

Modèle thermique pour l'étude de l'effet magnétocalorique d'une plaque de gadolinium - comparaison expérimentale

Thermal model for magnetocaloric effect of gadolinium plate - experimental comparison

Antony PLAÏT^{1*}, Thierry de LAROCHELAMBERT¹, Stefan GIURGEA¹, Christophe ESPANET¹

¹Institut FEMTO-ST, Département Energie, Univ. Bourgogne Franche Comte, CNRS
2 avenue Jean Moulin – 90000 Belfort.

*(auteur correspondant : antony.plait@gmail.com)

Résumé – L'objectif de cette étude est double. Premièrement, utiliser un banc d'essais de cycles magnétocaloriques à électroaimant pour mesurer l'effet magnétocalorique dans une plaquette de gadolinium au moyen de micro-thermocouples et d'une caméra thermique. Deuxièmement, tester le modèle multiphysique mis au point au laboratoire pour la simulation numérique du banc d'essais en l'appliquant à la plaquette et en comparant ses résultats numériques aux mesures expérimentales obtenues sur ce dispositif. On s'intéresse ici plus particulièrement à la variation de température de la plaque de gadolinium au cours d'une impulsion d'induction magnétique.

Mots-clés : Réfrigération magnétique ; Modélisation multiphysique ; Effet magnétocalorique ; Métrologie thermique ; Validation expérimentale.

Abstract – The objective of this study is twofold. Firstly, to use a magnetocaloric cycle test bench with electromagnet to measure the magnetocaloric effect in a gadolinium (Gd) plate by means of microthermocouples and IR imaging. Secondly, to test the multiphysics model developed in the laboratory for the numerical simulation of the test bench by applying it to the gadolinium plate and comparing its numerical results with the experimental measurements obtained on this device. The focus here is on the temperature variation of the gadolinium plate during a magnetic induction pulse.

Keywords: Magnetic refrigeration; Multiphysics modelling; Magnetocaloric effect; Thermal metrology; Experimental validation.

Nomenclature

a	diffusivité thermique, $m^2.s^{-1}$	V	volume, m^3
B	induction magnétique, T	<i>Symboles grecs</i>	
c_{pm}	capacité thermique magn., $J.kg^{-1}.K^{-1}$	β	coefficient de dilatation, K^{-1}
g	accélération de la pesanteur, $m.s^{-2}$	μ_0	perméabilité du vide, $H.m^{-1}$
h	coefficient d'échange thermique, $W.m^{-2}$	ν	viscosité cinématique, $m^2.s^{-1}$
H	champ magnétique, $A.m^{-1}$	<i>Indices et exposants</i>	
l, L	dimension caractéristique, m	<i>air</i>	air
Nu	nombre de Nusselt	<i>amb</i>	ambient
m	masse, kg	<i>app</i>	appliqué
M	aimantation, $A.m^{-1}$	<i>c</i>	caractéristique
\dot{q}	puissance volumique, $J.m^{-3}$	<i>d</i>	démagnétisant
t	temps, s	<i>f</i>	fluide
S_m	entropie magnétique massique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$	<i>int</i>	interne
T	température, K	<i>m</i>	matériau
T_c	température de Curie, K	<i>p</i>	paroi

1. Introduction

La réfrigération magnétique est une technologie émergente de production de chaleur et de froid basée sur l'effet magnétocalorique (EMC), propriété des matériaux ferromagnétiques qui se traduit par l'échauffement adiabatique ΔT_{ad} ou une augmentation d'entropie isotherme ΔS_m du matériau durant la phase d'aimantation (soumis au champ magnétique) et un refroidissement durant la phase de désaimantation (soustrait du champ magnétique). Les machines magnétocaloriques mettent à profit cet effet en produisant un écart de température au sein de régénérateurs en matériaux magnétocaloriques (MMC) en leur appliquant des cycles actifs magnétiques (AMR) capables de transférer efficacement la chaleur entre deux sources thermiques.

On peut différencier les matériaux magnétocaloriques courants selon leur type de transition de phase d'après la classification thermodynamique d'Ehrenfest. On distingue principalement : i) les *matériaux de premier ordre* présentant une discontinuité d'aimantation, de volume et d'entropie (brusques augmentations ΔS_m et ΔT_{ad} dans une plage étroite de température autour de T_c) avec chaleur latente et hystérésis ; ii) les *matériaux du second ordre* dont la transition para-ferromagnétique est réversible avec continuité de l'aimantation et de la variation d'entropie magnétique (ΔS_m et ΔT_{ad} modérés sur une large plage de température autour de la température de Curie T_c) et discontinuité de la capacité thermique magnétique C_{pm} sans chaleur latente de changement de phase ni hystérésis. Nous étudions ici le gadolinium (${}_{64}\text{Gd}$), lanthanide de référence d'EMC le plus élevé et de température de Curie proche de la température ambiante.

Un des défis majeurs de la modélisation des systèmes de réfrigération magnétocalorique est la caractérisation précise de l'effet magnétocalorique des matériaux utilisés. L'objectif de cette étude est donc de mesurer quantitativement cet effet dans une plaque de Gd et de valider notre modèle multiphysique prenant en compte l'ensemble des phénomènes fluidiques, magnétiques et magnétocaloriques, en particulier le terme source de puissance magnétocalorique.

2. Dispositif expérimental

Le dispositif mis en place est composé de :

- une source pilotée de champ magnétique : l'électroaimant conçu et réalisé au laboratoire [1] produit des impulsions de champ magnétique modulables d'amplitude maximale de 1 T dans un entrefer large de 21 mm. Cette induction magnétique est obtenue par circulation d'un courant électrique de 50 A dans les quatre bobines de l'électroaimant (numérotées 1 à 4, Fig. 1) ;

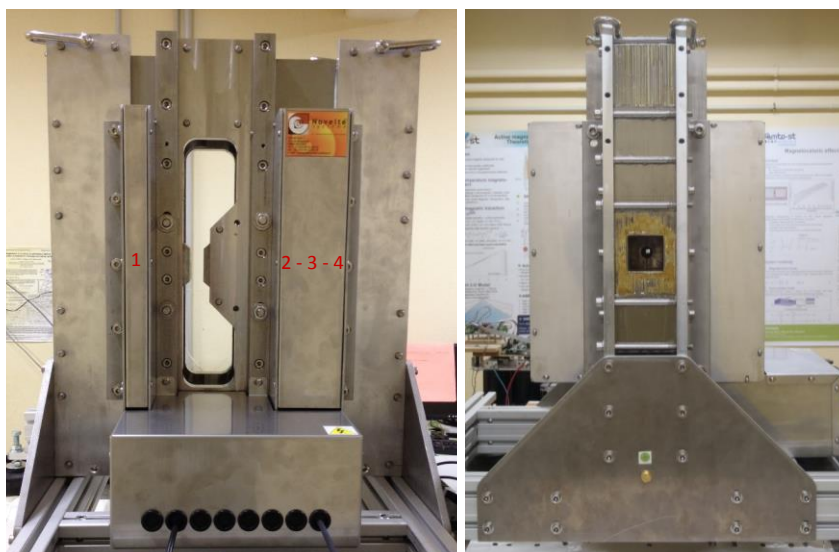


Figure 1 : Électroaimant du banc magnétocalorique au Département Energie (FEMTO-ST)

- une plaque de gadolinium ($45 \times 13 \times 1 \text{ mm}^3$, pureté 99,99%) maintenue verticalement dans l'entrefer parallèlement au champ magnétique par un support époxy. La température de Curie et les propriétés thermophysiques du gadolinium à 20°C sont résumées dans le Tableau 1 ;

	Masse volumique	Conductivité thermique	Diffusivité thermique	Température de Curie
Gd	7901 kg m^{-3}	$10,5 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$	$4,72 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$	293 K

Tableau 1 : *Propriétés thermophysiques du gadolinium*

- deux micro-thermocouples fabriqués au sein du laboratoire [2] sont logés dans des trous de perçage non-traversants aménagés dans la plaque (Fig. 2), afin de mesurer l'évolution de la température de cette plaque en fonction du champ magnétique. Les thermocouples de type E (fils de $25 \mu\text{m}$ en chromel/alumel) permettent de par leur finesse une insertion facile, l'un placé en plein centre de la plaque pour une mesure « étalon », le second décalé spatialement pour confirmer la mesure et l'homogénéité de la température sur l'ensemble de la plaque. Les mesures sont enregistrées à l'aide d'un boîtier d'acquisition programmé sous LabVIEW© [3] ;

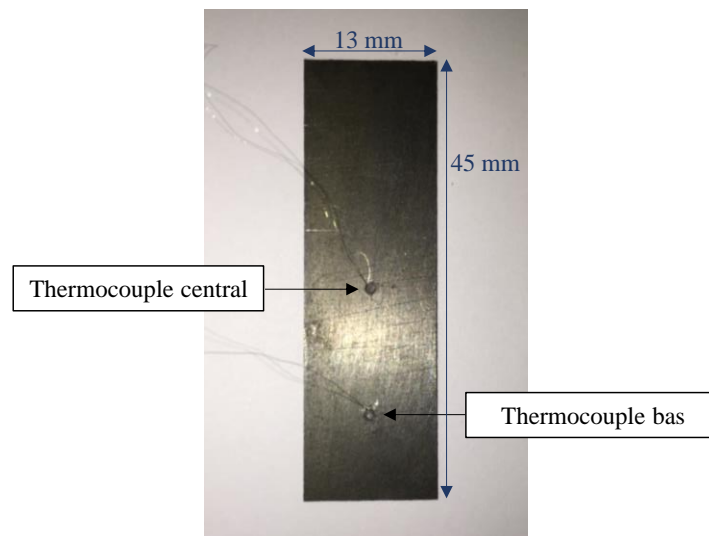


Figure 2 : *Insertion des micro-thermocouples dans la plaque de gadolinium*

- une caméra infrarouge (IR) Titanium HD 560M SC7600BB de marque FLIR [4], convertissant le signal d'un capteur matriciel InSb refroidi par refroidisseur Stirling en images de températures affichées sur un ordinateur via le logiciel Altair© (Fig. 3) ;

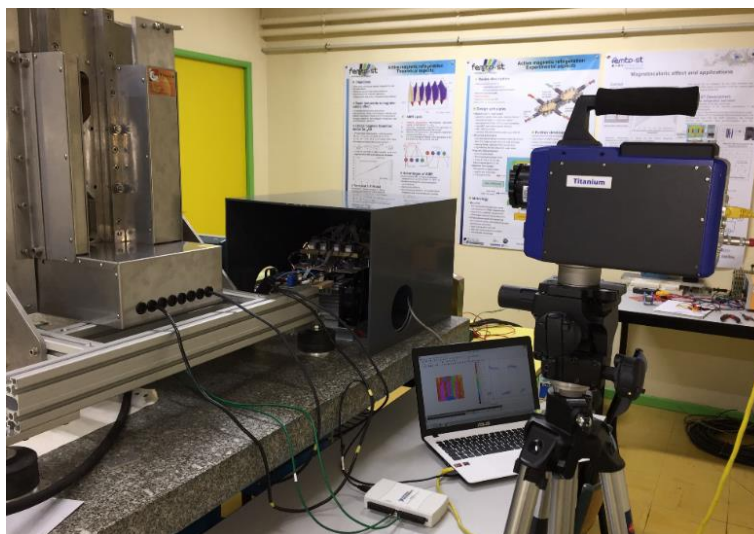


Figure 3 : *Caméra infrarouge placée devant l'entrefer de l'électroaimant*

- une sonde à effet Hall de marque Asensor Technology et de type HE144 [5] d'épaisseur 0,5 mm placée derrière la plaque de gadolinium et fixée sur une pièce polaire (Fig. 4). La mesure est également transférée sur ordinateur par carte d'acquisition National Instrument programmée sous LabVIEW®. La sonde d'un gaussmètre GN206 de marque T2EM [6] est également insérée dans l'entrefer pour confirmer la valeur du champ magnétique mesuré.

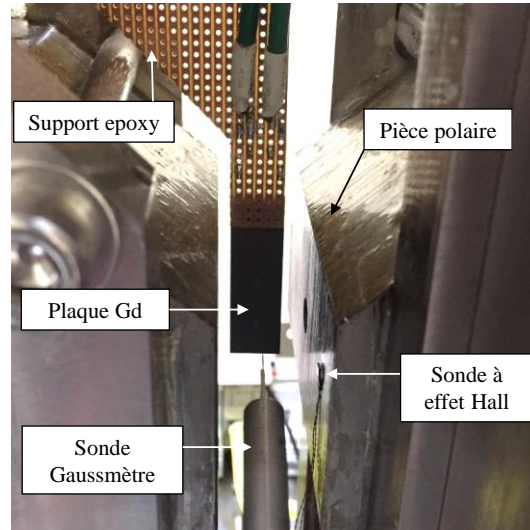


Figure 4 : Positionnement des sondes à effet Hall et de la plaque de gadolinium dans l'entrefer

3. Mesures expérimentales

Plusieurs essais ont été effectués avec différentes valeurs des paramètres de cycles de contrôle-commande du courant de l'électroaimant (fréquence, rapport cyclique, temps de montée) pouvant influencer sur la mesure de l'effet magnétocalorique dans la plaque de gadolinium.

Nous appliquons à la plaquette de Gd des cycles trapézoïdaux de champ magnétique d'amplitude 1 T et de fréquence 0,1 Hz (fréquence du cycle aimantation-désaimantation 0,2 Hz) suffisamment faible pour mieux observer la variation et la stabilisation de la température du gadolinium. L'induction magnétique mesurée par la micro-sonde de Hall est identique à celle mesurée par la sonde du gaussmètre (Figure 5 ; l'induction magnétique négative correspond à un champ magnétique de sens opposé, l'effet magnétocalorique étant indépendant de ce sens).

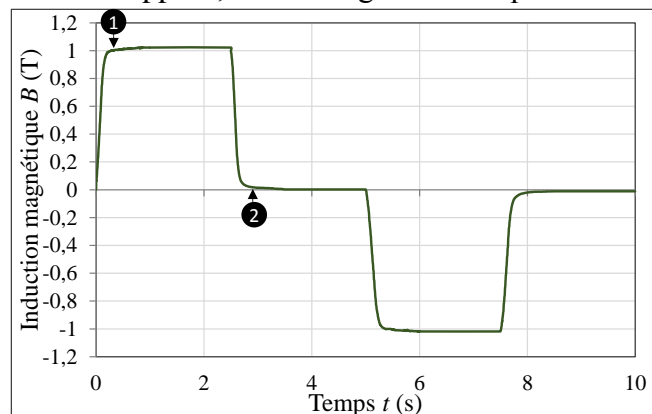


Figure 5 : Induction magnétique mesurée dans l'entrefer à $f = 0,1$ Hz

En visualisant les deux images thermiques IR en Figure 6 (émissivité grise uniforme du Gd : 0,97) après magnétisation à gauche et démagnétisation à droite, on observe un écart de température de 1,85 K (de 290,05 K à 291,9 K) lors de l'application d'une induction magnétique de

1 T. On peut observer une bonne homogénéité de température sur l'ensemble de la plaque, qui met en évidence l'homogénéité du champ magnétique sur la hauteur de l'entrefer.

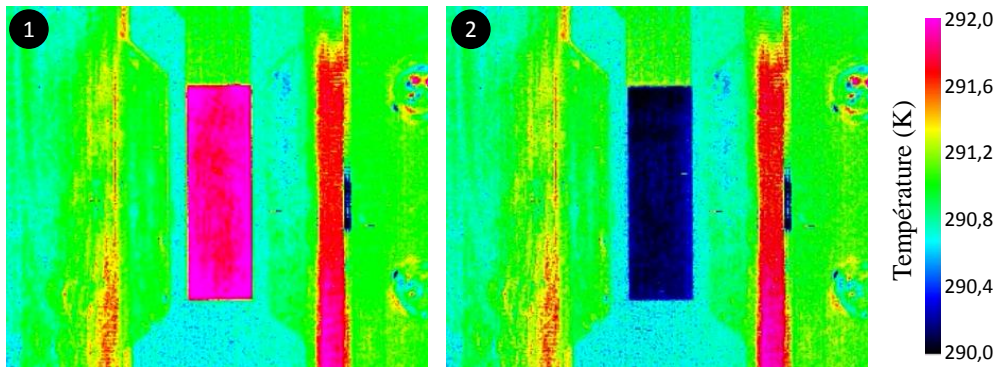


Figure 6 : Thermographies de la plaque de gadolinium (à $t=0,3s$ à gauche et $t=2,8s$ à droite)

Sur la Figure 7, nous pouvons comparer l'évolution temporelle de la température obtenue par la caméra thermique en un point/pixel donné et par le thermocouple au centre de la plaque (identique pour le thermocouple bas, non représenté ici). On observe une bonne concordance de l'évolution de la température entre les deux méthodes de mesure ; cependant, l'amplitude du saut thermique relevée par le micro-thermocouple central est légèrement supérieure.

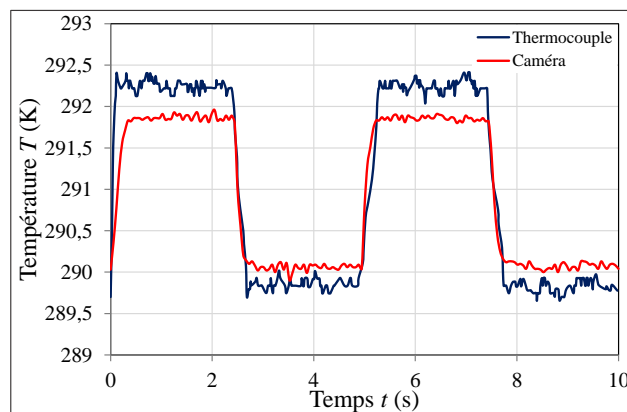


Figure 7 : Température au centre de la plaque de Gd (mesure par thermocouple et caméra thermique)

L'élévation de la température du gadolinium mesurée par micro-thermocouple est de 2,3 K ($\pm 0,15$ K) sous un champ magnétique appliqué $B_{app} = 1$ T à une température initiale du matériau de 289,9 K, soit un effet magnétocalorique $\Delta T_{ad}/\Delta B_{app}$ de 2,3 K T⁻¹, cohérent avec les valeurs $\Delta T_{ad}/\Delta B_{int} \approx 2,9$ K T⁻¹ publiées par ailleurs dans la littérature pour le gadolinium pur [7], compte tenu du champ démagnétisant interne dans la plaquette (cf. section 4). Les résultats obtenus avec la caméra thermique montrent une élévation de température de 1,85 K ($\pm 0,25$ K) dans les mêmes conditions. Cet écart tient au fait que le micro-thermocouple inséré dans la plaque assure une mesure *in situ* de l'effet magnétocalorique, quand la caméra thermique capte le rayonnement de surface de la plaque, largement dépendant de son émissivité et soumis aux échanges convectifs avec l'air ambiant. La mesure par thermographie IR est donc moins représentative de la température interne du gadolinium que celle par micro-thermocouple.

4. Modélisation multiphysique

L'objectif est de vérifier la validité de notre modèle multiphysique en restituant l'évolution thermique expérimentale de la plaquette de Gd par simulation numérique lors d'un échelon de champ magnétique. La modélisation multiphysique (magnétostatique, magnétocalorique et thermique) réalisée permet de prendre en compte les phénomènes se déroulant dans la plaque de Gd au cœur de l'entrefer.

4.1. Modélisation magnétostatique

La première étape du modèle multiphysique consiste à calculer le champ magnétique interne H_{int} et l'induction magnétique interne B_{int} de la plaque de gadolinium en fonction du courant injecté dans les bobines. Nous réalisons une modélisation physique du système complet, dont les équations sont discrétisées et résolues par méthode des éléments finis avec le logiciel Flux3D©. Nous considérons une unique plaque de gadolinium insérée au cœur de l'entrefer de l'électroaimant, centrée dans l'entrefer comme nous pouvons l'observer en Figure 4.

De par sa position centrale dans l'entrefer, la plaque de gadolinium concentre le flux magnétique sur toute sa hauteur. Le champ magnétique est ainsi reparti de manière quasi-homogène sur cette hauteur, conformément aux mesures expérimentales par gaussmètre [8].

4.2. Modélisation magnétocalorique

Le calcul de l'aimantation en fonction de la température et du champ magnétique interne dans la plaque se fait à partir des équations (1) tenant compte du champ démagnétisant [9].

$$M = \frac{B_{int}}{\mu_0} - H_{int} \text{ avec } B_{int} = B_{app} + B_d, B_{app} = \mu_0 H_{app}, B_d = \mu_0 (H_d + M) \quad (1)$$

La modélisation magnétostatique consiste à déterminer la densité de puissance magnétocalorique générée (équation 2) au sein du gadolinium par effet magnétocalorique.

$$\dot{q} = -\mu_0 \cdot T \cdot \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_{H_{int}} \cdot \frac{dH_{int}}{dt} \quad (2)$$

La capacité thermique du matériau est obtenue par interpolation linéaire effectuée sur des données de mesures de référence [10] comme expliqué dans [11] et exposés en Fig. 8.

4.3. Modélisation thermique

Le modèle thermique prend en compte, dans cette situation, un échange de chaleur entre les six faces de la plaque de gadolinium avec l'air ambiant (Fig. 9). La surface de la plaque collée sur le support époxy étant seulement de quelques mm^2 , nous faisons l'hypothèse que son impact sur l'échange thermique de cette face est négligeable. La convection avec l'air ambiant sur chaque face de longueur caractéristique L_c étant libre, un modèle assez simple est utilisé pour obtenir les différents coefficients d'échange convectif h de chaque face par la relation (3).

$$h = \frac{Nu_{L_c} \lambda_{air}}{L_c} \quad (3)$$

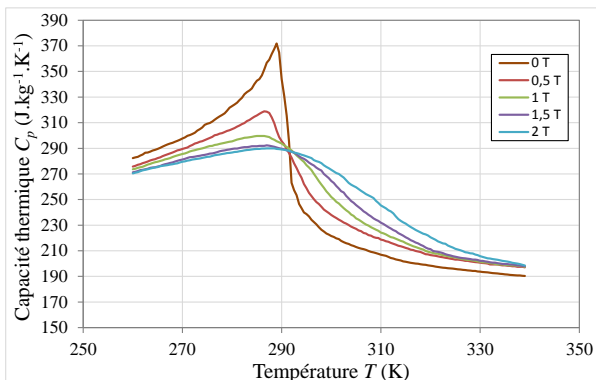


Figure 8 : $C_p(T,B)$ du gadolinium

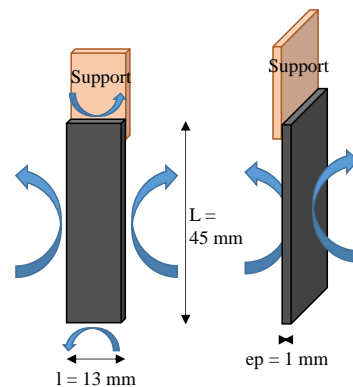


Figure 9 : Schéma de la plaque et des échanges

Le nombre de Nusselt est ici fonction du nombre de Rayleigh qui mesure la compétition entre la convection naturelle, déterminée par la force d'Archimède, et les phénomènes résistants

(diffusion de chaleur, frottements visqueux) [12]. Le nombre adimensionnel de Rayleigh s'exprime quant à lui en fonction de l'écart entre la température de l'air et celle de la paroi que l'on suppose uniforme sur l'ensemble des surfaces de la plaque (4).

$$Ra_{L_c} = \frac{g\beta_{air}|T_p - T_{amb}|L_c^3}{\alpha_f \nu_{air}} \quad (4)$$

En convection libre laminaire, les corrélations utilisées [13] pour calculer le nombre de Nusselt dépendent de la géométrie et de l'orientation de la paroi par rapport à la verticale. En conséquence, pour une paroi verticale avec échauffement latéral, la dimension caractéristique L_c est la longueur L de la plaque et la corrélation Nu (Ra) s'écrit :

$$Nu_L = 0,59 Ra_L^{1/4} \quad (5)$$

Pour la paroi horizontale chauffant vers le haut, $L_c = l$, et la corrélation retenue est :

$$Nu_l = 0,54 Ra_l^{1/4} \quad (6)$$

Pour la paroi horizontale chauffant vers le bas ($L_c = l$), le corrélation devient :

$$Nu_l = 0,59 Ra_l^{1/4} \quad (7)$$

Ces différentes corrélations permettent de déterminer les coefficients d'échange h_i pour chaque paroi de surface S_i . L'équation de la chaleur dans la plaque prise dans son ensemble peut s'écrire simplement sous la forme de l'équation (8), la température du matériau $T_m \approx T_p$ étant à tout instant supposée homogène (nombre de Biot $\ll 1$) :

$$m_m c_{pm}(H_{int}, T_m) \frac{\partial T_m}{\partial t} = \dot{q} V_m + \sum_{i=1}^6 h_i S_i (T_{amb} - T_m) \quad (8)$$

Un schéma de discrétisation explicite est appliqué à l'équation (8), ce qui conduit à :

$$T_{i+1} = \dot{q} \frac{V_m \Delta t}{m_m c_{pm}} + T_i \left(1 - \sum_{i=1}^6 h_i S_i \frac{\Delta t}{m_m c_{pm}} \right) + T_{amb} \left(\sum_{i=1}^6 h_i S_i \frac{\Delta t}{m_m c_{pm}} \right) \quad (9)$$

Dans ces conditions, on peut calculer l'évolution de la température du matériau au cours du temps. Ces valeurs sont présentées et comparées dans la section suivante.

5. Résultats et comparaisons

Nous présentons sur un même graphique les évolutions de la température de la plaquette obtenues expérimentalement et simulées avec le modèle multiphysique. La Figure 9 permet de comparer les résultats pour l'augmentation de la température de la plaque par effet magnétocalorique lors d'un échelon de champ magnétique appliqué de 0 à 1 T.

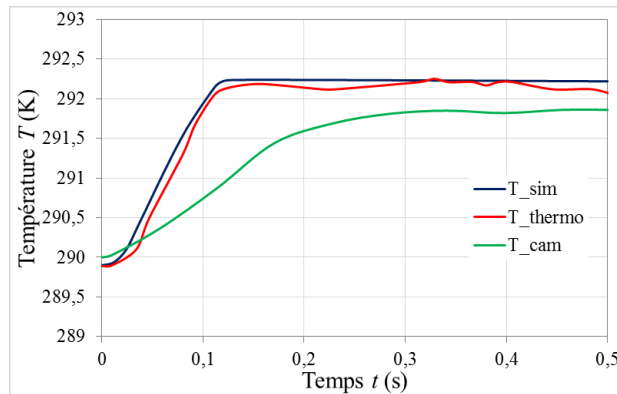


Figure 9 : Comparaison des mesures expérimentales et des résultats de simulation

Le saut de température calculé avec le modèle multiphysique est de 2,3 K (T_{sim} en bleu), très proche de celui mesuré expérimentalement par le micro-thermocouple inséré au cœur de la plaque (T_{thermo} en rouge). Notre modèle multiphysique restitue donc avec précision le comportement thermique de la plaquette de Gd et donc le phénomène magnétocalorique qui le sous-tend. Nous mesurons et calculons donc un effet magnétocalorique $\Delta T_{ad}/\Delta B_0$ de $2,3 \text{ K T}^{-1}$ (soit $\Delta T_{ad}/\Delta B_{int} \approx 2,7 \text{ K T}^{-1}$) ce qui est conforme à la littérature pour une température initiale de 290 K, l'effet magnétocalorique étant maximal ($2,9 \text{ K T}^{-1}$) autour de la température de Curie du gadolinium (293 K).

6. Conclusion

L'écart relatif entre les résultats expérimentaux et numériques ne dépassant pas 2 %, notre modèle multiphysique s'est montré apte à simuler précisément l'effet magnétocalorique dans le cas important d'une géométrie simple (plaque parallélépipédique de matériau magnétocalorique pur) dans des conditions magnétiques de référence (échelons de champ magnétique appliqué de 0 à 1 T), mais également dans le cas complexe de cycles AMR (*cf.* [11]).

Bien entendu, l'échelon de température obtenu ici en tenant compte des échanges avec l'air ambiant est nécessairement inférieur à celui que l'on obtiendrait en conditions purement adiabatiques, même si l'écart reste faible du fait du caractère uniforme et instantané de la puissance volumique magnétocalorique produite pendant l'aimantation. Au vu de la qualité du dispositif, un tel essai obtenu en isolant thermiquement l'échantillon serait très utile à la détermination précise de l'effet magnétocalorique du gadolinium et d'autres matériaux magnétocaloriques sous forme de graphes $\Delta T_{ad}/\Delta B_{int}(T)$ et constitue une des perspectives de recherches.

Références

- [1] A. Mira, Modélisation et conception optimale d'un système de réfrigération magnétocalorique, Thèse de l'Université de Bourgogne Franche-Comté, 2016.
- [2] L. Thierry, Microsondes thermoélectriques, *Techniques de l'ingénieur*, r2765 (2006).
- [3] National Instruments : Systèmes de test automatique et de mesure automatique.
- [4] FLIR-systems. FLIR® Titanium : Technical specifications. Technical report.
- [5] Asensor Technology AB, Linear High Precision Analog Hall sensors.
- [6] TE2M, solutions magnétiques. Gaussmètre à effet Hall GN 206. Technical report.
- [7] V. Franco, A. Conde, J.M. Romero-Enrique, Y.I. Spichkin, V.I. Zverev, A.M. Tishin, Field dependence of the adiabatic temperature change in second order phase transition materials: Application to Gd, *Journal of Applied Physics*, 106 (2009), 103911.
- [8] A. Plait, S. Giurgea, T. de Laroche Lambert, P. Nika and C. Espanet, Low computational cost semi-analytical magnetostatic model for magnetocaloric refrigeration systems, *AIP Advances* 8, 095204(2018).
- [9] A. Mira, T. de Laroche Lambert, C. Espanet, S. Giurgea, P. Nika, C. R. H. Bahl, R. Bjørk, and K. K. Nielsen, Influence of magnetization on the applied magnetic field in various AMR regenerators, *J. Appl. Phys.* 122 (2017) 133901.
- [10] S.Yu. Dan'kov, A.M. Tishin, V.K. Pecharsky and K.A. Gschneidner, Magnetic phase transitions and the magnetothermal properties of gadolinium, *Physical Review B*, 57 6 (1997), 3478-3490.
- [11] A. Plait, Modélisation multiphysique des régénérateurs magnétocaloriques, Thèse de l'Université de Bourgogne Franche-Comté, 2019.
- [12] J. Taine, J-P. Petit, *Transferts thermiques. Mécanique des fluides anisothermes*, Paris, Dunod (1989).
- [13] W.H. Mc Adams, *Transmission de la chaleur*, Paris, Dunod (1961).