

Réfrigération magnétique

Etat de l'art et développements récents

Afef Kedous-Lebouc, Morgan Almanza, Jean-Paul Yonnet, Ulrich Legait et Julien Roudaut

Laboratoire de Génie Electrique de Grenoble – G2Elab, Grenoble Alpes Université, CNRS UMR 5269,
ENSE3 BP 46, 38402 Saint Martin d'Hères Cedex - France

RESUME – La réfrigération magnétique, basée sur l'effet magnétocalorique, est une thématique relativement récente et prometteuse devant permettre de réaliser des systèmes moins énergivores que la technologie conventionnelle et sans impact sur l'environnement. Pluridisciplinaire, elle implique de maîtriser toute une filière, du matériau à l'application et de lever des verrous scientifiques et technologiques. L'article fait un état de l'art, discute des derniers travaux réalisés, et illustre les problèmes soulevés en particulier dans le domaine thermique en s'appuyant sur l'expérience acquise au G2Elab.

MOTS-CLES – Réfrigération magnétique, effet magnétocalorique, matériaux, cycle thermodynamique, cycle à régénération magnétique active AMR, modélisation, expérimentation.

1. Introduction

La réfrigération magnétique à température ambiante est une solution alternative à la technologie de refroidissement classique, permettant de réaliser des systèmes plus efficaces et moins polluants. Elle s'appuie sur les matériaux à effet magnétocalorique EMC qui peuvent s'échauffer ou se refroidir quand on les aimante ou les désaimante. Cet effet est maximal autour de la température de Curie du matériau et peut être exploité pour faire un cycle thermomagnétique équivalent au cycle thermodynamique classique de compression et détente d'un gaz. C'est une thématique récente et pluridisciplinaire car même si l'EMC, phénomène physique mis en œuvre, est connu depuis plus d'un siècle, la recherche dans ce domaine n'a réellement démarré qu'il y a environ 15 ans [1], [2]. Depuis, des avancées importantes et multiples ont été réalisées à l'échelle fondamentale et applicative dans le domaine du matériau et du système. Elles ont aussi progressivement montré que c'est une thématique complexe, fortement pluridisciplinaire qui nécessite une analyse de toutes les physiques mises en jeu ainsi que des investigations expérimentales et de modélisations de plus en plus poussées.

Cet article présente les récents développements réalisés et discute en particulier des travaux menés au G2Elab dans des projets Interreg - Frimag et ANR - MagCool. Il sera focalisé plus particulièrement sur les aspects thermodynamiques rencontrés dans la réfrigération magnétique.

2. Effet magnétocalorique et matériaux

La thermodynamique fournit les outils appropriés pour aborder la réfrigération magnétique et l'EMC. Sur un chemin réversible, on écrit le second principe de la thermodynamique sous la forme de l'Eq. (1), avec comme variables d'état le champ H et la température T . Le terme dû à l'effet magnétocalorique est $\frac{\partial S}{\partial H}$ car il nous donne à la fois le ΔT_{adia} par la résolution d'une équation différentielle mais aussi la chaleur susceptible d'être échangée.

$$TdS = \delta Q = C_H dT + T \frac{\partial S}{\partial H} dH$$

La caractérisation de l'effet magnétocalorique demande la connaissance de trois fonctions : $\frac{\partial S}{\partial H}(T, H)$, $C_H(T, H)$ et l'aimantation $M(T, H)$. On obtient ces informations aux travers de mesures calorimétrique, magnétométrique et de la variation de température pour différentes valeurs de champ et de température.

Une comparaison approximative entre un gaz de type HFC et un matériau magnétocalorique (MMC) montre des densités volumiques d'entropie similaires avec une variation de température beaucoup plus faible pour le MMC. Cependant, la réfrigération magnétique reste pertinente car d'autres facteurs sont à prendre en compte :

- Des fortes irréversibilités, liées à la sollicitation en pression, sont à considérer dans le cas de la compression et de la détente d'un gaz. Dans les MMC ces irréversibilités sont négligeables, ce qui contribue à l'amélioration de l'efficacité ;
- Des MMC solides, ayant des conductivités thermiques au moins 100 fois supérieures au liquide et au gaz et des capacités thermiques volumiques plus importantes, permettent des échanges plus rapides ;
- La réversibilité du processus d'aimantation et de désaimantation, même pour des transformations rapides de l'ordre de 10 ms, associée à une bonne capacité d'échange, permet d'augmenter le nombre de cycles thermodynamiques effectués par unité de temps et donc d'augmenter la densité de puissance.

L'EMC est la conséquence d'une transition de phase induite magnétiquement. Il est maximal autour de la transition de phase magnétique qui peut s'accompagner ou non de transition de phase structurale. On parle alors de transition du 1er ou du 2nd ordre. Ces transitions doivent s'effectuer autour de la température de fonctionnement et s'accompagner d'une forte variation d'entropie pour des champs de l'ordre de 1T. En jouant sur les compositions, on cherche à atteindre ces critères. La Figure 1 montre des résultats obtenus dans le cas du LaFeSiCoSi hydrogéné qui constitue aujourd'hui, avec les MnFePSi, des matériaux à fort potentiel. Ces compositions sont en voie d'industrialisation sous forme de poudres [3].

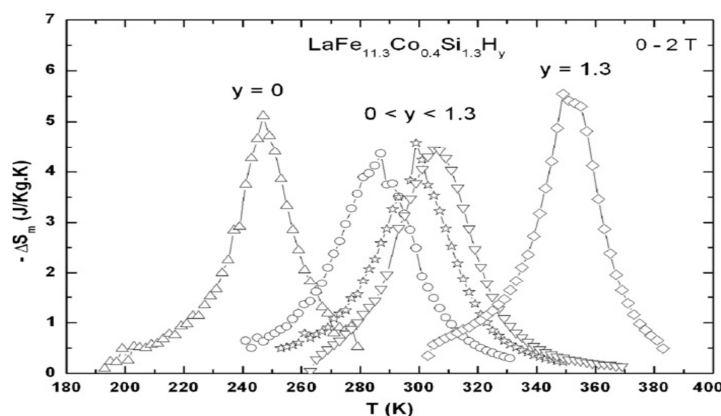


Figure 1 : Composés LaFeSi : Réglage de la température de Curie en contrôlant le taux d'hydruration [4]

3. Cycles thermodynamique dans la réfrigération

L'EMC étant relativement modeste (3 à 5 K/T), il n'est pas possible de l'exploiter directement et d'atteindre les valeurs de ΔT de 30 à 50 °C requises pour les applications conventionnelles de production de froid. Pour contourner la difficulté, on cascade plusieurs cycles de Brayton qui se compose de 4 phases : aimantation adiabatique du matériau, refroidissement iso-champ, désaimantation adiabatique, échauffement iso-champ.

La Figure 2 présente le principe de cette mise en cascade, la couleur des flèches ainsi que les numéros représentent les étapes du cycle. Les flèches en pointillés représentent les échanges de chaleur:

- Phase 1 : le MMC du 1^{er} étage est désaimanté et il prélève de la chaleur à la source froide tandis que le 2nd étage est aimanté et donne de la chaleur à la source chaude ;
- Phase 2 : le MMC du 1^{er} étage s'aimante et augmente sa température tandis que le 2nd étage se désaimante et diminue sa température ;
- Phase 3, le 1^{er} étage donne de la chaleur au 2nd étage ;
- Phase 4, le MMC du 1^{er} étage se désaimante et diminue sa température tandis que le 2nd étage s'aimante et augmente sa température.

Dans les systèmes à réfrigération magnétique actuels, on utilise un fluide pour véhiculer la chaleur d'un étage à un autre. Afin d'augmenter les performances d'un cycle, le MMC peut être régénéré par le fluide avant de s'aimanter et de se désaimanter. Ce système étant techniquement mis en place au travers de système à régénérateur, il est naturellement appelé système à régénération actif ou par l'acronyme AMR (Active Magnetic Regeneration).

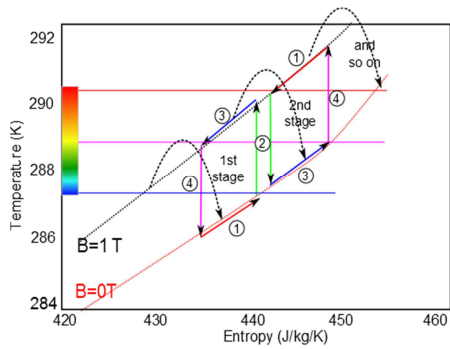


Figure 2 : Principe des systèmes multiétages

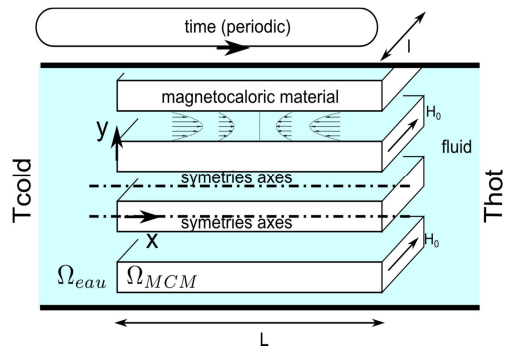


Figure 3 Représentation simplifiée du système

4. Cycle AMR : réalisation et modélisation

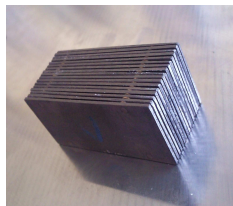
Le cycle AMR a été introduit et mis en œuvre par Barclay en 1982 [5]. Il est utilisé, aujourd'hui, dans la majorité des démonstrateurs développés. Il permet, grâce à un échange entre le matériau et un fluide extérieur qui circule alternativement dans un sens et dans l'autre, d'établir un gradient le long du matériau et d'amplifier l'écart de température entre la source chaude et la source froide comme illustré Figure 3.

Plusieurs approches expérimentales et de modélisation sont considérées pour étudier le cycle AMR et analyser le comportement des MMC dans des conditions de travail proches de leur utilisation dans un système de réfrigération [6],[7].

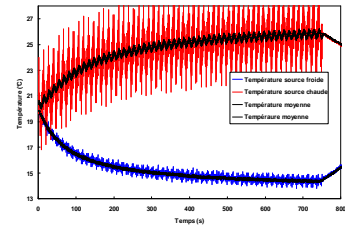
Dans les figures suivantes, nous présentons à titre d'exemples quelques travaux récents réalisés au G2ELab. La Figure 4 présente le dispositif développé pour étudier l'influence des paramètres du cycle AMR et tester différents matériaux. La Figure 5 résume les résultats d'une étude comparative entre 3 régénérateurs en plaques ayant des géométries identiques et des matériaux différents : Gadolinium, considéré comme le matériau de référence, un composé intermétallique en LaFeSiCo produit par Vaccumshmelze GmbH&CO et un oxyde manganite PrSrMnO₃ produit au laboratoire CRISMAT à Caen. Les résultats montrent des amplifications de 5 à 10 du gradient de température, ainsi que l'influence des conditions des essais et des caractéristiques des différents matériaux.



Dispositif à aimants permanents pour l'étude du cycle AMR



Régénérateur en plaques de Gadolinium de 1mm d'épaisseur



Amplification de l'écart de température entre les deux extrémités du régénérateur

Figure 4 : Cycle AMR et exemple de résultat obtenu sur un régénérateur en Gadolinium [8]

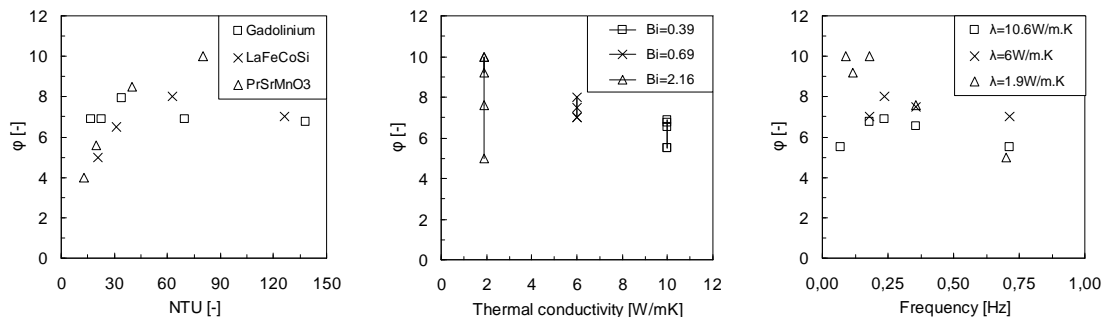
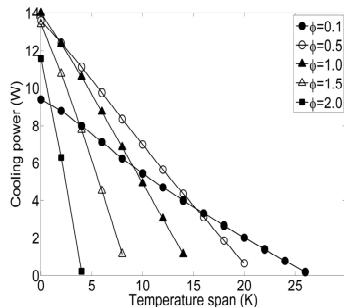


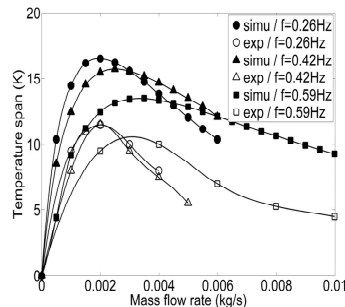
Figure 5 : Etude comparative des performances de 3 régénérateurs en Gd, LaFeSiCo et oxyde manganite sur la performance du régénérateur [9]

Générateurs ayant la même géométrie, mais réalisés à partir de trois matériaux différents : Gd, LaFeSiCo et oxyde PrSrMnO
 Gd : $T_C = 294$ K, $EMC = 1.75$ K/T), LaFeSiCo : $T_C = 293$ K, $EMC = 1.4$ K/T, PrSrMnO : $T_C = 294$ K et $EMC = 1$ K/T
 $\phi = \Delta T / \Delta T_{adia}$, NTU = Nombre d'unités de transfert, Bi=Biot, λ = Conductivité thermique

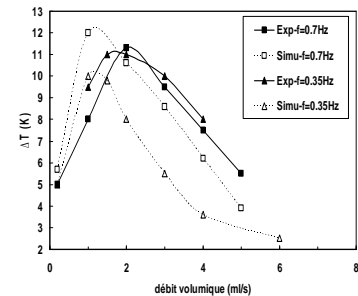
Malgré les avancées significatives réalisées, la modélisation du cycle AMR reste complexe car elle est multi-physique avec des dépendances fortement non linéaires au cœur de l'EMC. Aujourd'hui, deux approches complémentaires et plus ou moins sophistiquées coexistent. Des modèles 1D basés sur des échanges convectifs simplifiés entre le matériau et le fluide, qui intègrent les caractéristiques des matériaux et leur dépendance avec le champ et la température. Et des modèles 2D résolvant simultanément les équations de transport et d'échange thermique et permettant une analyse plus fine du comportement du régénérateur, mais avec des caractéristiques de matériaux très simplifiés. La Figure 6 illustre des résultats obtenus au G2Elab avec ces approches.



Puissance froide en fonction de ΔT (NTU=0.5, Utilisation Φ variable, modèle 1D



Comparaison : modélisation 1D et expérience, ΔT_{max} en fonction du débit



Comparaison : modélisation 2D sous Fluent et expérience, ΔT_{max} en fonction du débit

Figure 6 : Modélisations 1D et 2D du cycle AMR, comparaisons avec les mesures expérimentales [8],[10]

5. Remerciements

Les auteurs remercient le FEDER - Fonds européen de développement régional, la Confédération suisse et l'Agence nationale française de recherche pour leur soutien financier dans le cadre du projet FRIMAG (INTERREG IV A, France- Suisse n ° 2009/ 40) et du projet MagCool (ANR STKE 2010-008).

6. Références

- [1] V. K. Pecharsky and Karl A. Gschneidner Jr « Giant Magnetocaloric effect in $Gd_5(Si_2Ge_2)$ », Physical Review Letters, Vol 78, No 23, le 9 Juin 1997.
- [2] C. Zimm, A. Jastrab, A. Sternberg, V. K. Pecharsky, K. A. Gschneider Jr, M. Osborne, I. Anderson, « Description and performance of near-room temperature magnetic refrigerator », Advances in Cryogenic Engineering 43, pp.1759-1766 (1998).
- [3] M. Rosca, M. Balli, D. Fruchart, D. Gignoux, E.K. Hlil, S. Miraglia, B. Ouladdiaf, P. Wolfers, « Neutron diffraction study of $LaFe_{11.31}Si_{1.69}$ and $LaFe_{11.31}Si_{1.69}H_{1.45}$ compounds, Journal of Alloys and Compounds 490 (2010) 50 – 55.
- [4] Alexandra Dubrez, Charlotte Mayer, Michel Pierronet, Peter Vikner, « $(LaCe)(Fe,Mn,Si)_{13}H_x$ Materials produced via gas atomization », Delft Days on Magnetocalorics DMM 2013.
- [5] J. A. Barclay, W. A. Steyert Jr, « Active magnetic regenerator », U.S. Patent No. 4,332,135., 1982
- [6] B. Yu, L. Min, P. Egolf, A. Kitanovski, « A review of magnetic refrigerator and heat pump prototypes built before the year », Int. J. Refrigeration 33(2010) 1029 – 1060.
- [7] Nielsen, K. K., Tusek, J., Engelbrecht, K., Schopfer, S., Kitanovski, A., Bahl, C. R. H., Smith, A., Pryds, N., Poredos, A., « Review on numerical modeling of active magnetic regenerators for room temperature applications », Int. J. Refrigeration 34(2011) 603 – 616.
- [8] Ulrich Legait, « Caractérisation et modélisation magnétothermique appliquée à la réfrigération magnétique » Doctorat Université de Grenoble, spécialité Génie Electrique, Février 2011.
- [9] U. Legait, F. Guillou, A. Kedous-Lebouc, V. Hardy, M. Almanza, « An experimental comparison of four magnetocaloric regenerators using three different materials », Int. J. Refrigeration 37(2014) 147 – 155.
- [10] Julien Roudaut, « Modélisation et conception de systèmes de réfrigération magnétique autour de la température ambiante », Doctorat Université de Grenoble, spécialité Génie Electrique, septembre 2011.