

# Une nouvelle technologie pour les échangeurs thermiques : Le Nanofluide

Olivier Doche, Jean-Antoine Gruss & Olivier Soriano

CEA Grenoble  
LITEN GRETh-LETH  
17, rue des Martyrs, 38054 Grenoble  
gruss@cea.fr

## Résumé :

*Les nanofluides sont des solutions colloïdales composées de particules de taille nanométrique en suspension dans un liquide. Leurs propriétés thermiques étonnantes en ont fait l'objet d'intenses investigations durant la dernière décennie. On constate, notamment, une nette augmentation des échanges de chaleur qu'aucune phénoménologie ne permet encore d'expliquer de manière satisfaisante. Cette amélioration du transfert de chaleur fait donc des nanofluides une nouvelle technologie prometteuse dans le cadre des transferts thermiques, permettant d'améliorer les performances de divers échangeurs de chaleurs. Dans cette étude, on s'intéressera particulièrement à des solutions à base de nanotubes de carbone, qui ont montré une très bonne capacité à augmenter le coefficient de transfert de chaleur en convection forcée.*

## Abstract :

*Nanofluids are colloidal suspensions made of nanometer-sized particles dispersed in a conventional fluid. Their unusual thermal properties explain intensive investigations during last decade. Indeed, experimental results show a significant enhancement of heat transfer which can be not now clearly explained. This heat transfer improvement makes nanofluids particularly well-suited in heat exchanger designs with forced convection and can be considered as a new promising technology for heat transfer enhancement. In this study, one deals especially with carbon nanotubes solutions, which have demonstrated to be good candidates for heat transfer coefficient enhancement in forced convection.*

## Mots-clefs :

**transferts de chaleur ; nanofluides ; nanotubes de carbone**

## 1 Introduction

L'apparition des techniques permettant la miniaturisation des appareillages (MEMS), tout comme les efforts visant à économiser l'énergie, sont certainement les principaux facteurs qui ont fait de l'étude des transferts de chaleur un domaine de recherche de plus en plus actif au cours de la dernière décennie. On sait que les transferts par convection peuvent être augmentés de manière passive en modifiant la configuration de l'écoulement ou en augmentant les surfaces d'échange entre la paroi et le fluide (utilisation de micro-canaux par exemple). Mais de telles approches ont déjà montré leurs limites et de nouvelles voies d'optimisation doivent être explorées.

Les fluides tels que l'eau, l'huile ou l'éthylène-glycol sont fréquemment rencontrés dans les applications industrielles (système de refroidissement, micro-électronique, etc.), mais ne dispose que d'une conductivité thermique faible par rapport à celle des solides cristallins (deux à trois ordres de grandeurs de différence). L'idée est alors d'insérer, au sein du fluide, des particules de taille nanométrique pour espérer augmenter la conductivité thermique effective du mélange. Le terme *nanofluide* a alors été introduit par Choi (1995) et reste couramment utilisé pour caractériser ce type de suspension colloïdale. Bon nombre d'études expérimentales

ont montré que ce type de solution pouvait présenter des caractéristiques thermodynamiques très différentes de celles pouvant être prédites par des modèles macroscopiques, généralement utilisés pour caractériser les composites dont la taille des particules est égale ou supérieure à l'échelle micrométrique. Par ailleurs, les études expérimentales en convection forcée semblent montrer un effet supplémentaire sur le coefficient d'échange, qu'on ne peut attribuer directement à l'augmentation de conductivité thermique. Par ailleurs, l'agitation brownienne, liée à la taille nanométrique des particules, minimise les problèmes de sédimentation rencontrés avec des particules de plus grande dimension. L'érosion dans les canaux et les pompes est également diminuée. Ces caractéristiques font donc des nanofluides une nouvelle technologie prometteuse pour les transferts thermiques, permettant d'améliorer les performances de divers systèmes de refroidissement, et expliquant le fort intérêt porté par les industriels.

Ce papier regroupe quelques résultats majeurs tirés de la littérature et propose sur cette base une nouvelle expérimentation permettant la détermination du coefficient de transfert de chaleur en convection forcée ainsi que la perte de pression engendrée sous différents régimes (laminaire et turbulent). Une solution particulièrement prometteuse, à base de nanotubes de carbone et d'éthylène-glycol, est en cours d'expérimentation.

## 2 Propriétés thermophysiques

Les propriétés thermophysiques (conductivité thermique, viscosité dynamique et cinématique, capacité thermique massique, etc.) des solutions sont profondément modifiées par l'ajout de nanoparticules et un grand nombre de paramètres peuvent avoir un effet non négligeable sur cette déviation (le matériau, la taille, le rapport d'aspect, la concentration des particules en suspension, la conductivité du fluide de base, la température du milieu, etc.). De nombreux groupes de recherche tentent de comprendre quels sont le ou les mécanismes à l'origine de telles différences mais aucune phénoménologie n'a pu être encore formulée de manière concise et satisfaisante.

### 2.1 Conductivité thermique

De nombreux travaux, traitant de l'augmentation de conductivité thermique ( $\kappa$ ), peuvent être trouvés dans la littérature. A titre d'exemple, les résultats de Eastman *et al.* (2001) montrent que  $\kappa$  présente un gain de 40% par rapport celui de l'éthylène glycol, lorsqu'on met en suspension des particules de cuivre (dont la taille est inférieure à 10nm) à très faible concentration (0.3% en volume).

Dans le cas de solutions à base de particules de taille micrométrique ou supérieure, l'hypothèse de milieu continu est validée et le mécanisme de diffusion thermique permet, à partir de la loi de Fourier, d'aboutir à des modèles qualifiés de *macroscopiques*. C'est le cas, par exemple, du modèle d'Hamilton-Crosser (Hamilton *et al.* (1962)) :

$$\frac{\kappa}{\kappa_f} = \frac{\tau + (\eta - 1) - (\eta - 1)(1 - \tau)\phi}{\tau + (\eta - 1) + (1 - \tau)\phi}$$

où  $\kappa_f$  est la conductivité du fluide de base,  $\tau = \frac{\kappa_p}{\kappa_f}$  avec  $\kappa_p$  la conductivité des particules et  $\phi$  la fraction volumique des particules. Le rapport d'aspect est ici noté  $\eta = \xi/3$  où  $\xi$  est la sphéricité, définie comme le rapport de la surface de la sphère de volume égal à celui de la particule sur la surface de cette dernière. Si ce modèle est tout à fait adapté aux composites dont la taille des particules est supérieure au micromètre, il n'est pas certain qu'il soit valide pour des particules de taille nanométrique.

Les travaux de Koblinski *et al.* (2002) mettent alors en exergue plusieurs phénomènes, prenant place à l'échelle de la particule, et pouvant permettre une amélioration du transfert de chaleur. Ainsi, le mouvement brownien, l'organisation de la couche interfaciale fluide/solide, le transport de chaleur balistique ou encore l'effet du regroupement des particules pourraient être des mécanismes à l'origine de l'augmentation de conductivité thermique constatée.

## 2.2 Viscosité

La majeure partie des études qui ont recours à la viscosité des nanofluides, l'évalue par des modèles de type Stokes-Einstein ou Brinkman. Mais ce type de modèle n'est valable que pour des poudres métalliques, sans interactions inter-particules, de forme sphérique et pour des concentrations très faibles.

Le consensus actuel est que l'ajout de particules solides dans un liquide provoque une augmentation, plus ou moins importante, de la viscosité du mélange. Là encore, de nombreux facteurs peuvent être à l'origine des disparités constatées. Pour des nanoparticules identiques (nature, taille) et un même fluide de base, la qualité de la dispersion, la charge en particule et la température peuvent influencer considérablement sur la viscosité.

Bien qu'un comportement Newtonien soit constaté pour des fluides contenant de faibles concentrations de nanoparticules, les suspensions à base de nanotubes de carbone réagissent de manière très différentes. En effet, les travaux de Ding *et al.* (2006) montrent que la viscosité présente une tendance à diminuer lorsque le taux de cisaillement augmente (caractère rhéofluidifiant). Les implications d'un tel comportement sont importantes pour le coefficient d'échange car, près des parois, la contrainte est plus importante conférant donc à la solution une viscosité apparente amoindrie (effet lubrifiant).

## 3 Comportement en convection forcée

Les études visant à caractériser les nanofluides en convection forcée sont beaucoup moins nombreuses dans la littérature. La raison principale repose évidemment sur le fait que l'établissement du nombre de Nusselt, caractérisant les transferts de chaleur, requiert d'abord une mesure fiable de la conductivité thermique. Là encore, les modèles classiques (type Dittus-Boelter) ne peuvent être utilisés et des disparités entre les résultats expérimentaux sont constatées.

Le coefficient de transfert de chaleur convectif  $h$  est défini de la manière suivante :

$$h(x) = q'' / (T_p(x) - T_{mf}(x))$$

où  $q''$  est la densité de flux de chaleur en paroi,  $T_p(x)$  est la température en paroi et  $T_{mf}(x)$  la température moyenne du fluide circulant (fonctions de l'abscisse  $x$ ).

Le coefficient de transfert de chaleur convectif est généralement exprimé sous la forme du nombre de Nusselt ( $Nu$ ) :

$$Nu(x) = \frac{h(x)D}{\kappa}$$

où  $D$  est une dimension caractéristique de l'écoulement. Généralement, le  $Nu$  est dépendant du nombre de Reynolds ( $Re = \frac{uD}{\nu}$  où  $u$  est la vitesse caractéristique et  $\nu$  la viscosité cinématique) et du nombre de Prandtl ( $Pr = \frac{\nu}{\alpha}$  où  $\alpha$  est la diffusivité thermique).

L'étude de Pak *et al.* (1998) s'intéresse au transfert de chaleur convectif d'une solution à base d'eau, chargée de particules d'oxydes de métaux ( $Al_2O_3$  (13nm) et  $TiO_2$  (27nm)). Les mesures sont effectuées dans une configuration de tube chauffé à flux constant en régime turbulent et les résultats les plus significatifs sont obtenus avec une fraction volumique de particules

de 3%. A  $Re$  identique, il s'avère alors que le coefficient de transfert de chaleur est augmenté de 75% par rapport à celui de l'eau pure. Cependant, à vitesse débitante identique (et non  $Re$  identique), le même paramètre  $h$  devient inférieur de 12% à celui de l'eau pure. La conclusion immédiate est donc que la viscosité de la solution est nettement supérieure à celle de l'eau pure.

Les travaux de Wen *et al.* (2004) considèrent là encore des suspensions à base d'eau et d'alumine ( $Al_2O_3$ ) mais les mesures de transferts de chaleur sont ici effectuées en régime laminaire (toujours dans un tube chauffé à flux constant). Ils montrent que coefficient de transfert augmente avec le nombre de Reynolds et le pourcentage de particules dans la solution. De plus, une augmentation particulièrement importante est constatée dans la zone d'entrée où la couche limite thermique commence à se développer. Avec rigoureusement le même dispositif expérimental, Ding *et al.* (2006) étudient une solution à base d'eau et de nanotubes de carbone. Pour un régime laminaire, le comportement est similaire à celui de l'alumine mais l'augmentation du coefficient d'échange est significativement supérieure (pouvant atteindre jusqu'à 5 fois celui de l'eau pure). La figure 1 permet de comparer, pour un même nombre de Reynolds, l'évolution axiale du coefficient de transfert de chaleur ( $D$  correspond au diamètre du tube), dans le cas d'alumine (Wen *et al.* (2004)) et de nanotubes de carbone (Ding *et al.* (2006)). Les valeurs de  $h$  sont ici adimensionalisées par rapport à  $h_0$ , qui représente le coefficient d'échange pour de l'eau pure en régime thermique établi.

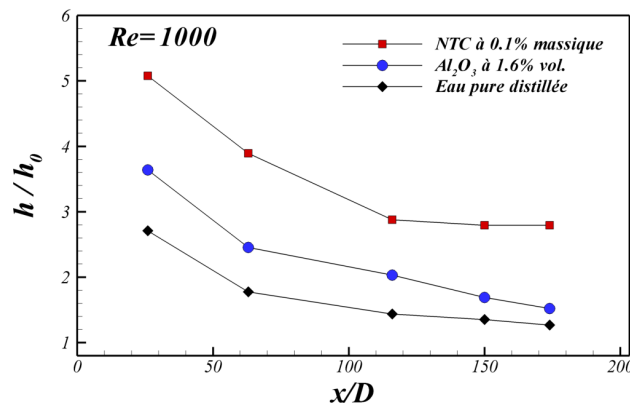


FIG. 1 – Évolution du coefficient de transfert de chaleur en fonction de la distance axiale dans le tube, à  $Re$  identique, pour une solution d'eau pure distillée, à base d'alumine ( $Al_2O_3$ , Wen *et al.* (2004)) et de nanotubes de carbone (NTC, Ding *et al.* (2006)).

Il est à noter que l'augmentation drastique de  $h$  pour la solution à base de NTC ne peut être intégralement attribuée à l'augmentation de conductivité thermique (amélioration de 40% au maximum). Plusieurs voies d'études peuvent être explorées pour comprendre l'origine de cette augmentation, parmi elles : l'orientation des nanotubes sous l'effet de la contrainte (certainement corrélée au comportement rhéofluidifiant constaté), l'augmentation de la longueur d'établissement de la couche limite thermique, l'effet du rapport d'aspect très élevé des nanotubes (aucune augmentation du transfert de chaleur n'est mesurée dans le cas de particules en forme de disque).

On notera que l'augmentation de viscosité se traduit nécessairement par une augmentation de la perte de charge régulière (pour un  $Re$  équivalent, la vitesse d'un fluide plus visqueux sera plus importante). Il est donc important, dans le cadre d'applications industrielles, de trouver le point de fonctionnement représentant le compromis entre gain de transfert thermique et la perte énergétique induite par la mise en mouvement du fluide au moyen d'une pompe.

## 4 Caractérisation thermo-hydraulique de nanofluide

Les suspensions à base de nanotubes de carbone constituent le média le mieux adapté à une optimisation des transferts de chaleur. Ceci s'explique évidemment par l'exceptionnelle augmentation de conductivité thermique constatée mais aussi la nature rhéofluidifiante du mélange, qui constituera un atout majeur dans un contexte d'échange par convection forcée. On s'intéressera donc principalement ici à des solutions à base de nanotubes de carbone en présence d'un mélange d'eau et d'éthylène glycol, qu'on retrouve fréquemment dans les applications industrielles où un risque de gel est à prendre en compte.

### 4.1 Synthèse des nanotubes de carbone et préparation de la solution

Les nanotubes de carbone sont synthétisés au CEA-DRECAM par une méthode CCVD (Catalytic Chemical Vapour Deposition). Le principe consiste à pyrolyser dans un four, un aérosol liquide contenant une source carbonée liquide et un précurseur métallique dissous. La réaction de décomposition catalytique de la source carbonée par le métal, conduit à la formation d'un dépôt sur les parois d'un réacteur en quartz. Ce dépôt est composé de nanotubes de carbone alignés à l'image d'un tapis. Les dimensions typiques de ces particules sont  $60nm$  de diamètre et  $300\mu m$  de long (soit un rapport d'aspect de  $5.10^3$ ).

La mise en suspension des tubes dans un liquide reste assez délicate. Le problème principal réside dans le fait que les nanopoudres présentent une tendance naturelle à s'agglomérer en paquet. On utilise alors des ultrasons (procédure de sonification) afin de casser leurs liaisons au sein du liquide.

### 4.2 Dispositif expérimental

La figure 2 présente le dispositif expérimental, mis en place au GRETh, pour la caractérisation thermo-hydraulique de nanofluides.

L'installation se compose d'un tube inox (de diamètre interne  $1.3mm$ , d'épaisseur de paroi  $0.1mm$  et d'une longueur de  $50cm$ ), d'une pompe à engrenage, d'un débitmètre Coriolis, et d'un bain thermostaté. Le tube, chauffé par effet Joule, est relié à un générateur de courant continu. La mesure de température de paroi est effectuée par une dizaine de micro thermocouples (type  $T$ ) placés à différentes positions le long du tube. La perte de pression est évaluée par des capteurs de pression différentiels de marque Rosemount et deux sondes en platine permettent d'accéder aux températures de fluide en entrée ( $T_e$ ) et sortie ( $T_s$ ). Le calcul du coefficient d'échange requiert l'évaluation de la température moyenne du fluide  $T_{mf}$  à la cote  $x$  qui est déterminée par :

$$T_{mf}(x) - T_e = \frac{q'' \pi D x}{\dot{m} C_p}$$

où  $D$  représente le diamètre interne du tube,  $C_p$  la capacité thermique massique du fluide, et  $\dot{m}$  le débit massique. La mesure de température de sortie  $T_s$  permettra de quantifier la déviation entre le flux théorique et le flux réel apporté. Cette différence est principalement due à la perte de chaleur par conduction dans les câbles d'alimentation reliés au générateur de courant.

## 5 Conclusions

Deux fluides de base, eau pure et un mélange d'eau et d'éthylène glycol, chargés avec des particules d'alumine ou des nanotubes de carbone, seront testés dans la boucle d'essai présentée précédemment sous différents régimes d'écoulement (laminaire et turbulent).

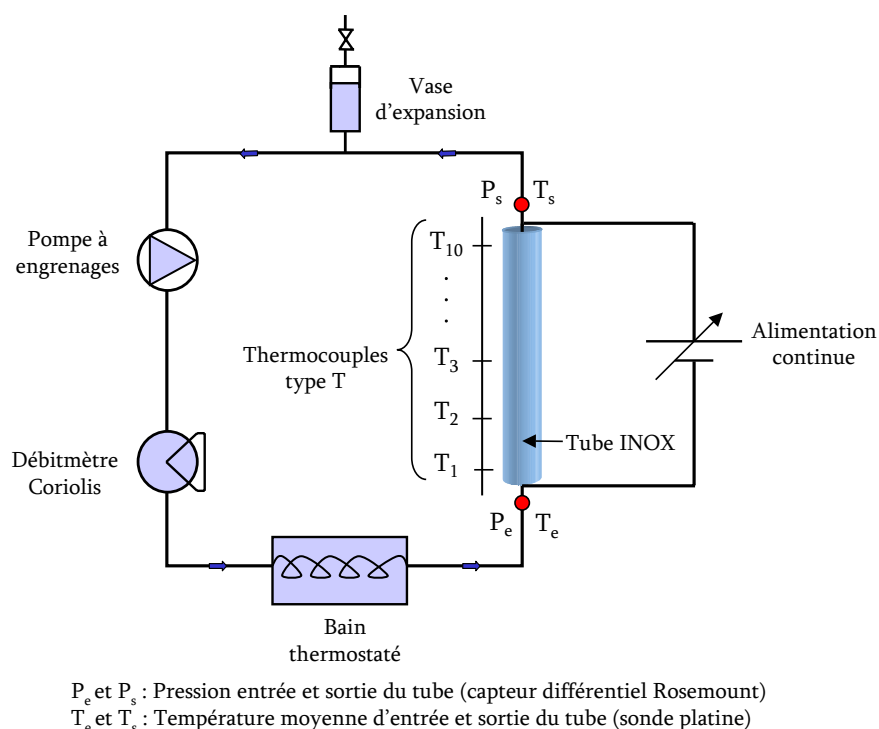


FIG. 2 – Dispositif expérimental

## Références

- Choi, S., 1995 Enhancing thermal conductivity of fluids with nanoparticles *In Developments and Applications of Non-Newtonian Flows* (ed. DA. Siginer et HP. Wang) pp. 99-105, New York : Am. Soc. Mech. Eng.
- Ding, Y., Alias, H., Wen, D., Williams, R. 2006 Heat transfer of aqueous suspensions of carbon nanotubes (CNT nanofluids) *International Journal of Heat and Mass Transfer* **49** 240-250
- Eastman, J.A., Choi, S., Li, S., Yu, W., Thompson, L. 2001 Anomalous increased effective thermal conductivities of ethylene glycol-based nanofluids containing copper nanoparticles *Applied Physics Letter* **78-6** 718-720
- Hamilton, R.L., Crosser, O.K. 1962 Thermal conductivity of heterogeneous two-components systems *I&EC Fundam* **1** 182-191
- Kebllinski, P., Phillpot, S.R., Choi, S., Eastman, J.A. 2002 Mechanisms of heat flow in suspensions of nano-sized particles (nanofluids) *International Journal of Heat and Mass Transfer* **45** 855-863
- Pak, B.C., Cho, Y.L. 1998 Hydrodynamic and heat transfer study of dispersed fluids with sub-micron metallic oxide particles *Experimental heat transfer* **11** 151-170
- Wen, D., Ding, Y. 2004 Experimental investigation into convective heat transfer of nanofluids at the entrance region under laminar flow conditions *International Journal of Heat and Mass Transfer* **47** 5181-5188