations avec un diamètre de particules  $d_p$  égal à 2mm. Ce dimensionnement n'a pas été choisi par hasard puisqu'il sera certainement celui de la prochaine unité de stockage à étudier. Le débit du fluide  $\dot{V}_f$  sera de 1500 L/h.

$D$ (cm)	$H_{lit}$ (cm)	Porosité $\varepsilon$	$\Delta P$ (bar)
19	17,6	0,15	0,5
		0,25	0,1
		0,35	0,03
15	28,3	0,15	<b>1,5</b>
		0,25	0,3
		0,35	0,1
11	52,6	0,15	<b>6,3</b>
		0,25	<b>1,1</b>
		0,35	0,3

Tableau 2 - Calcul de pertes de charges pour différentes configurations d'une batterie de volume 5L

Le Tableau 2 montre que les pertes de charge commencent à devenir importantes lorsque  $D < 15$  cm car la hauteur du lit est plus élevée et la vitesse du fluide percolant la batterie est plus rapide.

Par conséquent, s'agissant de notre batterie de contenance 5L, nous retiendrons que le débit d'entrée doit être suffisamment élevé et le diamètre de la particule suffisamment faible pour que les pertes de charges soient significatives. Pour autant, si l'on maintient les dimensions de notre colonne ( $D=19$ cm et  $H=17,6$ cm) les pertes de charge sont faibles, ce qui est satisfaisant. En outre, il sera toujours utile d'évaluer tous les facteurs pour obtenir le bon compromis en termes de performances dynamiques et énergétiques.

### 3.8 Durée de déstockage

Bien que le modèle n'ait pu être validé par des résultats expérimentaux dans le cadre du déstockage, il s'avère intéressant d'estimer en premières approximations la durée de déstockage thermique de la batterie. Dans le cas du déstockage, le lit est initialement à la température de 90°C et le fluide caloporteur entre à la température  $T_{f,in}$  de 5°C.

Dans ce chapitre, on définit la durée de déstockage  $t_d$  comme étant la durée entre le moment où la température du MCP en entrée de la colonne atteint  $T_{onset,c} = 72,18^\circ\text{C}$  et le moment où la température du MCP en sortie atteint  $T_{endset,c} = 66,7^\circ\text{C}$ . Sur cette plage de température la chaleur latente de la batterie sera entièrement déstockée.

La Figure 19 présente l'évolution de la durée de déstockage  $t_d$  en fonction du volume du lit pour différents débits d'entrée. Le diamètre des particules  $d_p$  est égal à 20 mm et la porosité est de 0,42.

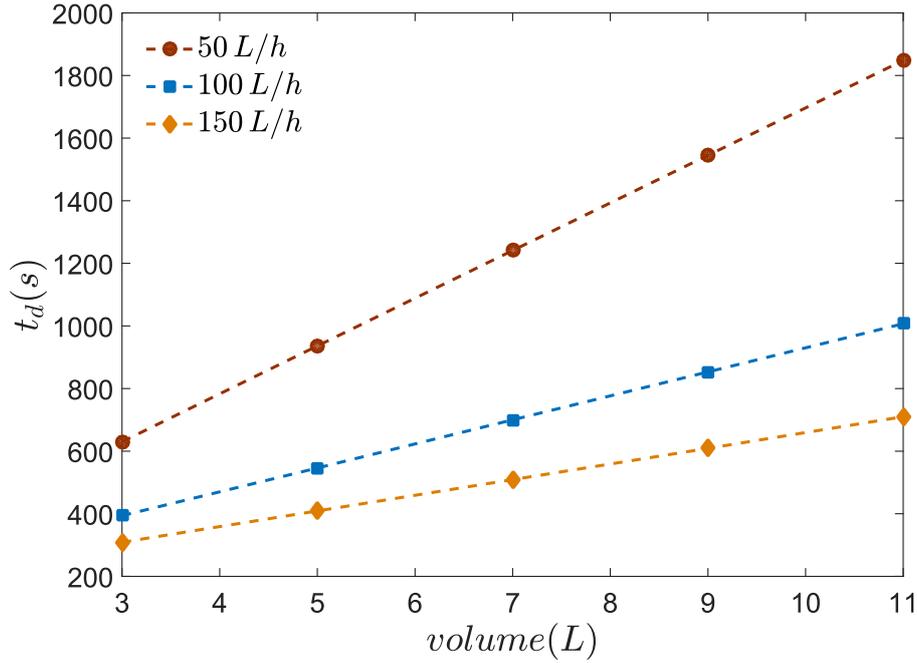


Figure 19 - Durée de déstockage en fonction du volume du lit pour différents débits

Ces résultats numériques présentent une évolution linéaire croissante et celle-ci est de plus en plus importante à mesure que le débit diminue.

En vue de déterminer si les valeurs obtenues dans la Figure 19 sont valables, nous avons décidé d'évaluer le temps caractéristique  $\tau_d$  correspondant au rapport entre la quantité d'énergie totale de MCP stockée avec la puissance de déstockage de la batterie, qui s'écrit :

$$\tau_d = \frac{Q_{MCP}}{P_{déstockage}} = \frac{\rho_p (1 - \varepsilon) V (\Delta h_s + L_{lat} + \Delta h_l)}{\rho_f \dot{V}_f C_{p_f} (T_{f,out} - T_{f,in})} \quad (27)$$

avec  $\rho_f(47,5^\circ\text{C}) = 1051 \text{ kg.m}^{-3}$ ,  $C_{p_f}(47,5^\circ\text{C}) = 3,42 \text{ kJ/kg.K}$ ,  $T_{f,out} = T_m = 70^\circ\text{C}$  et  $T_{f,in} = 5^\circ\text{C}$ .

Précisons que dans les conditions réelles d'un déstockage, la température de sortie du fluide  $T_{f,out}$  varie en fonction du temps. Cependant, pour faciliter les calculs, nous considérerons que cette température est constante et égale à la température de fusion  $T_m = 70^\circ\text{C}$  et ce, durant toute la durée du déstockage. Après simplification, on obtient :

$$\tau_d = 0,876 \frac{V}{\dot{V}_f} \quad (28)$$

En appliquant cette formule pour différentes valeurs de  $V$  et de  $\dot{V}_f$ , il est facile de s'apercevoir que  $t_d \sim 3 \tau_d$ . Cette différence s'explique par le fait que la température du fluide en sortie de la batterie  $T_{f,out}$  est supposée toujours égale à  $70^\circ\text{C}$ , ce qui correspond à un cas idéal. Par conséquent, on peut affirmer que le temps  $t_d$  est du même ordre de grandeur que le temps caractéristique  $\tau_d$  et que les résultats de la Figure 19 sont cohérents. De plus, la formule 28 met en lumière l'influence de  $V$  et de  $\dot{V}_f$  sur le temps de déstockage comme observé sur la Figure 19.

Par ailleurs, les courbes de la Figure 19 nous indiquent une nouvelle fois qu'il est nécessaire de trouver un consensus entre certains paramètres de contrôle dont le débit pour obtenir de bonnes performances s'agissant de notre batterie.

### 3.9 Puissance de déstockage de la batterie

Au-delà de l'évaluation des performances de la batterie, notre modèle a également pour rôle de répondre aux exigences du cahier des charges. S'agissant du circuit de chauffage présent dans le véhicule, la puissance de l'échangeur air-fluide qui a pour fonction d'insuffler de l'air chaud à l'intérieur de l'habitacle avait été calculée. Elle était comprise entre 1,7 et 5,3 kW (cf. Chapitre III).

En supposant que cet échangeur air-fluide soit parfait, nous avons calculé les valeurs de débits correspondants à cette gamme de puissance. Rappelons que le diamètre de la colonne et la hauteur du lit sont respectivement de  $D = 19\text{cm}$  et  $H_{lit} = 17,6\text{ cm}$ .

D'après l'équation 27, la puissance de déstockage  $P_{déstockage}$  varie approximativement de 1,3 kW à 5,2 kW, correspondant à la gamme de puissance de l'échangeur air-fluide sur une plage de débits allant de [20 – 80] L/h. Ainsi, ces valeurs de débits correspondent aux valeurs de dimensionnement de notre circuit de chauffage.

Il est primordial de comparer la puissance de déstockage avec la puissance dissipée par les pertes de charge (ou puissance hydraulique) qui s'écrit :

$$P_{diss} = \dot{V}_f \Delta P \quad (29)$$

Or, comme nous avons pu l'observer dans la partie « 3.7 - Pertes de charge », pour une gamme de débits aussi faibles, les pertes de charges  $\Delta P$  peuvent être considérées comme négligeables. Par conséquent, dans ce cas de figure la puissance de déstockage  $P_{déstockage}$  est nettement supérieure à la puissance dissipée  $P_{diss}$ , autrement dit le facteur énergétique gains/pertes est très élevé.

### 3.10 Dimensionnement de la future batterie

Notre modélisation peut constituer un outil pour le dimensionnement d'une batterie thermique. Dans cette dernière partie, après avoir évalué les différents paramètres de contrôle influant sur les performances de la batterie, on se propose d'exploiter notre modélisation pour estimer les caractéristiques de la future batterie.

D'après les résultats de ce chapitre et compte tenu que les prochaines particules de MCP développées par notre partenaire industriel seront de taille millimétrique, on fixe dans le cadre de ce dimensionnement les caractéristiques suivantes pour notre batterie :

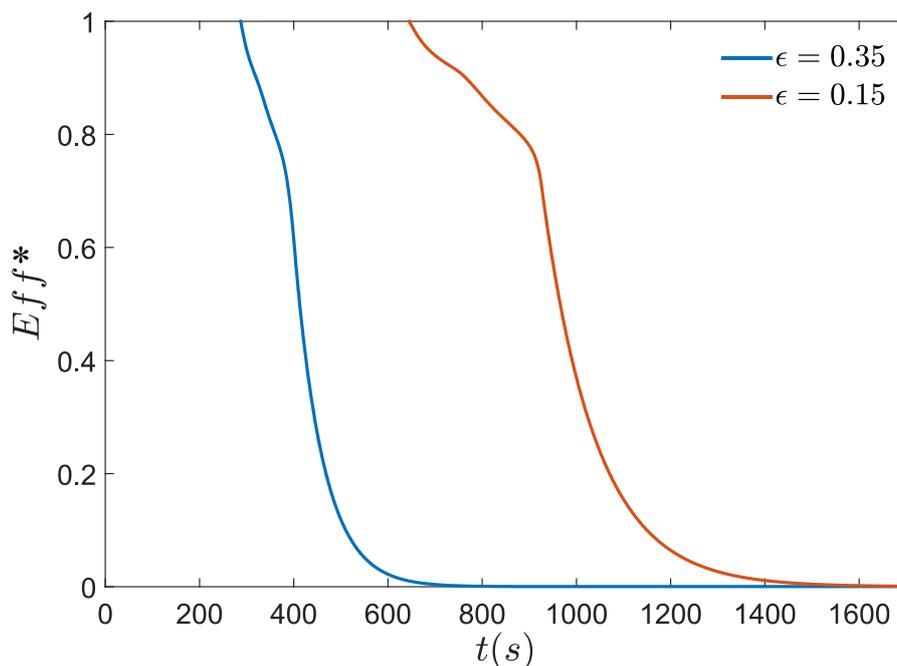
<i>Dimensions</i>	
Volume du lit	5 L
Hauteur du lit $H_{lit}$	176,3 mm
Diamètre du réservoir $D$	190 mm
Diamètre de la particule de MCP $d_p$	2 mm

*Tableau 3 – Dimensions éventuelles de la future batterie*

On se place dans une gamme de porosité du lit  $\epsilon$  comprise entre [0,15 – 0,35], ce qui semble acceptable pour ce type de particule de forme aléatoire et de taille millimétrique.

### Mode « stockage thermique »

En mode charge thermique, l'objectif est d'avoir une durée de stockage  $t_s$  faible tout en ayant une efficacité élevée. Prenant en compte toutes ces données, un débit d'entrée de  $\dot{V}_f=500 \text{ L/h}$  peut être estimé comme convenable. En effet, avec ce débit, la durée de stockage  $t_s$  est au plus de 920s, soit 15mn (pour une porosité  $\epsilon = 0,15$ ) ; ses pertes de charges sont négligeables et l'efficacité du lit semble satisfaisante comme illustré sur la Figure 20.



*Figure 20 – Efficacité relative du lit pour deux valeurs de porosité*

### Mode « déstockage thermique »

Ce mode s'opère lorsque le véhicule est en fonctionnement. Il est donc essentiel d'adapter la durée de déstockage thermique  $t_d$  avec la durée d'utilisation du véhicule. Bien que l'autonomie d'un véhicule électrique s'évalue en distance kilométrique, on estime que sa durée d'utilisation est en moyenne de 2h.

Pour les puissances requises présentées dans la partie 3.9, le débit doit se situer autour de  $\dot{V}_f=50\text{L/h}$ . Avec ce débit, l'utilisation de notre simulation a permis d'établir la durée de déstockage  $t_d$  en fonction du volume de la batterie illustré Figure 21.

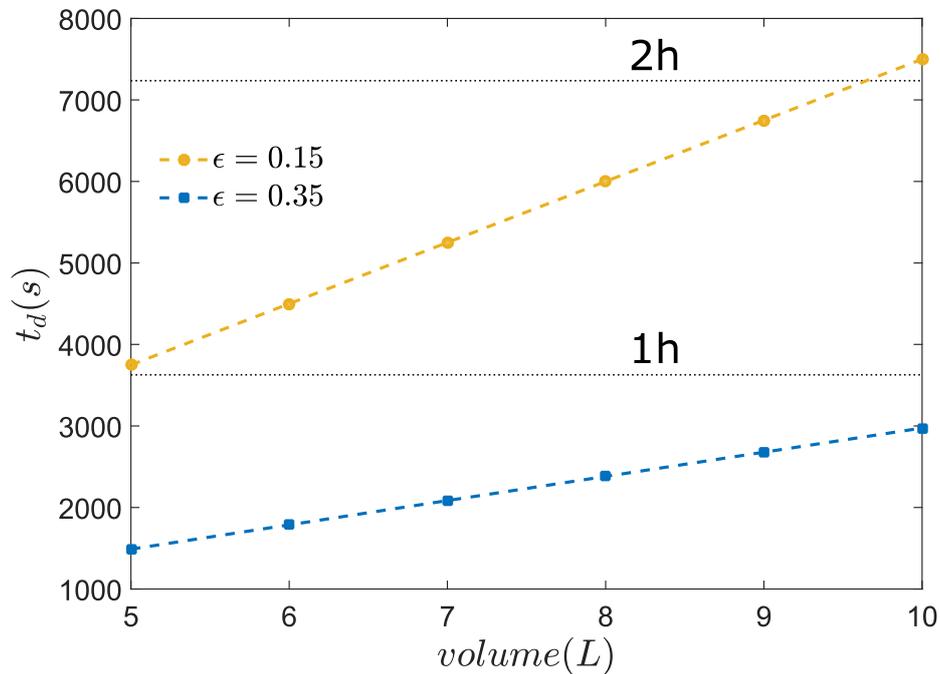


Figure 21 - Durée de déstockage en fonction du volume du lit

On observe que pour un volume de 5L, la durée de déstockage  $t_d$  ne satisfait pas la durée complète d'utilisation d'un véhicule estimée à 2h. Ceci étant, elle est dans une plage de temps allant de [1500 - 3750] s, soit [25 - 60] mn, ce qui semble assez raisonnable. Toutefois, les résultats montrent qu'il est nécessaire d'augmenter le volume (en l'occurrence ici la hauteur du lit  $H_{lit}$ ) pour avoir une durée  $t_d$  plus élevée. Néanmoins, un volume trop important peut s'avérer contraignant en termes de place et de poids au sein du véhicule.

## 4 Conclusion et perspectives

Nous avons développé un modèle numérique unidimensionnel par méthode des différences finies, mettant en jeu des équations de conservation séparées pour les phases solide et fluide, qui prend en compte la conduction thermique à l'intérieur de la particule. Cette étude permet de simuler le comportement dynamique et thermique d'une unité de stockage (batterie) chargée en particules de MCP (alcool gras).

La méthode de la capacité thermique apparente ayant été adoptée, le thermogramme massique du MCP de température de fusion  $70^{\circ}\text{C}$  est représenté par une fonction d'allure gaussienne. Une étude comparative entre les résultats numériques et les données expérimentales issues du chapitre III a permis de valider le modèle.

L'objectif de ce chapitre est d'optimiser les facteurs de performances d'une batterie telles que les durées de stockage/déstockage  $t_s$  et  $t_d$ , l'efficacité du lit  $Eff$  et les pertes de charge  $\Delta P$ , à travers l'étude des paramètres de contrôle.

Les principaux résultats indiquent :

- La hauteur du lit  $H_{lit}$  et le temps de charge sont proportionnels
- La position du front de fusion est linéaire par rapport au temps
- Diminution du débit  $\dot{V}_f$  et augmentation de  $H_{lit} \Rightarrow$  Amélioration de l'efficacité mais augmentation de la durée de stockage  $t_s$
- Une diminution de la taille de la particule  $d_p$  permet : a) une meilleure efficacité du lit et b) une augmentation de la capacité calorifique de stockage.

Par conséquent, pour obtenir une batterie thermique efficace, l'étude numérique nous apprend qu'il est fondamental de la charger en particules de diamètre faible (de l'ordre du mm) et de trouver un bon compromis entre le débit d'entrée et la hauteur du lit. En ce qui concerne les pertes de charge, elles ne sont pas contraignantes sauf dans des conditions bien particulières.

### Perspectives

A l'avenir, il s'agira de valider notre modèle en phase de décharge thermique en vue de poursuivre l'étude numérique sur l'influence des paramètres dans le cadre du déstockage. Sur la base des conclusions de ce chapitre, le prochain enjeu sera de réaliser une batterie thermique chargée en particules de MCP de taille réduite (environ 2mm) dont la configuration répondra à l'optimisation des performances du système. La société MCI Technologies, partenaire dans le consortium du projet VEGETO, aura pour mission de produire ces particules de MCPs de taille millimétrique. Celles-ci devront être de nature végétale et thermiquement stables.

## Bibliographie

- [1] N. Wakao, S. Kaguei, et T. Funazkri, « Effect of fluid dispersion coefficients on particle-to-fluid heat transfer coefficients in packed beds », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 34, n° 3, p. 325-336, janv. 1979.
- [2] S. Ergun, « Fluid Flow Through Packed Columns, Ergun », *Scribd*, 1952. [En ligne]. Disponible sur: <https://fr.scribd.com/doc/306554469/Fluid-Flow-Through-Packed-Columns-Ergun>.

# Conclusion et perspectives

La recherche présentée dans ce manuscrit s'inscrit dans un vaste programme qui porte sur l'amélioration technologique du véhicule électrique. Afin de conserver les propriétés optimales du véhicule en période hivernale, on s'est intéressé à une solution de stockage thermique par chaleur latente dédiée spécifiquement au chauffage de l'habitacle. L'énergie thermique serait chargée dans un réservoir de stockage en même temps que l'on effectue le chargement de la batterie électrique.

Notre travail constitue la première étape sur la réalisation et l'étude d'un tel système de stockage. Généralement, les dispositifs envisagés sont exploités dans le secteur du bâtiment pour des besoins de chauffage ou d'ECS par exemple, ou encore dans des procédés de refroidissement d'air intérieur. Cependant, ils ont depuis peu intégré le secteur du véhicule électrique. En effet, étant donné qu'en période hivernale les besoins liés au chauffage ont des répercussions importantes sur l'autonomie du véhicule, des solutions doivent être trouvées. Pour pallier ce problème, des batteries thermiques de type échangeur-stockeur exploitant du MCP ont récemment été développées en veillant à ce qu'elles s'adaptent aux véhicules électriques. Celles-ci ont été recensées dans nos travaux bibliographiques. Elles ont des configurations à plaques, à tubes et à ailettes. Cependant, il a été démontré qu'elles sont loin d'être optimales aussi bien en termes de capacité de stockage que d'efficacité. C'est la raison pour laquelle, dans le cadre de notre recherche, nous avons développé et étudié un nouveau type de batterie thermique dont la composition est un lit fixe de billes chargées en MCP. Ce dispositif possède des caractéristiques avantageuses.

- i. La taille et la forme sphérique de ces particules permettent d'accroître la capacité de stockage, d'améliorer les transferts thermiques entre le fluide et le MCP et d'augmenter la compacité du système ;
- ii. Le lit fixe de particules permet d'uniformiser la distribution de la température au passage du fluide caloporteur.

Si ce procédé a déjà fait l'objet d'études dans plusieurs applications industrielles, il n'a jamais été utilisé dans le secteur automobile. Par conséquent la batterie thermique à lit fixe de particules de MCP constitue un dispositif innovant pour le véhicule électrique. Toutefois, la complexité des phénomènes qu'elle met en jeu nécessite des études préalables en amont des expérimentations dont elle fera l'objet. Un des phénomènes à évaluer est le changement d'état du MCP dont la cinétique de solidification est une donnée essentielle pour l'estimation de la durée de déstockage de la batterie. C'est pourquoi, dans la première partie de notre étude nous nous sommes intéressés à la cinétique des transferts de chaleur au sein de plusieurs MCPs afin d'évaluer leur durée complète de solidification.

Ces MCPs se composent d'éléments fusibles emprisonnés dans des matrices polymères avec différents taux de polymérisation. Les expériences menées nous ont permis de proposer une expression phénoménologique qui modélise l'évolution de la température d'un MCP en

phase de solidification. Ce modèle met en jeu des paramètres physiques inhérents au MCP considéré, ainsi que des temps caractéristiques directement liés au processus de solidification. La validité de nos résultats permet d'envisager ce modèle comme outil pour évaluer la durée de déstockage de matériaux de taille finie.

Après avoir caractérisé la dynamique des transferts au sein d'un MCP, la seconde étape de notre travail s'est portée sur le système de stockage qui serait implanté dans le véhicule électrique. Cette future batterie thermique hermétique et isolante renfermera des particules de MCP de point de fusion élevé ( $T \sim 70^\circ\text{C}$ ). Cependant, dans le cadre de notre recherche, les particules millimétriques de MCP développées par notre partenaire industriel se sont avérées incompatibles avec le fluide caloporteur (mélange eau-éthylène glycol). En dépit de ce problème, nous avons décidé de poursuivre l'étude avec des billes centimétriques de polypropylène chargées en paraffine de point de fusion proche de  $27^\circ\text{C}$ . Un pilote de laboratoire a été développé en considérant une colonne cylindrique de volume égal à 3,2 L. Le remplissage aléatoire des billes a conduit à une porosité de 0,42. Une série d'expériences a permis de montrer les ordres de grandeur et les tendances induites par certains paramètres ; Il a été notamment mis en lumière que, pour des débits variant de 150 à 450 kg/s :

- les durées de stockage  $t_s$  et déstockage  $t_d$  sont respectivement de :  $t_s \in [300, 900]$  sec. et  $t_d \in [1000, 1300]$  sec.
- les pertes de charges sont peu importantes pour la gamme de débit considéré.

Les résultats sur la dynamique de stockage et déstockage que nous pourrions obtenir avec un MPC de point de fusion plus élevé ( $T \sim 70^\circ\text{C}$ ) et de mêmes caractéristiques thermo-physiques seraient de mêmes ordres de grandeur ; seul la gamme de température de fonctionnement serait modifiée. En revanche, la future batterie accueillera des particules de taille millimétrique, ce qui modifiera de manière notable les pertes de charges et les puissances d'échanges entre les particules et le fluide.

Pour évaluer cet effet de taille, nous avons développé un modèle numérique qui sera validé dans un premier temps par les données expérimentales de l'étude précédente. Ce modèle pourra être utilisé pour le dimensionnement du futur prototype et servira également d'outil pour optimiser les performances de la batterie en ajustant les paramètres de contrôle.

Le modèle adopté dit de « diffusion concentrique » met en jeu un couple d'équations de conservation pour les phases solide (MCP) et fluide prenant en compte la conduction thermique à l'intérieur de la particule. Pour répondre aux enjeux de l'étude, le MCP utilisé est un alcool gras de température de fusion proche de  $70^\circ\text{C}$ . Les résultats des simulations ont permis d'apporter des indications essentielles aussi bien pour le dimensionnement que pour la caractérisation de la future batterie. On a pu notamment tirer les conclusions suivantes :

- i. Le chargement de la batterie par des billes de diamètre 1 à 2 mm serait idéal pour à la fois rendre efficace le système et avoir une grande capacité de stockage ;
- ii. Le volume du lit ne devra être ni trop faible pour ne pas perdre en efficacité, ni trop élevé pour éviter l'encombrement et le surpoids dans le véhicule. Un volume de 5L à 7L avec un diamètre de colonne de 20 cm serait acceptable.

## Conclusion et perspectives

Afin de se rapprocher des conditions réelles d'utilisation, nous avons souhaité évaluer les durées de stockage et déstockage d'une batterie possédant de telles dimensions. En mode « charge thermique », nous avons observé que la durée de stockage  $t_s$  est d'environ 15 mn pour un débit de  $Q = 50\text{L/h}$ . En mode « décharge thermique » correspondant à l'utilisation du chauffage lors du fonctionnement du véhicule, la durée de déstockage  $t_d$  varie entre 1h et 1h30. Estimant que l'autonomie actuelle d'un véhicule électrique est d'environ 2h, ces résultats apparaissent convenables et en accord avec le cahier des charges.

### *Perspectives*

Les résultats de notre recherche ont montré la faisabilité de développer une batterie thermique répondant à un certain nombre de critères énergétiques. Les futures étapes du projet visent principalement à effectuer des recherches sur le développement des particules millimétriques de MCP et sur le design de la batterie qui nécessite une forme adaptée pour s'insérer dans les espaces restreints du véhicule.

Les particules de MCP doivent en effet présenter une compatibilité absolue avec le fluide caloporteur utilisé (solution eau-éthylène glycol). Jusqu'à présent, les échantillons réalisés présentent des dégradations structurelles lorsqu'ils sont immergés dans le fluide après plusieurs cycles thermiques. La formulation du matériau doit également être améliorée en vue de renforcer ses propriétés mécaniques tout en conservant un potentiel énergétique suffisant. Rappelons que pour rester dans l'esprit « écologique » de ces véhicules, l'élément à changement de phase doit être d'origine végétale. L'autre recherche traitera de la forme de la batterie dans l'objectif d'une intégration optimale dans le véhicule. La forme du réservoir aura un impact sur la porosité ainsi que sur l'écoulement du fluide à travers le lit. Il sera impératif d'établir une cartographie du champ de vitesse afin d'évaluer la présence d'éventuelles zones mortes qui pourront fortement pénaliser les transferts de chaleur. De plus, d'autres investigations porteront sur l'isolation de la batterie afin de limiter les déperditions thermiques.

Les perspectives à plus long terme seraient de proposer des réservoirs de MCP amovibles que l'on choisirait en fonction de la période de l'année. Certains seraient dédiés à la période hivernale et d'autres à la période estivale en adaptant le MCP en fonction de la saison.



# Valorisation scientifique des travaux réalisés

- **Publications dans des revues à comités de lecture (cf. pages annexes à la suite)**

[1] S. A. Bahrani, L. Royon, B. Abou, R. Osipian, K. Azzouz, et A. Bontemps, « A phenomenological approach of solidification of polymeric phase change materials », *J. Appl. Phys.*, vol. 121, n° 3, p. 035103, janv. 2017.

- **Communications nationales et internationales avec actes**

[2] S. A. Bahrani, R. Osipian, K. Azzouz, A. Bontemps, et L. Royon, « Solidification d'un matériau à changement de phase (MCP) : expérimentations et approche phénoménologique », présenté au 24ème Congrès Français de Thermique, Toulouse, France, 2016.

[3] R. Osipian, S. A. Bahrani, A. Bontemps, K. Azzouz, et L. Royon, « Modélisation numérique de la fusion/solidification d'un lit de particules de MCP au sein d'une unité de stockage thermique », présenté au 25ème Congrès Français de thermique, Marseille, France, 2017.

[4] R. Osipian, S. A. Bahrani, L. Royon, A. Bontemps, F. Filaine, et K. Azzouz, « Evolution dynamique et thermique de la charge/décharge d'un lit de billes de MCP au sein d'une batterie thermique », présenté à la 3ème édition du Colloque International Francophone sur l'Energétique et la Mécanique (CIFEM), Cotonou, Bénin, 2018.



# A phenomenological approach of solidification of polymeric phase change materials

Seyed Amir Bahrani,<sup>1,a)</sup> Laurent Royon,<sup>2</sup> Bérengère Abou,<sup>1</sup> Rémy Osipian,<sup>1</sup> Kamel Azzouz,<sup>3</sup> and André Bontemps<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Université Paris Diderot, Sorbonne Paris Cité, MSC, UMR 7057 CNRS, 75013 Paris, France

<sup>2</sup>Université Paris Diderot, Sorbonne Paris Cité, LIED, UMR 8236 CNRS, 75013 Paris, France

<sup>3</sup>Valeo Thermal Systems, 78321 La Verrière, France

(Received 18 October 2016; accepted 2 January 2017; published online 19 January 2017)

Phase Change Materials (PCMs) are widely used in thermal energy storage and thermal management systems due to their small volume for a given stored energy and their capability for maintaining nearly constant temperatures. However, their performance is limited by their low thermal conductivity and possible leaks while in the liquid phase. One solution is to imprison the PCM inside a polymer mesh to create a Polymeric Phase Change Material (PPCM). In this work, we have studied the cooling and solidification of five PPCMs with different PCMs and polymer fractions. To understand the heat transfer mechanisms involved, we have carried out micro- and macrorheological measurements in which Brownian motion of tracers embedded in PPCMs has been depicted and viscoelastic moduli have been measured, respectively. Beyond a given polymer concentration, it was shown that the Brownian motion of the tracers is limited by the polymeric chains and that the material exhibits an elastic behavior. This would suggest that heat transfer essentially occurs by conduction, instead of convection. Experiments were conducted to measure temperature variation during cooling of the five samples, and a semi-empirical model based on a phenomenological approach was proposed as a practical tool to choose and size PPCMs. *Published by AIP Publishing.* [<http://dx.doi.org/10.1063/1.4974287>]

## I. INTRODUCTION

With the rapid growth of energy needs, energy storage has become a strong concern. In thermal power plants, up to 70% of thermal energy is released to the environment. Renewable energies, such as solar or wind, are intermittent and can therefore not always match consumer needs. Thermal energy storage is a possible solution (i) to use the thermal energy lost in power plants and (ii) to store energy when in excess and deliver it when needed. At the same time, electricity consumption varies strongly during day and night due to domestic utilities and space heating/cooling, leading to peak and off-peak load periods. Thermal storage could be a way to store energy during off-peak periods to release it during peak periods. Among thermal storage methods,<sup>1</sup> latent heat storage has received most attention because volume requirements are lower than sensible heat storage, and most investigations are based on the use of Phase Change Materials (PCMs). In addition, PCMs can be applied to stabilize component temperatures due to their constant phase-change temperature.

However, PCMs have some well-known disadvantages. The first of these is super-cooling. This refers to the PCM cooling below its solidification temperature without solidifying. In order to do so, a lower temperature must be reached. Generally, this effect is weak for organic materials, and the difference of equilibrium and actual solidification

temperature is small. Second, phase separation can occur for PCMs that are mixtures. Third, most PCMs have low thermal conductivity, which impedes heat transfer. Finally, an important practical problem is that of PCM conditioning, which must prevent leaking when the PCM is liquid.

To overcome the preceding problems, two types of solutions can be proposed: (i) incorporation of PCMs in macro-, micro-, or nano-capsules or (ii) creation of a composite material by embedding the PCMs within a matrix. In the first case, PCMs are incorporated inside containers ranging from 1 cm<sup>3</sup> to several m<sup>3</sup> or inside a polymer solid shell whose diameter varies between 0.1 and 100 μm.<sup>2-4</sup> In the second case, PCMs are introduced in a polymer network whose elasticity can absorb any material volume change without degradation and avoids exsudation of the PCM in the liquid state.

Both problems of low thermal conductivity and PCM leakage can be solved simultaneously.<sup>5,6</sup> This work aims at addressing these two problems through the introduction of a polymer matrix in the PCMs. In our study, three PCMs (RT 27, n-Hexadecane, and Phytigel) were imprisoned inside a polymer fibrous structure to form five different shape-stabilized PCMs or Polymeric Phase Change Materials (PPCMs). We have investigated the freezing of our PPCMs and determined their temperature evolution during the solidification phase. We have also performed microrheological and macrorheological measurements to investigate the characteristics and physical behavior of these materials. The rheology experiments show that beyond a given polymer fraction, the materials have an elastic behavior, which is

<sup>a)</sup>Electronic mail: seyed-amir.bahrani@univ-paris-diderot.fr

typical of a solid-like behavior, favorable to avoiding leaks. Microrheology performed in PCMs with increasing polymer concentration provides insight into the heat transfer modes (conduction and/or convection). These characterizations have allowed us to propose a semi-empirical model based on a phenomenological approach of material cooling with the change of state, which will be a practical tool for predicting temperature evolution in PPCMs.

The paper is organized as follows. In Sec. II, the preparation of PCMs and PPCMs together with their thermophysical properties is presented. We have also described the methodology adopted for the micro/macro rheology experiments, and then in this section, the experimental set-up and the solidification procedure are defined. The experimental results of micro/macro-rheology and solidification thermograms are presented in Sec. III. Sec. IV provides our semi-empirical model based on a phenomenological approach. In this section, we have determined the model parameters and their validation using previous theoretical and analytical approaches. Finally, Sec. V is devoted to a concluding discussion.

## II. MATERIALS AND CHARACTERIZATION METHODS

### A. Preparation of PCMs and PPCMs

The PCMs chosen for this study are, respectively, two paraffins: Rubitherm<sup>®</sup>, n-hexadecane, and an aqueous gel called Phytigel<sup>®</sup>. Rubitherm (RT 27) and n-Hexadecane were purchased from Rubitherm GmbH and Sigma-Aldrich, respectively. The polymer network was obtained by using a Styrene-Butadiene-Styrene (SBS), supplied by Sigma-Aldrich.

The shape-stabilized paraffin (PPCM) was prepared via the following procedure: for the organic PCM, the paraffin was stirred at 100 °C for 1 h to yield a homogenous solution. Then, the SBS block copolymer was mixed at high temperature (~100 °C) with the paraffin. This PCM serves as the latent heat storage material, and the SBS block copolymer forms a matrix acting as a supporting material. After cooling at room temperature, we obtained a shape-stabilized paraffin material (PPCM). Several samples with polymer concentration from 0% to 25% (RUB 0–25 and HEX 10) were prepared. No leakage of the paraffin was observed beyond PCM melting temperature.

The preparation of the aqueous PCM (Phytigel) was obtained by using a water-soluble polysaccharide named

Gellan gum and sodium citrate as a source of cations, supplied by Sigma-Aldrich. For aqueous PCMs, 3 mg Gellan gum (Phytigel<sup>®</sup>) powder was mixed into 100 ml of a distilled water + CaCl<sub>2</sub> ( $1.1 \times 10^{-2} \text{ g l}^{-1}$ ) solution maintained at 85 °C (GG 3). The mixture was stirred at 85 °C for 15 min using a magnetic stirrer.

### B. Thermophysical properties of the PPCMs

For each PPCM, thermophysical properties were measured. The mass density  $\rho$  was measured by weighing and the thermal conductivity  $\lambda$  by means of a homemade conductimeter.<sup>7</sup> The thermodynamical properties, such as the solidification temperature  $T_s$ , melting temperature  $T_m$ , latent heat  $L$ , and heat capacity  $C_p$ , were deduced from calorimetric measurements whose details are presented in the Appendix. All results are summarized in Table I.

### C. Microrheology measurements

Passive microrheology experiments were performed for the Rubitherm (RT 27) paraffin with several polymer concentrations: 0%, 1%, 2%, 4%, 6%, and 8% (in the following, we will adopt the notations: RUB 0, 1, 2, 4, 6 and 8). Latex tracer beads (0.994  $\mu\text{m}$  in diameter) were introduced in the samples, and their thermal fluctuations were recorded with a fast camera (EoSens Mikrotron). The camera, typically running at 100 frames per second (fps), is coupled to an inverted microscope (Leica DM IRB) with a 100 $\times$  oil immersion objective. The microscope objective temperature, controlled within 0.1 °C using a Biopetechs heating ring, was maintained at 32.0 °C. The sample temperature was controlled through the immersion oil in contact. The tracer concentration chosen was diluted enough to prevent collisions and hydrodynamic coupling. They were always tracked far enough from the walls of the observation chamber. Sedimentation of the beads was negligible on the recording time scales. Homemade image analysis software allowed us to track the bead positions  $x(t)$  and  $y(t)$  close to the focus plane of the objective. For each bead, the time-averaged mean-squared displacement (MSD) was calculated and ensemble-averaged over several beads.<sup>8</sup>

### D. Macrorheology measurements

To quantify the mechanical properties of PPCMs, linear rheology experiments were performed, using a Physica MCR

TABLE I. Thermophysical properties of PPCMs.

Sample	$T_s$ (°C)	$T_m$ (°C)	$\rho$ (kg m <sup>-3</sup> )		$\lambda$ (Wm <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )		$C_p$ (kJ kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )		$L$ (kJ kg <sup>-1</sup> )
			Solid <sup>a</sup>	Liquid <sup>b</sup>	Solid	Liquid	Solid	Liquid	
RUB 15	22.6	27	856.9	776	0.28	0.19	1.98	2.03	127.5
RUB 20	22.0	27	856.3	790	0.26	0.18	3.9	2.30	100
RUB 25	21.5	27	855.7	805	0.24	0.16	5.8	2.50	80
HEX 10	13.6	18	783	766	0.34	0.14	1.8	2.3	235
GG 3	0.1	0.7	917	1000.4	0.22	0.57	2.02	4.2	333

<sup>a</sup>The temperature of PPCMs in the solid phase: RUB 15, 20, and 25 = 40 °C; HEX 10 = 5 °C; and GG 3 = -5 °C.

<sup>b</sup>The temperature of PPCMs in the liquid phase: RUB 15, 20, and 25 = 19 °C; HEX 10 = 30 °C; and GG 3 = 5 °C.

500 rheometer (Anton Paar) in the cone-plate geometry (50 mm diameter with  $1^\circ$  cone angle). Prior to the measurements, a strain sweep test was conducted to determine the linear viscoelastic strain range. The rheological behavior of each sample was measured by performing a temperature sweep. The temperature dependence of storage ( $G'$ ) and loss ( $G''$ ) moduli, as well as loss tangent ( $\tan \delta$ ), were measured by heating the sample from  $20^\circ\text{C}$  to  $85^\circ\text{C}$ . The gradient was  $1^\circ\text{C}/\text{mn}$  on heating and cooling scans. The frequency  $f$  was fixed at 1 Hz and strain  $\gamma$  of 1%, which corresponds to the linear viscoelastic region for all the samples. The melting temperature was taken as the point for which both  $G'$  and  $G''$  moduli decrease sharply. The temperature  $T_g$  where  $\tan \delta = 1$  (i.e.,  $G' = G''$ ) was defined as the temperature of hard gel-soft gel transition.

### E. Set-up and solidification procedure

Heat transfer experiments involving solidification were conducted with a test cell presented in Figure 1. The cell consists of a parallelepipedic sample of PPCMs with a square section of  $0.25\text{ cm}^2$  and length  $E = 1\text{ cm}$ , insulated with 100 mm thick polyurethane foam. Only one side of the sample ( $0.25\text{ cm}^2$ ) is in contact with the ambient air. The insulated material around the PPCM allows us to consider the transfers to be unidirectional inside the sample. A Chromel/Alumel thermocouple is placed on the opposite face to that in contact with the ambient air as shown in Figure 1.

The experiments were performed using the following experimental protocol. Prior to starting each solidification test, the PPCM was maintained at  $T_o = 32^\circ\text{C}$  inside a climatic chamber. After reaching this initial condition, the experimental procedure then consisted to suddenly transfer the sample into another climatic chamber, which was maintained at temperature  $T_f$  such that  $T_f < T_o$ . The temperature history was recorded by using a data logger (GL220, Graphtech, Canada) at 1 s intervals. All experiments were performed with the same weight (100 g) of PPCMs with different polymer concentrations and nature (RUB 15, 20 and 25; HEX 10; and GG 3).

## III. RESULTS AND DISCUSSION

### A. Micro-rheology experiments

Figure 2(a) shows the trajectories of a typical traced bead in pure paraffin (RUB 0) and in RUB 8 (inset), at the same scale. A zoom of the trajectory in the RUB 8 is

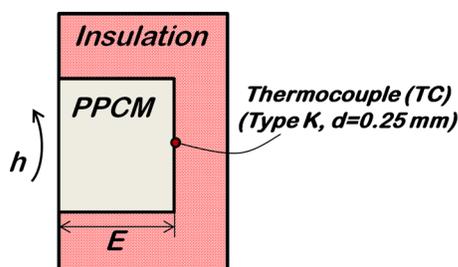


FIG. 1. Schematic of the experimental test cell.

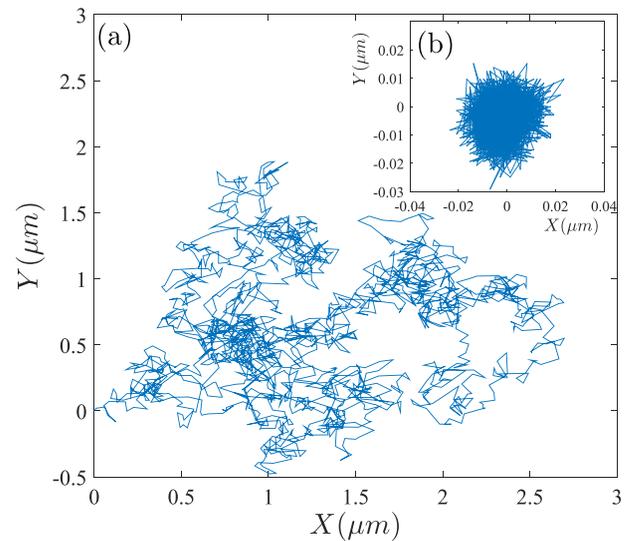


FIG. 2. (a) Trajectory of a typical Latex probe in the pure paraffin (RUB 0) and in the PPCM at 8% polymer concentration (RUB 8), represented at the same scale. (b) Zoom of the trajectory of a typical tracer in the RUB 8 PPCM. The motion of the tracer is confined in the RUB 8 PPCM as compared to pure paraffin. The confinement is more pronounced with increasing polymer concentration as can be depicted in Figure 3.

presented in Figure 2(b). As can be seen, the tracer is confined in a small space in the polymeric network contrary to pure paraffin.

Figure 3 shows the Mean-Squared Displacement (MSD),  $\langle \Delta r^2(t) \rangle (\mu\text{m}^2)$ , of the tracers in the paraffin RT 27 with increasing polymer concentration (0%, 1%, 2%, 4%, 6%, and 8%). Starting from a purely viscous liquid with no additive polymer, the PPCM develops an elasticity with increasing polymer concentration. Above 6% (RUB 6), the material is so stiff that the Brownian motion of the tracers was hardly detectable, and we reach the set-up resolution limitation.

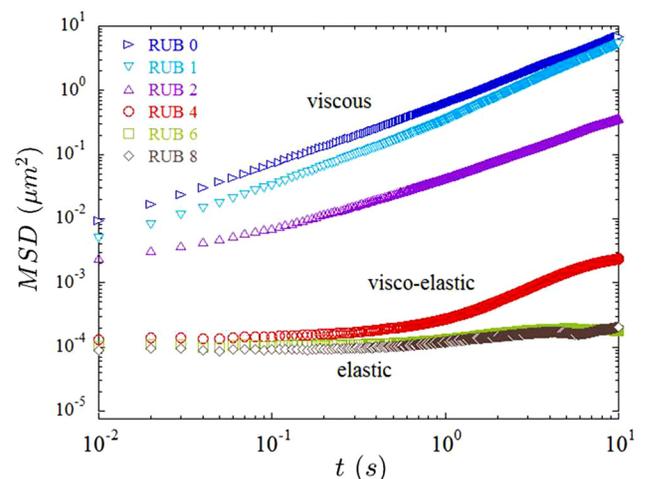


FIG. 3. Mean-squared displacement of Latex beads ( $0.994\ \mu\text{m}$  in diameter) immersed in the paraffin RT 27 with increasing additive polymer concentration (0%, 1%, 2%, 4%, 6%, and 8%). Starting from a purely viscous liquid with no additive polymer, the PPCM develops elasticity with increasing polymer concentration. Above 6%, the material is so stiff that the Brownian motion of the tracers was hardly detectable.

Above 6% polymer concentration, when the PPCM develops a predominant elastic behavior, one expects that heat convection is inhibited. Therefore, heat transfer inside the sample should be purely conductive. These findings justify the further hypotheses.

**B. Thermo-rheological properties of PPCMs**

As can be seen in Figure 4, we present the temperature dependence of viscoelastic moduli during the heating of PPCMs at different concentrations (RUB 0, 5, 10, 15, 20, and 25). The six rheograms exhibit a liquid-solid phase change around 27 °C with an abrupt variation of storage ( $G'$ ) and loss ( $G''$ ) moduli. At  $T < 27$  °C, the viscoelastic moduli are large, indicating a solid phase. Above  $T = 27$  °C,  $G'$  and  $G''$  decrease to reach the liquid phase. As an example, the viscoelastic moduli of PPCM (RUB 15) present values around 10 kPa, which means that the polymer network allows sufficient rigidity for considering the material as a solid. With increasing temperature, a gel-liquid transition appears around 55 °C where  $G'$  intersects  $G''$ . This temperature indicates the limit of its use in the field of thermal energy storage; the material becomes a viscoelastic liquid, and it cannot be used without an encapsulation.

A study of this threshold temperature, noted  $T_g$ , shows a linear dependence with the SBS polymer concentration ( $\phi$  %) as illustrated in Figure 5. The higher the SBS polymer concentration in the PPCM, the smaller risk of leakage. These results confirm the behavior found in microrheology.

**C. Temperature profile during solidification**

The experimental results are presented in terms of the dimensionless temperature  $\theta$  defined as

$$\theta = \frac{T - T_f}{T_i - T_f} \tag{1}$$

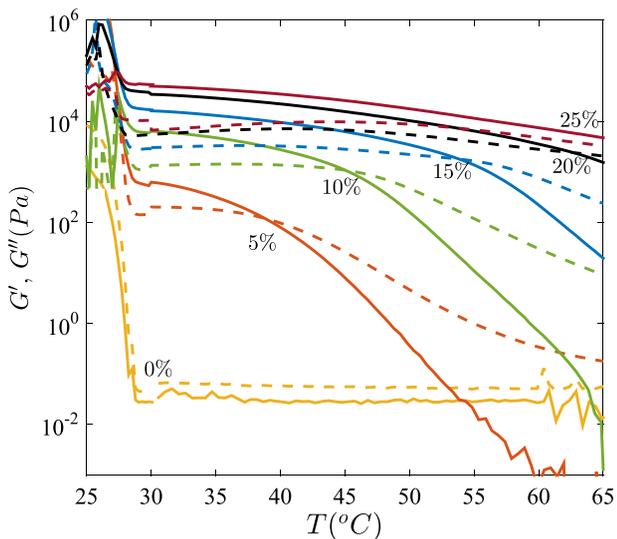


FIG. 4. Viscoelastic moduli  $G'$  (continuous line) and  $G''$  (dashed line) as a function of temperature for different polymer concentrations (RUB 0, 5, 10, 15, 20, and 25).

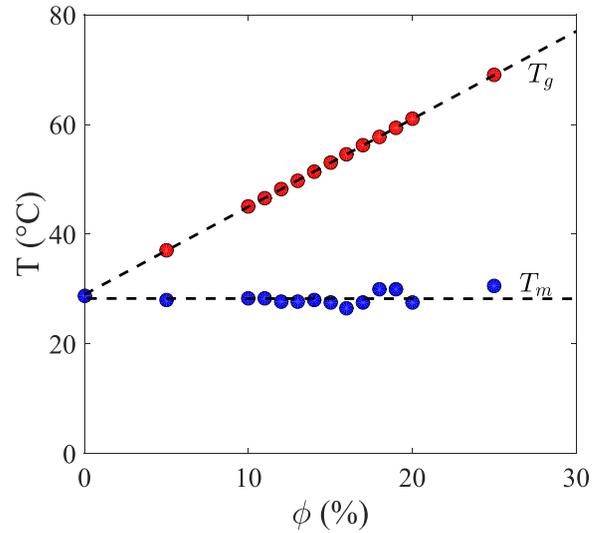


FIG. 5. Phase change solid-liquid temperature  $T_m$  and gel-liquid temperature  $T_g$  of PPCMs (RUBs) as a function of the SBS polymer concentration  $\phi$  %.

Figure 6 presents the dimensionless temperature  $\theta$  at the rear face of the sample vs the time for a solidification phase. We note  $\theta_0$  the dimensionless phase change temperature defined as

$$\theta_0 = \frac{T_s - T_f}{T_i - T_f} \tag{2}$$

First, the temperature strongly decreases with time in the temperature interval  $1 - \theta_0$ . Then,  $\theta$  stabilizes during the phase change of PPCMs presenting a pseudo-plateau at  $\theta_0$  and rapidly decreases until it reaches the final temperature imposed by the climatic chamber. Thermograms obtained for all samples present similar curves to that illustrated in Figure 6. The distinctions of thermograms appear only by the pseudo-plateau length of temperature induced by the phase change. For all PPCMs with different concentrations, our results showed that the higher the polymer concentration

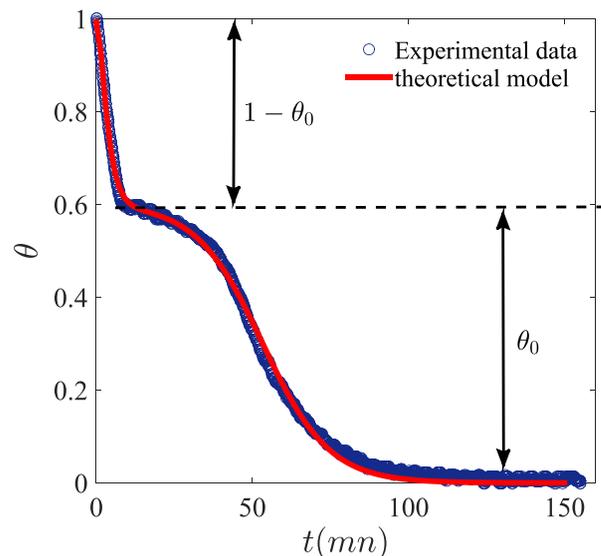


FIG. 6. Thermogram obtained from RUB 25 with  $T_f = 10$  °C.

and the lower the temperature difference  $\theta_0$ , the longer the duration of the pseudo-plateau. As an example for the case of RUB 25, Figure 7 presents the evolution of  $\theta$  for several values of  $\theta_0$  corresponding to different  $T_f$ .

#### IV. PHENOMENOLOGICAL APPROACH

##### A. Model description

We propose to model the thermograms of our all experiments with a semi-empirical approach, by the following phenomenological expression:

$$\theta = \frac{1}{2} \left[ e^{\frac{-t}{\tau_1}} + \beta(1 - e^{\frac{-t}{\tau_2}}) \right] \left[ 1 + \tan h \left( \alpha - \left( \frac{t}{\tau_3} \right) \right) \right] \quad (3)$$

with two parameters  $\alpha$  and  $\beta$  and three characteristic times  $\tau_1$ ,  $\tau_2$ , and  $\tau_3$ , which are estimated from solidification experimental data. The two characteristic times  $\tau_1$  and  $\tau_2$  appear inside the exponential term, which describes the cooling of the sample. They can be related to sensible heat, while the characteristic time  $\tau_3$  is related to the latent heat.

##### B. Model parameters

As can be seen in Figure 6, good agreement was obtained between the experimental data during solidification and the phenomenological expression for a sample of RUB 25. Similar results were obtained for all PPCMs. A complete analysis of all data shows that the parameter  $\tau_2$  remains constant for the various experiments conducted on the five PPCMs taking into account the same boundary condition (Neumann condition). The results mean that parameter  $\tau_2$  is independent of both the latent heat  $L$  and the temperature interval  $\theta_0$ . This parameter, which characterizes the sensible heat exchanged on the temperature interval  $1-\theta_0$ , takes a value equal to 1.4 mn in the context of our experiment. The influence of boundary conditions, by modifying the convective heat transfer coefficient  $h$  between the material surface and air, has not been studied in this work.

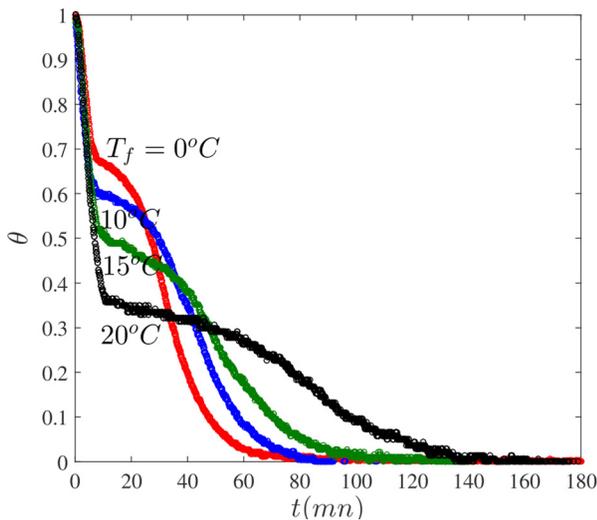


FIG. 7. Thermograms obtained from RUB 25 for  $T_f = 0, 10, 15,$  and  $20^\circ\text{C}$ .

Concerning the parameter  $\alpha$ , a specific value appears for each PPCM. We note  $\alpha = 2.5$  for RUB 15, 20, and 25,  $\alpha = 4$  for HEX 10, and  $\alpha = 5.5$  for GG 3. This parameter is not affected by the temperature interval  $\theta_0$ . The influence of boundary conditions on this parameter has not been studied in this campaign of experiments.

The variations of the characteristic time  $\tau_1$  (expressed in *mn*) and the inverse of the parameter  $\beta$  are shown in Figure 8 as a function of the temperature interval  $\theta_0$ . These two parameters can be expressed in the form

$$\tau_1 = 2\theta_0^{-1/3}, \quad (4)$$

$$\frac{1}{\beta} = 1.4\theta_0^{-1/3}. \quad (5)$$

They are related to the sensible heat exchanged by the material in the temperature interval  $\theta_0$ .

The characteristic time,  $\tau_3$ , is the main parameter that affects the length of the phase change pseudo-plateau. It shows a strong dependence with the latent heat  $L$  of the material and the temperature interval  $\theta_0$  as shown in Figure 9.

This time,  $\tau_3$ , can be correlated with the time when the temperature reaches the value of the endset temperature  $T_e$  defined in the Appendix.

Figure 10 compares the characteristic time  $\tau_3$  and the time  $t_{sol}$  corresponding to the end of the phase change corresponding to  $T = T_e$ . One can observe a linear relationship between these two characteristic times, which means that the knowledge of the time  $\tau_3$  gives the value of the complete duration of solidification.

Taking as a time scale the group  $(E^2/a)$ , we define a dimensionless solidification time from the Fourier number  $Fo_{sol}$  in the form

$$Fo_{sol} = \frac{t_{sol} a}{E^2} \quad (6)$$

with  $E$  the sample thickness,  $a$  the thermal diffusivity, and  $t_{sol}$  the solidification time.

This analysis can be compared to the analytic approach given by the pioneering work of Neumann who proposed a method to solve the solidification problem in *1D* geometry

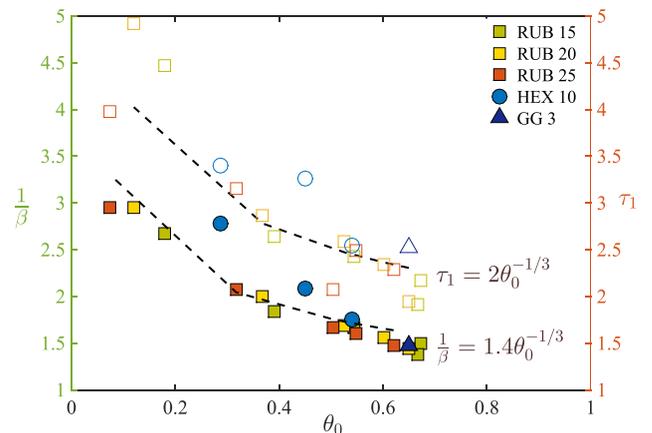
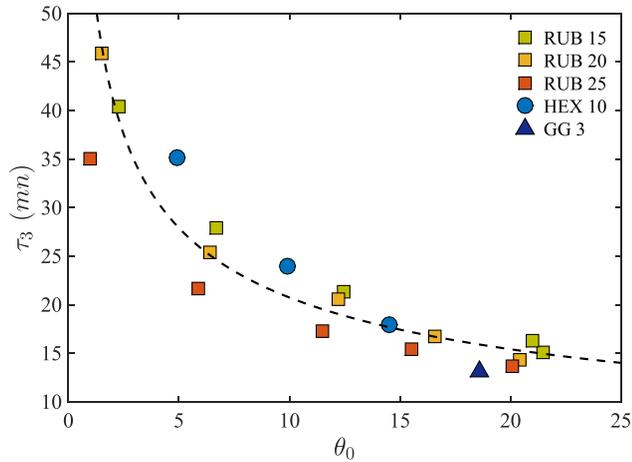


FIG. 8. Variation of the parameters  $\tau_1$  and  $1/\beta$  as a function of  $\theta_0$ .

FIG. 9. Variation of  $\tau_3$  as a function of  $\theta_0$ .

for a semi-infinite solid.<sup>9</sup> In his work, the material is initially at the phase change temperature, and convection in the liquid phase is neglected, which is compatible with our findings. Considering that temperature profiles in the liquid and solid phases are given by error functions, the energy balance at the liquid/solid interface allows the following equation to be written as

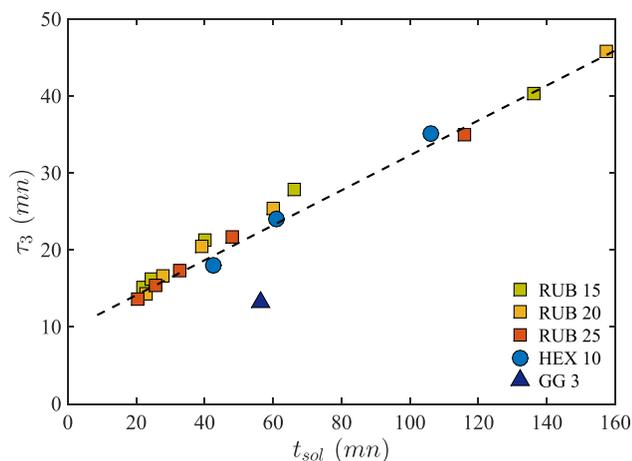
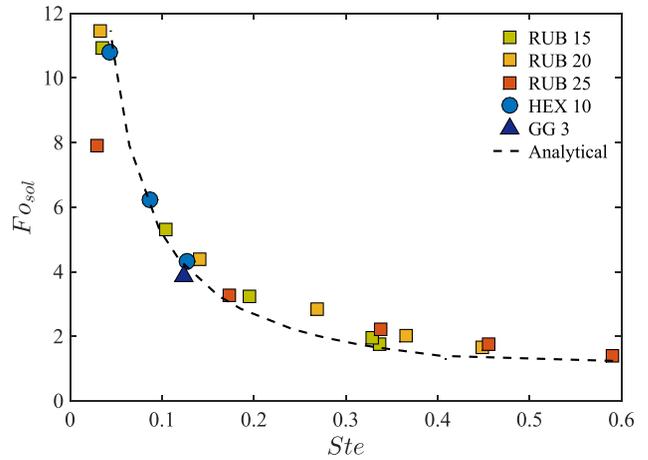
$$\frac{1\sqrt{\pi}}{2\sqrt{Fo}} e^{\left(\frac{1}{4Fo}\right)} \operatorname{erf}\left(\frac{1}{2\sqrt{Fo}}\right) = Ste. \quad (7)$$

In Equation (7),  $Ste$  and  $Fo$  are the Stefan and Fourier numbers, respectively

$$Ste = \frac{Cp(T_0 - T_f)}{L}, \quad (8)$$

$$Fo = \frac{at}{x^2}, \quad (9)$$

where  $Cp$  is the heat capacity,  $L$  the solidification latent heat,  $t$  the time, and  $x$  the position of the liquid/solid interface from the sample surface at time  $t$ . In this solution, the interface position is a function of the square root of time. The Neumann method has been extended<sup>9</sup> for different initial and

FIG. 10. Variation of  $\tau_3$  as a function of  $t_{sol}$ .FIG. 11. Dimensionless solidification time from the Fourier number  $Fo_{sol}$  as a function of the Stefan number  $Ste$ .

boundary conditions. Figure 11 shows the variations of the Fourier number ( $Fo_{sol}$ ) vs the Stefan number ( $Ste$ ) for  $x=E$ . It is shown that the slope is more pronounced for lower  $Ste$  than for higher  $Ste$ . Experimental results are compared with those from the Neumann formula in Figure 11. We observe good agreement between experimental data and theoretical ones.

The dependence of  $Fo_{sol}$  with the Stefan number  $Ste$  leads to the following empirical expression:

$$Fo_{sol} = 1 + 0.4Ste^{-1}. \quad (10)$$

This result is not far from expressions proposed by Charach and Zoglin<sup>10</sup> and Charach and Kahn<sup>11</sup> in the development of a model that combines the heat-balance integral method and the time-dependent perturbation theory. This type of expression depending on  $Ste^{-1}$  was also obtained for solidification in cylindrical geometry for several types of boundary conditions.<sup>12–15</sup>

## V. CONCLUSION

In order to find a thermal energy storage material that can be used practically, we have defined, realized, and characterized PCM/polymer composites. Two paraffins and an aqueous gel were used as PCMs: One paraffin whose melting temperature is about 27 °C with 3 polymer fractions (75%, 80%, and 85%) and another paraffin whose melting temperature is 18 °C, the polymer proportion is 90%, and an aqueous gel whose melting temperature is 0.7 °C. These PPCMs have a stabilized volume and do not present leaks when the PCM is liquid. To explain this behavior and to analyze the temperature variations, micro- and macro-rheological measurements have been carried out. As an important finding, it was suggested that the heat transfer mode was essentially a conductive heat transfer. To evaluate the melting times, an experimental work was carried out with parallelepipedic samples made of the five PPCMs. The cooling process was studied, and temperature variations at the material bottom were measured. A single phenomenological expression was derived from these temperature variations for the five

PPCMs. The obtained formula depends on five parameters, one of them giving the pseudo-plateau duration during the melting process. A comparison was made with the Neumann formula, which only considers heat conduction both in the liquid and in the solid state. A very good agreement was obtained, validating the hypothesis of pure heat conduction in this type of materials. This phenomenological expression can be used for rapid evaluation of temperature variations in cooling processes of parallelepipedic composites.

## ACKNOWLEDGMENTS

The authors gratefully acknowledge the Île-de-France region (VEGETO Project, Contract No. 14011077) for the financial support.

## APPENDIX: THERMODYNAMICAL PROPERTIES OF PCMs

The calorimetric measurements were carried out with a DSC (differential scanning calorimetry) instrument (Mettler Toledo). Indium was used as the standard reference for the calibration. The samples were sealed in aluminium pans, with the masses being typically few 10 mg for all the samples. Both heating (melting) and cooling (crystallization) curves were registered between 278 K and 348 K with a linear temperature increase of 1 K/mn. As further explained below, transition temperatures, enthalpies of transition, and specific heats were obtained from the analysis of experimental DSC curves.

An example of a typical thermogram, obtained here for the RUB 25 material, is presented in Figure 12. The curves show a classic exothermic peak on cooling and an endothermic peak on heating. The latent heat  $L$  is calculated by numerical integration of the area under the peaks that represent the phase change transition. Two transition temperatures, namely, the temperature at the peak of the curves noted  $T_m$  for melting and  $T_s$  for solidification, are found. In this study, we have also considered the endset temperature as  $T_e$ , which is measured by drawing a line at the point of the maximum slope of the leading edge of the end peak and concluding at the baseline.

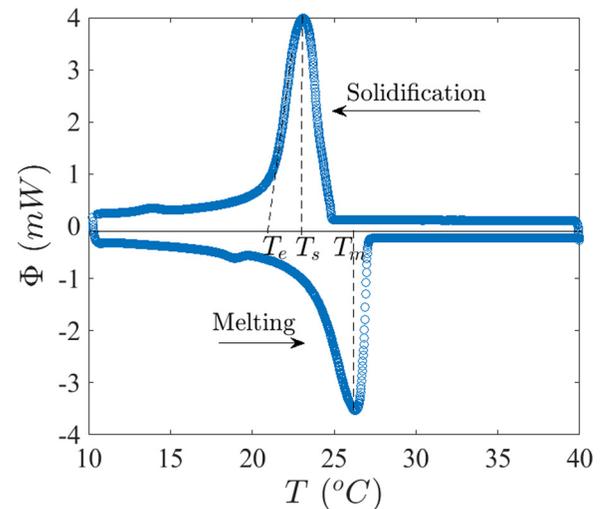


FIG. 12. Thermogram of RUB 25 for a heating/cooling rate of 1 °C/mn.

Experimental data are reported in Table I. The values are an average obtained for three runs for each sample. The specific heat capacity values  $C_p$  are taken for the temperature ranges that appear almost flat in experimental data plots.

- <sup>1</sup>D. Lefebvre and F. H. Tezel, *Renewable Sustainable Energy Rev.* **67**, 116–125 (2017).
- <sup>2</sup>N. Calvet, X. Py, R. Olivès, J.-P. Bédécarrats, J.-P. Dumas, and F. Jay, *Energy* **55**, 956–964 (2013).
- <sup>3</sup>W. Su, J. Darkwa, and G. Kokogiannakis, *Renewable Sustainable Energy Rev.* **48**, 373–391 (2015).
- <sup>4</sup>T. Khadiran, M. Z. Hussein, Z. Zainal, and R. Rusli, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **143**, 78–98 (2015).
- <sup>5</sup>J. Wang, H. Xie, Z. Xin, Y. Li, and C. Yin, *J. Appl. Phys.* **110**, 094302 (2011).
- <sup>6</sup>P. Zhang, X. Xiao, and Z. W. Ma, *Appl. Energy* **165**, 472–510 (2016).
- <sup>7</sup>S. A. Bahrani, Y. Jannot, and A. Degiovanni, *J. Appl. Phys.* **116**, 143509 (2014).
- <sup>8</sup>R. Colin, A. Al-Sayed, J.-C. Castaing, R. Goyal, L. Hough, and B. Abou, *Soft Matter* **7**, 4504 (2011).
- <sup>9</sup>H. S. Carslaw and J. G. Jaeger, *Conduction of Heat in Solids*, 2nd ed. (Oxford University Press, 1959).
- <sup>10</sup>Ch. Charach and P. Zoglin, *Int. J. Heat Mass Transfer* **28**, 2261–2268 (1985).
- <sup>11</sup>Ch. Charach and P. B. Kahn, *J. Appl. Phys.* **59**, 3579–3581 (1986).
- <sup>12</sup>A. D. Solomon, *Sol. Energy* **22**, 251–257 (1979).
- <sup>13</sup>V. Voller and M. Cross, *Int. J. Heat Mass Transfer* **24**, 545–556 (1981).
- <sup>14</sup>A. Hasan, *Sol. Energy* **52**, 143–154 (1994).
- <sup>15</sup>D. S. Riley, F. T. Smith, and G. Poots, *Int. J. Heat Mass Transfer* **17**, 1507–1516 (1974).