

Porosimétrie thermique de milieux poreux légers

Alain Degiovanni, Yves Jannot
LEMTA – Université de Lorraine – CNRS
2 avenue de la Forêt de Haye – 54504 Vandoeuvre
Alain.degiovanni@univ-lorraine.fr
Yves.jannot@univ-lorraine.fr

Résumé :

La conductivité thermique des milieux poreux légers est due en grande partie à la conductivité thermique du gaz contenu dans les pores. Cette conductivité dépend à la fois de la pression et de la dimension des pores considérés (effet Knudsen). Il est alors possible de relier la taille des pores à la conductivité thermique effective du milieu. On réalise des mesures de la conductivité du milieu en fonction de la pression depuis 10^5 Pa à 10^{-1} Pa, on établit un modèle de conductivité effective du milieu en prenant en compte n classes de taille de pores et la phase solide (modèle série-parallèle). La comparaison modèle-expérience effectuée par minimisation d'un critère quadratique permet d'identifier la fraction volumique de chaque classe de taille de pores.

Mots Clés : isolants légers, porosimétrie, plan chaud, effet Knudsen.

1. Modélisation des conductivités thermiques

1.1. Conductivité thermique de l'air

La conductivité thermique effective d'un gaz est fonction à la fois de la pression et de la dimension des pores, c'est l'effet Knudsen. La conséquence est que la conductivité de l'air est fortement influencée par la dimension des pores suivant la formule [1] :

$$\lambda_g = \frac{\lambda_0}{1 + C T / (P d)} \quad (1)$$

Où λ_0 est la conductivité thermique du gaz à pression atmosphérique, température ambiante et pour un espace infini, T la température des parois en K, P la pression en Pa, d la taille des pores en m et C une constante dépendant de la nature du gaz.

Pour l'air à 300 K, $\lambda_0 = 0,026 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ et $C = 2,5 \cdot 10^{-5} \text{ Pa m K}^{-1}$ [2]. La figure 1 montre la variation de la conductivité thermique de l'air en fonction de la taille des pores et de la pression.

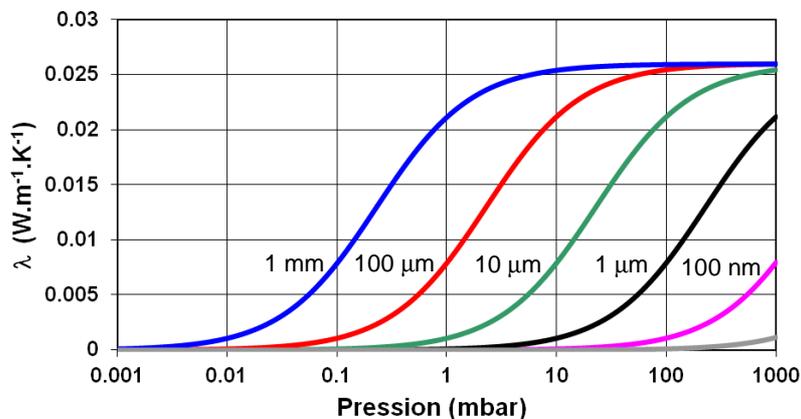


Figure 1 : Conductivité thermique de l'air

1.2. Conductivité thermique d'un milieu poreux

Nous utilisons un modèle série-parallèle de type « Willye » [3] ce qui permet de traiter des matériaux poreux

même si la condition : $\lambda_{\text{atm}} - \lambda_v < \lambda_{\text{air,atm}}$ n'est pas vérifiée (λ_{atm} est la conductivité du milieu à pression atmosphérique, λ_v la conductivité du milieu sous vide et $\lambda_{\text{air,atm}}$ la conductivité de l'air à pression atmosphérique). On considère le matériau composé d'une phase solide de conductivité λ_s et de fraction volumique ε_s et de N phases fluides de conductivités apparentes $\lambda_{i,\text{air}}$ et de fraction volumique $\varepsilon_{i,\text{air}}$ [4]. Une fraction β de la phase solide et α des phases gazeuses sont en parallèle, ainsi que les parties restantes, les deux parties étant en série. Les figures 2 et 3 représentent le modèle. La conductivité équivalente est donnée par :

$$\lambda_{\text{mod}} = \left[\frac{\beta \varepsilon_s + \alpha (1 - \varepsilon_s)}{\lambda_{\text{cp}}} + \frac{(1 - \beta) \varepsilon + (1 - \alpha) (1 - \varepsilon_s)}{\lambda_c} \right]^{-1} \quad (2)$$

$$\text{avec } \lambda_{\text{cp}} = \frac{\beta \varepsilon_s \lambda_s + \alpha \sum \varepsilon_{i,\text{air}} \lambda_{i,\text{air}}}{\beta \varepsilon_s + \alpha (1 - \varepsilon_s)} \quad (3)$$

$$\text{et } \lambda_c = \frac{(1 - \beta) \varepsilon_s \lambda_s + (1 - \alpha) \sum \varepsilon_{i,\text{air}} \lambda_{i,\text{air}}}{(1 - \beta) \varepsilon_s + (1 - \alpha) (1 - \varepsilon_s)} \quad (4)$$

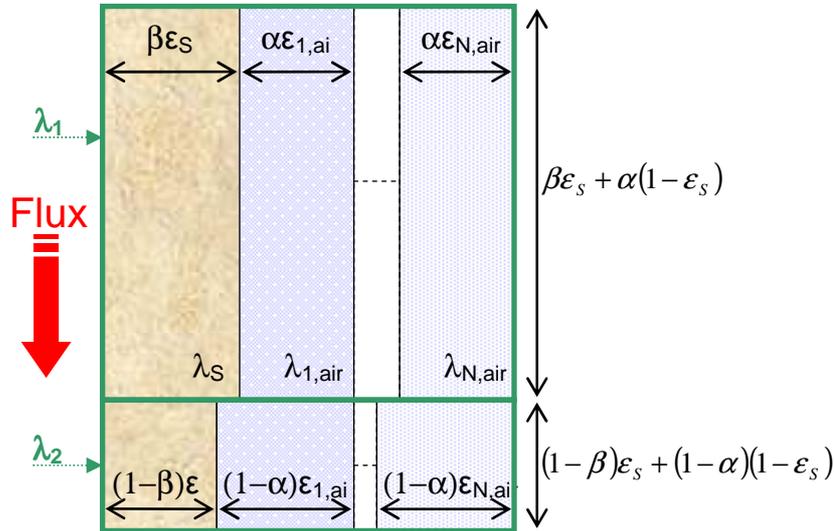


Figure 2 : Représentation du modèle combiné série-parallèle proposé à N+1 phases.

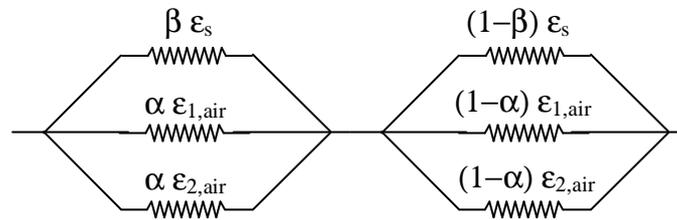


Figure 3 : Représentation en analogie électrique

2. Mesure par la méthode du plan chaud centré

Les mesures de conductivité sont réalisées à l'aide d'un dispositif de type plan chaud centré symétrique [5] placé sous une cloche à vide. La face non-chauffée de chaque échantillon est maintenue à température constante par

contact avec une plaque en aluminium refroidie par une circulation d'eau provenant d'un bain thermostaté. Une masse posée sur la plaque supérieure assure une pression uniforme et constante permettant de minimiser les résistances de contact dans le système. La température est fixée à la température ambiante du laboratoire. Trois températures sont mesurées quand le régime permanent est atteint à l'aide de thermocouple de type K diamètres de fil 0,05 mm relié à un appareil AMELMO 2890-9 :

- la température T_0 au centre de l'élément chauffant
- les températures T_1 et T_2 des surfaces en aluminium en contact avec les faces non chauffées des échantillons.

La tension U appliquée à l'élément chauffant de résistance $R = 40,3 \Omega$ est ajustée de manière à obtenir des écarts de températures $(T_0 - T_1)$ et $(T_0 - T_2)$ de l'ordre de 10°C .

La pression a été mesurée à l'aide de manomètres ADIXEN 2001 et 2004 avec une précision annoncée par le constructeur de 0,5 %. La conductivité est estimée par la relation :

$$\lambda = \frac{e U^2}{R S (2T_0 - T_1 - T_2)}$$

Où

- $S = 0,0097 \text{ m}^2$ est la surface utile de l'élément chauffant étalonnée au préalable par des mesures sur des échantillons de conductivité thermique connue,
- e est l'épaisseur des échantillons carrés de 10 cm de côté.

3. Identification des paramètres

3.1. choix des classes de pores

Une étude de sensibilité [4] permet de montrer qu'il est impossible d'identifier plus de 5 classes de pores.

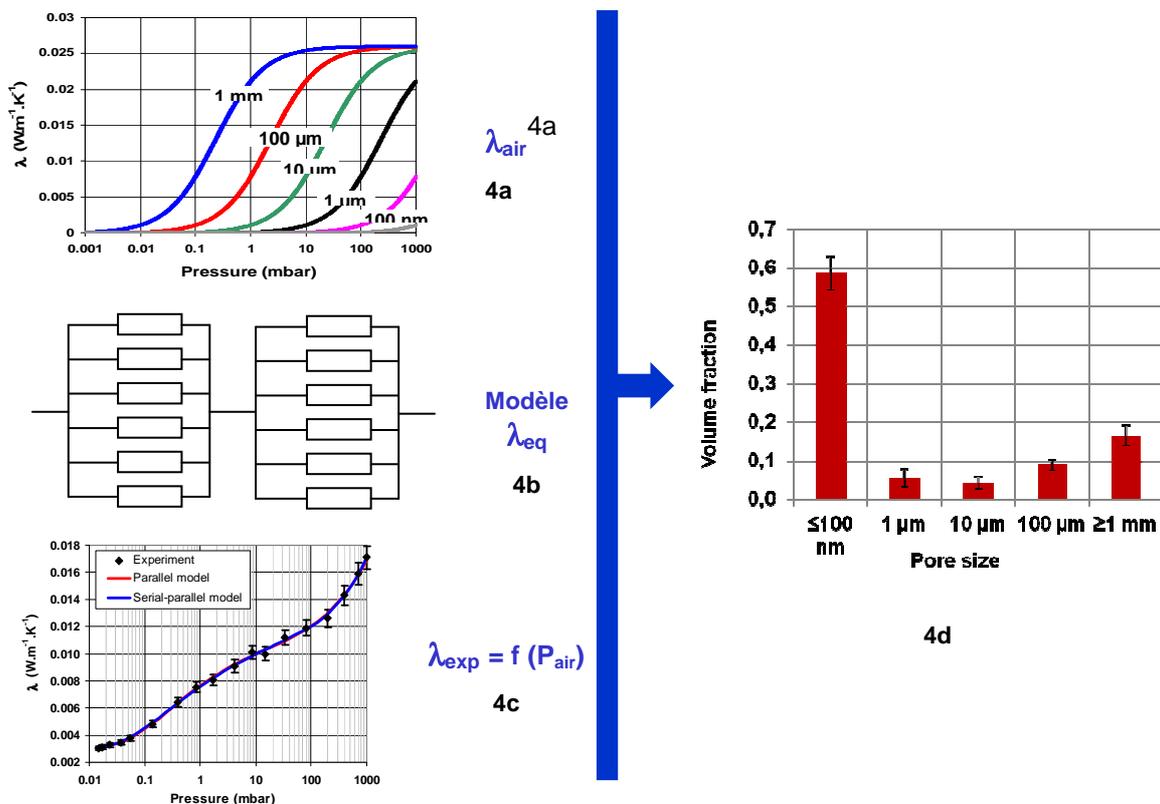


Figure 4 : La méthode de porosimétrie thermique

a – Conductivité de l'air / b – conductivité du milieu / c – comparaison modèle-mesure / d – répartition des pores

En dessous de 10^{-2} mbar, seul les pores de diamètres supérieurs à 1 mm peuvent modifier la conductivité thermique de l'air (figure 4a) ; aussi nous avons choisi de faire varier la pression de 0,01 mbar à 1 bar et de diviser les classes de pores de décade en décade soit les 5 classes : inférieur ou égal à 100 nm, 1 μ m, 10 μ m, 100 μ m et supérieur ou égal à 1 mm.

3.2. Méthode d'estimation

La méthode d'estimation consiste à comparer la courbe expérimentale $\lambda = f(P)$ avec la courbe théorique $\lambda_{\text{mod}} = f(P, \lambda_s, \lambda_{i,\text{air}}, \alpha, \beta)$. La comparaison se fait par minimisation de la somme des écarts quadratiques en utilisant l'algorithme de Levenberg-Marquardt. Les paramètres à estimer sont au nombre de 8 : $\lambda_s, \lambda_{i,\text{air}}, \alpha$ et β , avec les contraintes :

$$\begin{cases} \min \sum_{j=1}^m (\lambda_{\text{mod},j} - \lambda_j)^2 \\ 0 < \varepsilon_{i,\text{air}} < 1 \\ \sum_{i=1}^N \varepsilon_{i,\text{air}} = 1 - \varepsilon_s \end{cases}$$

ou m est le nombre de points de mesure et ε_s est fixé. La figure 4 résume la méthode.

4. Résultats

A titre d'exemple nous donnons les résultats obtenus sur deux isolants à base de silice compressée (figure 5 et 6). On peut constater que le 1^{er} (figure 5) qui a une conductivité à pression atmosphérique inférieure à celle de l'air libre n'est constitué que de pores inférieur ou égal à 100 nm. Cette constatation est générale pour tous les « super-isolants ».

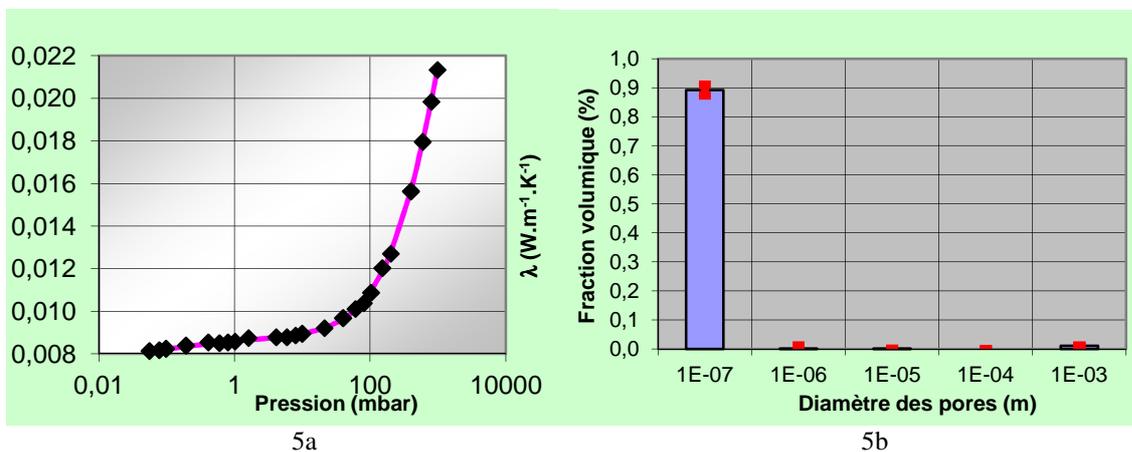


Figure 5 : 1^{er} exemple. a – comparaison modèle – mesure ; b – répartition des pores

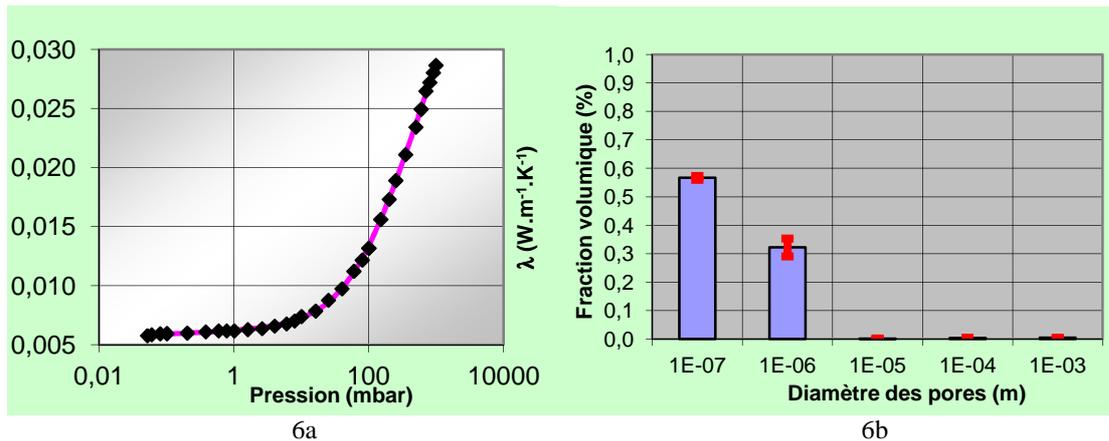


Figure 6 : 2^{ème} exemple. a – comparaison modèle-mesure ; b – répartition des portes

Conclusion

La conductivité thermique des isolants légers dépend en grande partie de la conductivité thermique du gaz et par conséquent de sa pression et de la taille des pores.

Nous avons montré qu'un modèle série-parallèle explique de façon correcte les variations de conductivité avec la pression. Par comparaison des mesures obtenues par la méthode du plan chaud centré et du modèle au travers d'une méthode inverse, nous avons pu identifier la fraction volumique de 5 classes de taille de pores. Les expériences ont montré qu'une conductivité thermique inférieure à celle de l'air libre était obtenue pour une taille de pores inférieure à 100 nm.

Actuellement, le dispositif ne permet pas de trier les pores inférieurs à 100 nm, pour cela, il est nécessaire de travailler à des pressions supérieures à la pression atmosphérique ; un dispositif permettant de monter à 10 bars est en cours de montage (on pourra identifier une classe à 10 nm).

Nomenclature

T	température, K	λ	conductivité thermique $W m^{-1} K^{-1}$
P	pression, Pa	ε	fraction volumique
d	taille des pores, m	α	fraction du gaz
U	tension, V	β	fraction du solide
R	résistance électrique, Ω		
S	surface, m^2		
			exposants, indices
		s	solide
		air	air
		atm	à pression atmosphérique
		v	sous vide

Références

- [1] E. Litovski, M. Shapiro, A. Shavit, J. Am. Ceram. Soc. 79, 1366 (1996)
- [2] P.G. Collishaw, J. R. G. Evans, J. Mat. Sc. 29, 2261 (1994)
- [3] M.R.J. Willye, P.F. Southwick, Trans. AIME, 201, 43 (1954)
- [4] V. Félix, Y. Jannot, A. Degiovanni, Rev. Sc. Instrum. 83, 054903 (2012)
- [5] Y. Jannot, V. Félix, A. Degiovanni, Meas. Sci. and Tech, 21 (2010)