

Modélisation des transferts radiatifs dans des milieux poreux non Beeriens au voisinage des parois : application aux procédés de vaporeformage de méthane

Marie Zarrouati

▶ **To cite this version:**

Marie Zarrouati. Modélisation des transferts radiatifs dans des milieux poreux non Beeriens au voisinage des parois : application aux procédés de vaporeformage de méthane. Thermique [physics.class-ph]. Ecole Centrale Paris, 2015. Français. NNT : . tel-01345204

HAL Id: tel-01345204

https://centralesupelec.hal.science/tel-01345204

Submitted on 13 Jul 2016

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.

École Centrale Paris

THÈSE

présentée par

Marie Zarrouati

pour l'obtention du

GRADE de DOCTEUR

Formation doctorale : Énergétique

Laboratoire d'accueil : Laboratoire d'Énergétique Moléculaire et Macroscopique, Combustion (EM2C) du CNRS et de l'ECP

Modélisation des transferts radiatifs dans des milieux poreux non Beeriens au voisinage des parois : Application aux procédés de vaporeformage de méthane

Soutenue le 29 avri 2015

devant un jury composé de

Baillis	Dominique	Rapporteur
Carminati	Rémi	Rapporteur
Consalvi	Jean-Louis	Examinateur
Enguehard	Franck	Directeur de thèse
Taine	Jean	Directeur de thèse
Vignoles	Gérard	Examinateur
Cadalen	Sébastien	Invité

École Centrale des Arts et Manufactures
Grand Établissement sous tutelle
du Ministère de l'Éducation Nationale
Grande Voie des Vignes
92295 Châtenay-Malabry Cedex
Tél : 33 (1) 41 13 10 00
Télex : 634 991 F EC PARIS

Laboratoire d'Énergétique Moléculaire et Macroscopique, Combustion (E.M2.C.)
UPR 288, CNRS et École Centrale Paris
Tél : 33 (1) 41 13 10 31
Fax : 33 (1) 47 02 80 35

2015 - xx

- Jury - Jury - Jury - Jury - Jury - Jury -

Résumé

L'objectif industriel de cette thèse est de proposer un modèle de transfert radiatif dans un réacteur de reformage de méthane. Dans ce procédé, des gaz réactifs circulent dans le réacteur tubulaire rempli de pastilles catalytiques. L'empilement de pastilles constitue un milieu poreux où le rapport de la taille caractéristique des pores sur la dimension radiale du réacteur est grand (1/10 à 1/5). De plus, les très forts gradients de porosité dus à l'organisation des pastilles au voisinage des parois ont un impact important sur les transferts thermiques et en particulier les transferts radiatifs.
L'objectif scientifique est de développer et valider un modèle de transfert radiatif applicable à des milieux poreux fortement hétérogènes et anisotropes ne suivant pas la loi de Beer.
Dans un premier temps, les propriétés radiatives du milieu homogénéisé équivalent au milieu poreux réel sont complètement déterminées par la fonction de distribution cumulée d'extinction G_{ext}, la fonction de phase p et la porosité Π. Ces fonctions, précédemment introduites pour des milieux homogènes éventuellement anisotropes, sont calculées avec une grande précision par une méthode de Monte Carlo. Elles ont été généralisées ici à des milieux hétérogènes. Il a été montré à partir d'un nouveau critère de validité adapté aux milieux hétérogènes que le milieu homogénéisé équivalent ne suit pas la loi de Beer, en particulier au voisinage des parois.
De ce fait, l'équation de transfert radiatif généralisée (GRTE) doit prendre en compte l'émission par un milieu non Beerien fortement hétérogène même à la limite optiquement mince : un coefficient d'absorption n'y a pas de sens physique et des corrélations entre émission et transmission apparaissent dues au caractère non Beerien. Le principe de réciprocité et les propriétés des fonctions d'extinction G_{ext} ont permis d'exprimer rigoureusement les termes sources d'émission dans ce type de milieux fortement hétérogènes non Beeriens. Un facteur de corrélation émission-transmission a été introduit. La GRTE, sous forme intégrale, a été résolue par une méthode de transfert de Monte Carlo.
Le modèle complet a été appliqué après validation aux réacteurs de reformage de méthane de Air Liquide.

Abstract

The industrial goal of this work is to propose a radiative transfer model in a tubular reactor of steam methane reforming. During the reforming process, reactive gases are injected in the tubular reactor filled with catalytic pellets. The packed bed of pellets forms a porous medium, and a particular feature of it is that the characteristic pore size is large compared to the reactor inner dimension. In addition, the organization of the pellets in the near-wall region results in important porosity gradients which have a significant effect on the heat transfer, and more specifically on the radiative transfer.
The scientific goal is to develop and validate a radiative transfer model applicable to strongly nonhomogeneous, anisotropic and non Beerian porous media.

First, the radiative properties of the homogenised phase equivalent to the real porous medium are completely determined by the cumulated distribution function of extinction G_{ext}, the phase function p, and the local porosity Π . These functions, previously introduced for statistically homogeneous and anisotropic porous media, are calculated very accurately by a Monte Carlo method. They have been extended to statistically non-homogeneous porous media. Similarly, the expression of the validity criterion of the Beer law is extended to statistically anisotropic and non-homogeneous porous media : it is proven that for the considered porous media the Beer law is not valid in the homogenised phase, in particular in the vicinity of the walls.
As a result, the Generalized Radiative Transfer Equation (GRTE) is needed and the emission source terms must be determined in a strongly nonhomogeneous non Beerian even at the optically thin limit : an absorption coefficient doesn't have any physical meaning and correlations between emission and transmission appear due to the non-Beerian behavior.
The reciprocity principle and the properties of the extinction functions G_{ext} allow the emission source terms in this kind of strongly non-homogeneous and non-Beerian media to be accurately determined. A correlation factor emission-transmission has been introduced. The GRTE has been solved by a Monte Carlo method.
The complete model is applied, after validation, to the steam methane reformers in use by Air Liquide.

Table des matières

Résumé iii

Abstract v

Nomenclature xi

Introduction Générale 1

I État des lieux des modèles de transfert radiatif 9

1 De l'équation de Boltzmann aux équations de transfert radiatif 11
1.1 Introduction à l'équation de Boltzmann . . . 13
1.2 Modèle général de transfert radiatif : GRTE . . . 14
1.2.1 Postulats de base . . . 14
1.2.2 Expression du terme collisionnel . . . 15
1.2.3 Établissement de la GRTE . . . 18
1.3 De la GRTE à la RTE . . . 20
1.3.1 Cas d'un milieu Beerien . . . 20
1.3.2 Cas d'un milieu non Beerien optiquement épais . . . 22
1.3.3 Méthodes de calcul des grandeurs clés . . . 23
1.4 Loi de Fourier . . . 24
1.4.1 Passage à la loi de Fourier à partir de la RTE . . . 24
1.4.2 Critère de validité de la loi de Fourier . . . 26
1.5 Méthodes de résolution de la RTE . . . 26
1.5.1 Solutions analytiques . . . 27
1.5.2 Méthodes numériques . . . 28

II Approche statistique pour la caractérisation de milieux poreux 35

2 Méthodes de génération et de caractérisation des milieux poreux étudiés 37

2.1 Méthodes de génération des milieux poreux étudiés 38
2.1.1 Présentation de l'outil DigiPac 38
2.1.2 Empilements engendrés avec l'outil 40
2.1.3 Validation de l'outil 42
2.2 Méthode de Monte Carlo pour la caractérisation 45
2.2.1 Fonctions statistiques radiatives dans un milieu poreux . 45
2.2.2 Définition d'un volume élémentaire 46
2.2.3 Algorithme de Monte Carlo 48
2.2.4 Paramètres de calcul 50

3 Propriétés morphologiques et radiatives d'empilements de particules à fort gradient de porosité 55
3.1 Étude morphologique 57
3.1.1 Distribution des positions des particules 57
3.1.2 Profils de porosité 60
3.2 Propriétés radiatives 63
3.2.1 Propriétés radiatives théoriques loin des parois 63
3.2.2 Fonctions de distribution proche de la paroi 63
3.2.3 Relation de réciprocité de la transmittivité 68
3.2.4 Coefficients radiatifs 70
3.2.5 Critère de validité de la loi de Beer 74
3.2.6 Fonctions de phase 76

III Modèle de transfert radiatif applicable à des milieux non Beeriens statistiquement hétérogènes 79

Introduction 81

4 Radiative transfer model within strongly non homogeneous porous media : Application to a slab of packed particles 85
4.1 Introduction 87
4.2 Physical Model 89
4.2.1 Reciprocity property of the extinction cumulative distribution function 91
4.2.2 Correlated emission by a cell of a nonhomogeneous medium 91
4.2.3 Absorption and scattering 93
4.2.4 General scattering phase function 94
4.3 Implementation of the physical model for a slab 95
4.3.1 Emission correlated to transmission 96
4.3.2 Statistical approach of the transfer 96
4.3.3 Implementation of the phase function for a slab of a packed bed 98
4.3.4 Particular case of a Beerian homogeneous slab 98

4.4 Numerical Method for a slab of packed bed 99
4.4.1 Monte Carlo algorithm 99
4.4.2 Validation of the numerical approach 100
4.5 Application to a strongly non-homogeneous packed bed 102
4.5.1 Radiative power exchanged in non-homogeneous media . 102
4.5.2 Validation of temperature fields in purely absorbing non-homogeneous media in steady state 104
4.5.3 Scattering and absorbing non homogeneous packed beds 106
4.5.4 Limitations of the usual models 108
4.6 Conclusion 112

5 Radiative transport model for axi-symmetrical strongly non homogeneous micro-structured scattering media 113
5.1 Introduction 114
5.2 Considered axi-symmetrical packed bed 115
5.3 Radiative transfer model for non homogeneous media 117
5.3.1 Absorption and scattering 119
5.3.2 Phase function 119
5.3.3 Power exchanged and optical path 120
5.4 Numerical Approach 121
5.4.1 Monte Carlo algorithm 121
5.4.2 Balance Equation within a Reactive Medium 122
5.4.3 Validation of the numerical approach 123
5.5 Results and Discussion 124
5.6 Application du modèle au réacteur tubulaire de vapo-reformage 124

Conclusion 127

Conclusion Générale 129

A Détermination statistique des fonctions de phase et fonctions de distribution des angles de diffusion 133
A.1 Détermination de la fonction de phase par une approche statistique 133
A.2 Fonction de distribution des angles de diffusion 135

B Calcul du gradient de porosité 137

C Terme source d'émission : une autre approche 139

Références 146

Nomenclature

Caractères Latin :

A	Surface spécifique reportée au volume total
B	Coefficient d'extinction généralisé
$[\mathcal{C}]$	Terme collisionnel
D	Diamètre des particules
F	Fonction de distribution
f	Facteur de corrélation / fonction de distribution
G	Fonction de distribution cumulée
g	Facteur d'asymétrie, G pour un milieu Beerien
h	Constante de Planck
I°_ν	Luminance monochromatique à l'équilibre
k_B	Constante de Boltzmann
K	Coefficient d'absorption généralisé
N_C	Nombre de volumes élémentaires
$\mathcal{N}$	Nombre de réalisation pour la méthode de Monte Carlo
$\mathbf{n}$	Vecteur unitaire normal
n	Indice optique effectif
p	Fonction de phase
P	Puissance radiative (W)
R_{tube}	Diamètre du tube
$\mathbf{r}$	Coordonnée spatiale
s	Abscisse curviligne
S	Terme source
T	Température
$\mathbf{u}$	Direction de propagation
V	Volume
x, y, z	Coordonnées spatiales cartésiennes

Caractères Grecs :

α	Absorptivité surfacique des particules
β	Coefficient d'extinction volumique d'un milieu Beerien
δ	Résolution spatiale de la morphologie du milieu poreux

δ_{VE}	Taille des volumes élémentaires dans la direction des hétérogénéités
ε_{RDFI}	Critère de validité de la loi de Beer
ε	Emissivité des parois
κ	Coefficient d'absorption volumique d'un milieu Beerien
λ^F	Conductivité radiative
μ	Cosinus de l'angle θ
ν	Nombre d'onde
Π	Porosité locale
ρ	Réflectivité
σ	Coefficient de diffusion volumique d'un milieu Beerien ou écart type
Σ	Coefficient de diffusion généralisé ou partie de la surface S appartenant à la phase de propagation
Φ	Flux radiatif (W)
θ, φ	Angles pour les directions de propagation
τ	Transmittivité
ω	Albédo
Ω	Angle solide

Indices et exposants :

a	Absorbé
b	Sur les frontières
e	Émis
eff	Effectif
ext	Éteint
f	Phase fluide
inc	Incident
n	Normal
ot	Optiquement mince
r	Réfléchi
s	Phase solide
sc	Diffusé
w	Paroi
$*$	Avec la corrélation

Abréviations :

ECP	École Centrale Paris
EM2C	Énergétique, Macroscopique et Moléculaire, Combustion
ETL	Équilibre Thermodynamique Local
GRTE	Équation de Transfert Radiatif Généralisé
RDFI	Radiative Distribution Function Identification
RTE	Équation de Transfert Radiatif

SMR	Steam Methane Reactor

Introduction générale

Contexte de la thèse

Le dihydrogène est aujourd'hui utilisé dans de nombreuses applications comme dans l'industrie pétrochimique (raffineries de pétrole), l'industrie chimique (production d'ammoniac), mais aussi de plus en plus en tant que vecteur d'énergie. La demande en dihydrogène ne cessant de croître (notamment avec le développement des piles à combustibles) tout comme le coût de l'énergie, il est primordial de concevoir des procédés de synthèse de dihydrogène avec un très bon rendement énergétique permettant de fournir du dihydrogène en grande quantité et à un coût raisonnable.
Il existe de nombreuses méthodes de production de dihydrogène : soit à partir de la décomposition chimique des molécules d'eau par électrolyse ou par certaines bactéries photosynthétiques (les cyanobactéries), soit à partir d'hydrocarbures par oxydation partielle ou par vaporeformage. Cette dernière voie de synthèse est aujourd'hui la plus utilisée car la plus économique.
Le vaporeformage est un procédé de production de gaz de synthèse (appelé syngas) riche en dihydrogène à partir d'eau et de méthane. Il s'agit d'une réaction endothermique catalytique.
Cette réaction a lieu dans des réacteurs tubulaires situés dans une chambre de combustion, comme représenté sur la figure (1). Les brûleurs situés dans la chambre de combustion permettent de chauffer les tubes et d'apporter ainsi l'énergie nécessaire à la réaction. Les gaz réactifs qui circulent dans les tubes peuvent atteindre une température de $900°C$ pour une pression de 20 à 30 bars. Les tubes sont remplis de particules : ces particules sont recouvertes de matériau catalyseur (généralement du nickel) permettant la réaction chimique. La particularité du milieu poreux ainsi formé par l'empilement de particules est que la taille des particules est de l'ordre de un dixième à un cinquième du diamètre du tube. Par conséquent, la configuration du milieu sera fortement perturbée par la proximité de la paroi, les particules ayant tendance à s'ordonner à son contact. L'empilement de particules constitue un milieu poreux fortement hétérogène et anisotrope, au cœur duquel on ne peut définir de zone où l'influence des bords est négligeable.
La nécessité de modéliser les transferts thermiques dans ces réacteurs tubulaires est double. D'une part, une modélisation fine des phénomènes de transport de

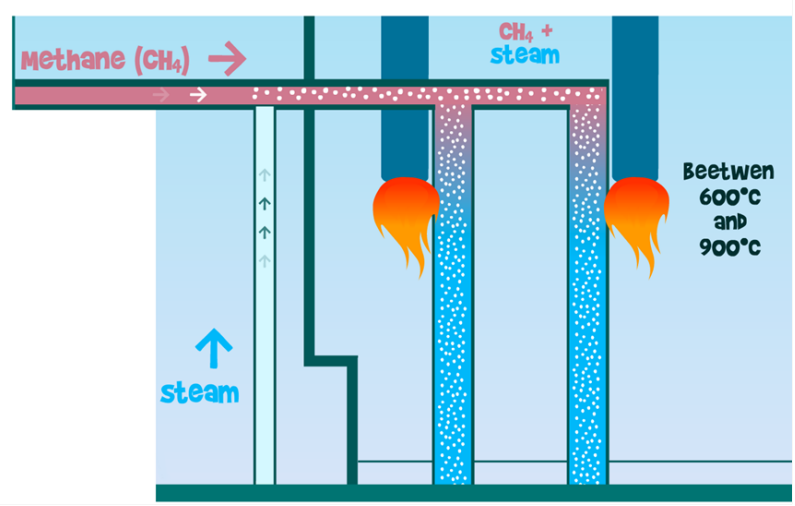


Figure 1 – *Schéma simplifié de la chambre de combustion d'une usine de vaporeformage de méthane.*

chaleur au sein du milieu poreux permettra de mieux comprendre comment optimiser le procédé, et donc de diminuer les coûts de production. D'autre part, la durée de vie des matériaux utilisés est liée aux températures d'exposition : la mesure de ces températures étant complexe, une prédiction fiable des champs de température dans la chambre de combustion et dans les réacteurs permettrait une meilleure maintenance des usines.
Il y a trois types de transfert thermique : le transfert conductif, le transfert convectif, et le transfert radiatif. Le premier mode de transfert est négligeable pour cette application, seuls les deuxième et troisième contribuent au transfert de chaleur vers l'intérieur des réacteurs. **L'objectif de cette thèse est donc d'établir un modèle de transfert radiatif au sein d'un réacteur tubulaire de vaporeformge de méthane.**

Modélisation du transfert radiatif en milieu poreux : étude bibliographique

La modélisation des transferts radiatifs au sein de milieux poreux n'est pas un domaine nouveau : des matériaux poreux sont utilisés dans de nombreux procédés industriels à hautes températures autres que le vaporeformage. Citons par exemple les cœurs de réacteurs nucléaires au cours d'un accident grave (Chahlafi 2011), des mousses, fibres, ou céramiques réticulées utilisées comme matériaux isolants ou dans des absorbeurs solaires (Petrasch, Wyss, and Steinfeld 2007), (Haussener, Lipinski, Petrasch, Wyss, and Steinfeld 2009), (Haussener, Lipinski, Wyss, and Steinfeld 2010), (Coquard, Rousseau, Echegut, Baillis, Gomart, and Iacona 2012).
Pour modéliser les transferts radiatifs, une première approche serait une approche discrète : les phénomènes physiques sont très bien connus à l'échelle des pores, il suffit donc de déterminer de façon exacte les transferts radiatifs à cette échelle. Cette approche peut être utilisée pour calculer des reflectances ou des transmittances lorsque le transfert radiatif est le seul mode de transfert (Rousseau, Michiel, Canizares, Meneses, Echegut, and Thovert 2007) (Rousseau, Canizares, Meneses, Matzen, Echegut, Michiel, and Thovert 2007). Dans des milieux poreux de grande taille et en présence de couplage avec d'autres phénomènes physiques, cette approche est irréaliste. Il est préférable de recourir à des approches continues.
Les approches continues sont basées sur le principe d'homogénéisation : le milieu poreux constitué de plusieurs phases discontinues est remplacé par une ou plusieurs phases continues équivalentes. La plupart des auteurs considèrent alors que les propriétés radiatives de la phase continue équivalente sont complètement décrites par un coefficient d'extinction β_ν, un albédo ω_ν et une fonction de phase p_ν, ce qui sous-entend que l'intensité du rayonnement dans la phase continue équivalente suit la loi de Beer (extinction exponentielle) : on parle alors de milieux Beeriens. Le transfert radiatif peut dans ces conditions être résolu par l'équation de transfert radiatif classique. Le problème consiste alors à caractériser les propriétés radiatives de la phase continue équivalente. Les approches de caractérisation des propriétés radiatives les plus courantes sont brièvement présentées dans les pages qui suivent.

Théorie de la diffusion indépendante

On remplace le milieu poreux réel par une dispersion dans l'espace de grains de matière représentatifs de la morphologie du milieu poreux réel : les grains de matière sont des éléments indépendants de géométrie connue. Dans le cas d'empilements, ces éléments sont directement les particules constituant l'empilement. Dans les autres cas, les éléments sont définis à partir de la morphologie du milieu.

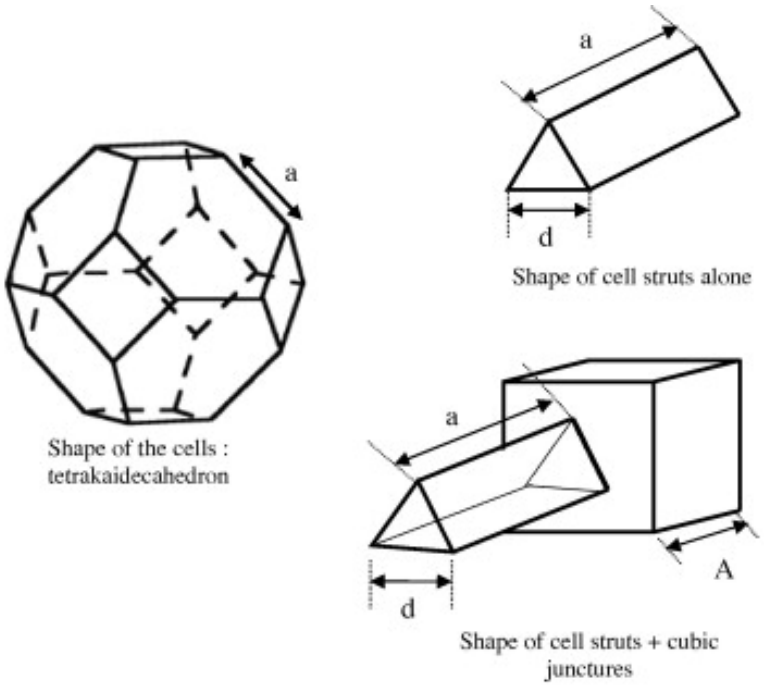


Figure 2 – *Illustration de la structure d'un pore dans une mousse, utilisée pour le calcul analytique des propriétés radiatives de la mousse en utilisant la théorie de la diffusion indépendante (Coquard, Rousseau, Echegut, Baillis, Gomart, and Iacona 2012).*

A titre d'exemple, Coquard et al. (Coquard, Rousseau, Echegut, Baillis, Gomart, and Iacona 2012), étudiant le transfert radiatif dans des mousses de Al-NiP, décrivent les pores par des poches dodécaédriques et la matière solide par une dispersion de bâtonnets de section triangulaire et de jonctions de forme cubique (figure (2)).
La théorie de diffusion indépendante suppose que les éléments constitutifs sont suffisamment éloignés les uns des autres pour qu'il n'y ait pas d'interférences entre le rayonnement incident sur un élément et le rayonnement diffusé par un autre élément voisin ou entre les rayonnements diffusés par deux éléments voisins. Chaque élément interagit avec le rayonnement sans être influencé par la présence des éléments voisins, donc de façon indépendante. Il suffit alors de dériver analytiquement les propriétés radiatives d'un élément unique et de sommer leurs effets par une technique adéquate pour en déduire les propriétés radiatives de l'ensemble du milieu poreux. Cette approche a été utilisée pour des mousses de morphologies diverses (Loretz, Coquard, Baillis, and Maire 2008), (Coquard, Baillis, and Randrianalisoa 2011).
Il y a deux limitations à cette approche : tout d'abord, la détermination des propriétés radiatives requiert une connaissance précise de la forme des pores et de la taille des éléments. Ces informations peuvent être déterminées à partir

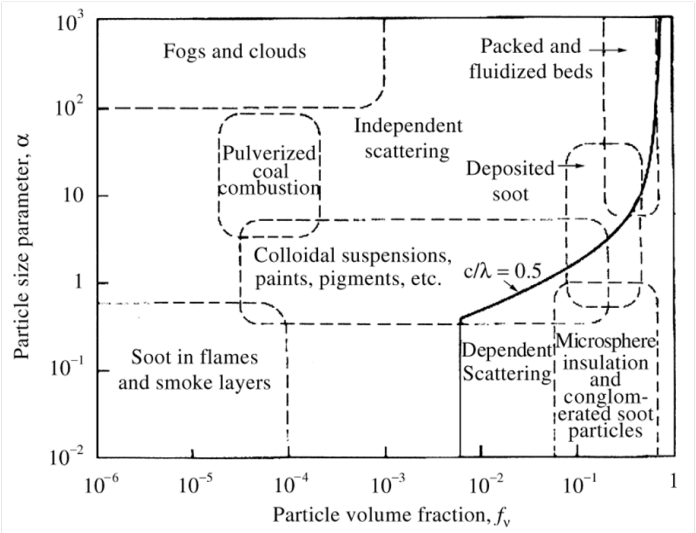


Figure 3 – *Diffusion indépendante ou dépendante en fonction du paramètre de taille des particules $\alpha = \pi D/\lambda$, avec D le diamètre des particules et λ la longueur d'onde du rayonnement, et de leur fraction volumique d'après (Tien and Drolen 1987) repris dans la référence (Baillis and Sacadura 2000).*

d'images tomographiques du milieu étudié, mais l'incertitude sur ces valeurs ne permet pas une détermination fiable des propriétés radiatives (Coquard, Rousseau, Echegut, Baillis, Gomart, and Iacona 2012).
Ensuite, l'hypothèse de diffusion indépendante n'est valable que si la distance moyenne entre les éléments c est grande devant la longueur d'onde du rayonnement λ. La carte de la figure (3), dressée par Tien et Drolen (Tien and Drolen 1987), délimite les cas où la théorie de la diffusion indépendante peut être appliquée (Baillis and Sacadura 2000). Elle concerne des milieux constitués de sphères toutes identiques (même matériaux, même rayon) dispersées de manière aléatoire dans un milieu transparent.
Kaviany et Singh ont ainsi montré que la théorie de diffusion indépendante n'était pas valable dans des empilements compacts de particules (Singh and Kaviany 1991). Ils ont donc introduit des facteurs correctifs, appelés "scaling coefficients", pour corriger les effets des diffusions multiples et de la conduction à l'intérieur des particules (Singh and Kaviany 1992) (Singh and Kaviany 1994). Ces coefficients ne sont cependant valables que dans le cas d'empilements de sphères. Pour des particules de forme arbitraire, cette approche est assez complexe.

Identification de paramètres

Une autre approche pour la détermination des propriétés radiatives d'un milieu considéré a priori comme Beerien est basée sur des méthodes d'identification de paramètres. Cela consiste à comparer les résultats d'un modèle de trans-

fert radiatif donné (par exemple l'équation de transfert radiatif résolue par la méthode des deux flux, ou par la méthode des ordonnées discrètes) avec des données de références. Les données de référence peuvent être :

- expérimentales : réflectivités ou transmittivités spectrales hémisphériques par exemple (Hendricks and Howell 1996) (Baillis, Arduini-Schuster, and Sacadura 2002) (Loretz, Coquard, Baillis, and Maire 2008) (Coquard, Rousseau, Echegut, Baillis, Gomart, and Iacona 2012) ;
- issues de simulations numériques (Argento and Bouvard 1996).

Les principales limites de cette approche sont : (i) On doit supposer un certain type de fonction de phase (fonction de phase isotrope ou plus couramment de type Henyey et Greenstein par exemple) ; (ii) La détermination des propriétés radiatives est dépendante du modèle de transfert radiatif choisi : (iii) L'incertitude expérimentale s'ajoute aux incertitudes liées aux techniques d'identification.

Tracés de rayons

Une dernière méthode de caractérisation des propriétés radiatives de milieux poreux repose sur des méthodes de tracé de rayons dans le milieu poreux réel. Cette approche statistique permet de déterminer les distributions des libres parcours des rayons dans le milieu. Diverses variantes existent.

Une première variante est celle proposée par Coquard : des rayons sont tirés à partir du centre d'une sphère virtuelle contenant le milieu poreux et peuvent être diffusés plusieurs fois avant de sortir de la sphère. La calcul du nombre de rayons sortants cette sphère permet de déterminer les coefficients radiatifs effectifs en supposant la loi de Beer valide, c'est-à-dire une atténuation exponentielle du rayonnement (Coquard and Baillis 2004).

Cette approche a aussi été utilisée pour calculer le libre parcours moyen d'extinction lpm_{ext} des rayons dans un empilement de sphères opaques dans un milieu semi-transparent. Le coefficient d'extinction est simplement donné par $1/lpm_{ext}$ (Randrianalisoa and Baillis 2010).

L'avantage de ces méthodes est de prendre en compte la morphologie réelle des milieux poreux. Cette dernière peut être connue soit par des images tomographiques soit par des algorithmes de génération de milieu poreux. Mais une grande force de cette méthode est de pouvoir prendre en compte le caractère non Beerien des milieux étudiés. En effet, toutes les méthodes présentées jusqu'ici supposent que la loi de Beer est valide dans la phase homogénéisée équivalente. Or bien que chaque phase constituant le milieu poreux ait un comportement Beerien, il peut ne pas en être de même pour la phase homogénéisée équivalente. Ainsi, la méthode de caractérisation proposée par Tancrez et Taine (Tancrez and Taine 2004) ne présuppose pas le caractère Beerien de la phase continue homogénéisée.

Des rayons sont tirés aléatoirement dans le milieu réel et la distance jusqu'au premier point d'extinction est déterminée. Les fonctions de distribution cumu-

lée des distances d'extinction sont ensuite déduites, et les paramètres effectifs du milieu homogénéisé sont déterminés par identification de ces fonctions de distribution radiatives à celles d'un milieu Beerien (Radiative Distribution Function Identification, RDFI) (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006a). Cette méthode a été appliquée pour la première fois sur des images tomographiques par Zeghondy et al (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006a), (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006b), puis par Petrash et al. (Petrasch, Wyss, and Steinfeld 2007) et Haussener (Haussener, Lipinski, Petrasch, Wyss, and Steinfeld 2009)(Haussener, Lipinski, Wyss, and Steinfeld 2010) (Haussener, Coray, Lipinski, Wyss, and Steinfeld 2010). Les fonctions de phase sont aussi déterminées de façon stochastique.
Par la suite, un critère de validité de la loi de Beer a été introduit par Zeghondy et al. pour des milieux statistiquement homogènes isotropes (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006a) puis pour des milieux statistiquement homogènes anisotropes (Chahlafi, Bellet, Fichot, and Taine 2012). Il a ainsi été montré que la loi de Beer n'est pas vérifiée dans le cœur de réacteurs nucléaires (Chahlafi, Bellet, Fichot, and Taine 2012), rendant impossible la détermination de propriétés radiatives effectives et la modélisation des transferts radiatifs par l'équation de transfert radiatif classique. Pour pallier à ce problème, une équation de transfert radiatif généralisée a été introduite pour des milieux statistiquement homogènes isotropes et anisotropes décrits par des fonctions de distribution radiatives (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010), (Taine and Iacona 2012).

Prise de moyenne volumique

Signalons finalement qu'une autre approche vise également à traiter le problème du transfert radiatif dans des milieux non Beeriens. Cette approche s'inspire de la méthode de prise de moyenne volumique appliquée à l'équation de transfert radiatif dans chacune des phases du milieu poreux (Consalvi, Porterie, and Loraud 2002) : les auteurs introduisent les notions de température et d'intensité locale moyenne, et développent une équation de transfert radiatif multiphasique. L'approche a ensuite été reprise par Lipinski et al. qui ont introduit des propriétés radiatives effectives de la phase continue équivalente. Ils ont ensuite appliqué le modèle à un milieu biphasique (Lipiński, Petrasch, and Haussener 2010), multiphasique (Lipiński, Keene, Haussener, and Petrasch 2010), puis à des empilements de particules et à un milieu réticulé (Petrasch, Haussener, and Lipiński 2011).
L'application de ce modèle requiert cependant une double condition sur les volumes de prise de moyenne V :
(1) Ils doivent être suffisamment grands pour contenir un grand nombre de particules ;
(2) Ils doivent être petits comparativement à la taille du système.

Présentation de la thèse

Il est très peu probable que la loi de Beer soit valide dans les réacteurs tubulaires de vaporeformage de méthane, où l'empilement de particules est fortement organisé. De plus, nous verrons que la porosité varie fortement au voisinage des parois, et son domaine de variation s'étend sur une distance non négligeable devant la taille totale du milieu considéré. Il n'est donc pas possible de définir des volumes élémentaires représentatifs à la fois grands devant l'hétérogénéité du milieu, et petits devant la taille totale du système.
La méthode d'homogénéisation choisie doit donc prendre en compte le caractère non Beerien et permettre une homogénéisation sur des volumes de très petite taille (plus petite même que la taille du pore) dans la direction du gradient de porosité afin de capturer correctement son effet sur les transferts radiatifs. Un autre défi est d'être en mesure de caractériser l'émission par des éléments de volume de cette taille. L'approche statistique est la plus indiquée pour répondre à ce problème.
Cette approche de caractérisation a d'abord été développée dans des milieux statistiquement homogènes, puis anisotropes. De plus, l'équation de transfert radiatif généralisée introduite pour des milieux non Beeriens n'avait encore jamais été appliquée dans le cas général mais seulement à la limite de milieu localement optiquement épais (Chahlafi, Bellet, Fichot, and Taine 2012).
Le champ de cette thèse peut donc être séparé en deux parties : d'une part, la généralisation des méthodes de caractérisation statistique des propriétés radiatives à des milieux poreux statistiquement hétérogènes ; d'autre part, l'application de l'équation de transfert radiatif généralisée dans ces milieux afin de déterminer les champs de température.
La première partie de ce manuscrit est une partie théorique posant les bases de différents modèles de transfert radiatif en gardant une approche statistique. Les hypothèses de chaque modèle sont explicitées, et une méthodologie est proposée. La deuxième partie sera consacrée à l'application des méthodes de caractérisation statistique à trois types de milieux poreux de représentativité croissante vis-à-vis des empilements de particules dans les réacteurs de vaporeformage. L'équation de transfert radiatif généralisée sera présentée dans la troisième partie, et appliquée dans cette même partie aux différents milieux poreux étudiés dans cette thèse. En particulier, l'épineux problème de l'émission à une échelle plus petite que celle du pore dans un milieu statistiquement hétérogène a été résolu dès lors que ce milieu présente au moins une dimension infinie.

Première partie

État des lieux des modèles de transfert radiatif

Chapitre 1

De l'équation de Boltzmann aux équations de transfert radiatif

Sommaire

1.1 Introduction à l'équation de Boltzmann 13
1.2 Modèle général de transfert radiatif : GRTE 14
1.2.1 Postulats de base 14
1.2.2 Expression du terme collisionnel 15
1.2.2.1 Fonctions statistiques radiatives 16
1.2.2.2 Extinction 16
1.2.2.3 Diffusion 17
1.2.2.4 Émission 17
1.2.3 Établissement de la GRTE 18
1.2.3.1 Relation entre luminance et fonction de distribution 18
1.2.3.2 Écriture de la GRTE 19
1.3 De la GRTE à la RTE 20
1.3.1 Cas d'un milieu Beerien 20
1.3.1.1 Loi de Beer 20
1.3.1.2 Établissement de le RTE 21
1.3.2 Cas d'un milieu non Beerien optiquement épais . . . 22
1.3.3 Méthodes de calcul des grandeurs clés 23
1.3.3.1 Estimation du coefficient d'extinction dans le cas d'un milieu Beerien 23
1.3.3.2 Critère de validité de la loi de Beer 24
1.4 Loi de Fourier 24
1.4.1 Passage à la loi de Fourier à partir de la RTE 24
1.4.1.1 Cas 1 : Milieux anisotropes 25
1.4.1.2 Cas 2 : Milieu isotrope et fonction de phase dépendant de l'angle de diffusion uniquement 26
1.4.2 Critère de validité de la loi de Fourier 26

1.5 Méthodes de résolution de la RTE 26
1.5.1 Solutions analytiques 27
1.5.1.1 Cas du mur plan 27
1.5.1.2 Cas du cylindre 28
1.5.2 Méthodes numériques 28
1.5.2.1 Méthodes différentielles 29
1.5.2.2 Méthodes intégrales 29
1.5.2.3 Méthodes statistiques : méthodes de Monte Carlo 30

Introduction

De nombreux modèles de transfert radiatif ont été développés jusqu'à aujourd'hui. Le modèle le plus utilisé est sans doute l'équation de transfert radiatif (RTE). Cette équation se démontre à partir de la très générale équation de Boltzmann introduite pour décrire l'évolution d'une densité de particules. La loi de Fourier est aussi souvent choisie pour modéliser les transferts radiatifs dans des milieux diffusant à de larges échelles : elle a l'avantage d'être simple d'utilisation, ce qui est très appréciable pour les résolutions numériques. Mais, dans des milieux où la loi de Beer n'est pas vérifiée, c'est-à-dire dans des milieux où l'intensité ne décroît pas de façon exponentielle avec l'épaisseur optique, il est nécessaire de proposer un nouveau modèle de transfert radiatif. L'équation de transfert radiatif généralisée (Generalized Radiative Transfer Equation, GRTE en anglais) a ainsi été introduite par Taine et al. (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010).

Le but de ce chapitre n'est pas de présenter tous les modèles existants, mais de poser les bases communes à ces quelques modèles principaux de transfert radiatif, et de comprendre dans quelles conditions chaque modèle peut être utilisé. L'équation de Boltzmann servira de référence. A partir de celle-ci et après avoir défini de façon statistique les propriétés radiatives d'un milieu quelconque, la GRTE sera présentée. On verra ensuite sous quelles conditions la GRTE dégénère en RTE, puis en loi de Fourier. Une méthodologie sera finalement proposée pour choisir quel modèle utiliser en fonction des caractéristiques du milieu étudié.

1.1 Introduction à l'équation de Boltzmann

Tout commence avec l'équation de Boltzmann. Au XIXème siècle, Boltzmann participe à l'élaboration d'un des fondements de la physique statistique en s'intéressant à la théorie cinétique des gaz. Il cherche en fait à élaborer une théorie permettant de représenter à l'échelle atomique le comportement de la matière afin d'expliquer les grandeurs mesurables à l'échelle macroscopique comme la pression, ou la chaleur.
Les gaz sont constitués de particules, qu'il modélise par des sphères dures. En mécanique classique, il faudrait une équation pour chaque particule, donc un très grand nombre d'équations pour décrire l'ensemble du système. Seule une résolution numérique du problème paraît envisageable. Il faut ajouter à cela le fait qu'il s'agit d'un système chaotique : la distance entre deux trajectoires ayant des conditions initiales aussi proches que possible va croitre de façon exponentielle. La résolution numérique est ainsi instable. Inutile donc de penser à adopter une approche déterministe !
Boltzmann traite le problème de façon statistique : il introduit une fonction de distribution monoparticulaire $f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ qui permet de décrire de façon proba-

biliste l'ensemble des particules. $f(\mathbf{r},\mathbf{v},t)\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\mathbf{v}$ représente alors le nombre de particules qui à un temps t sera dans le volume d$\mathbf{r}$ centré autour de $\mathbf{r}$ dans l'espace des positions et aura une vitesse dans d$\mathbf{v}$ centré autour de $\mathbf{v}$ dans l'espace des vitesses. Les propriétés des gaz seraient donc fonctions de $f(\mathbf{r},\mathbf{v},t)$.
Il s'agit ensuite de décrire l'évolution de $f(\mathbf{r},\mathbf{v},t)$. Boltzmann établit un bilan de conservation de ces particules dans le volume élémentaire de l'espace des phases d$\mathbf{r}$d$\mathbf{v}$:

$$\partial_t f + \mathbf{v}.\nabla_{\mathbf{r}} f + F_{ext}(\mathbf{r},t).\nabla_{\mathbf{v}} f = [\mathcal{C}] \tag{1.1}$$

Le terme $\partial_t f$ représente la variation de la densité de particules au cours du temps ; le terme $\mathbf{v}.\nabla_{\mathbf{r}} f$ décrit l'évolution de f découlant du déplacement des particules ; le terme $F_{ext}(\mathbf{r},t).\nabla_{\mathbf{v}} f$ décrit l'évolution de f résultant du changement de vitesse des particules soumises à des forces extérieures F_{ext} ; le terme $[\mathcal{C}]$ est appelé le terme collisionnel. Ce dernier terme nous intéresse plus particulièrement car il permet de décrire toutes les interactions sur les particules du système.
Les applications de cette équation peuvent être très variées en fonction du type de particule que l'on considère. Il peut s'agir par exemple de la théorie cinétique des gaz, ou de la mécanique des fluides si les particules sont des molécules ; de la neutronique si les particules sont des neutrons ; de la propagation des épidémies ou étude des comportement de colonies animales dans le cas où les particules sont des êtres vivants ; du transfert conductif si les particules sont des phonons ou des molécules ; du transfert radiatif lorsque les particules sont des photons. C'est ce dernier cas qui nous intéresse.

1.2 Modèle général de transfert radiatif : GRTE

1.2.1 Postulats de base

On parle de transfert radiatif pour décrire les échanges d'énergie entre le rayonnement électromagnétique et la matière. L'équation de Boltzmann peut s'appliquer pour décrire l'évolution de la densité de photons d'un champ de rayonnement au sein d'un milieu. A ce stade, plusieurs postulats vont être formulés :

1 Les photons sont des bosons en nombre indéterminé : il répondent donc à une des statistiques de Bose-Einstein. A l'équilibre thermodynamique à la température T, le nombre moyen de photons par état quantique est donné par :

$$N_\nu = \frac{1}{\exp(h\nu/k_B T) - 1} \tag{1.2}$$

avec k_B la constante de Boltzmann, et h la constante de Planck.

2 Si la longueur d'onde de De Broglie est petite devant la dimension caractéristique du milieu, l'approximation classique est vérifiée. En pratique, cela

sous-entend que le libre parcours moyen (ou la taille de l'enceinte) est supérieur à la longueur d'onde du rayonnement. On peut alors associer à chaque photon une quantité de mouvement et une position, et la fonction de distribution monoparticulaire prend tout son sens.

3 Les photons se déplacent à la célérité $c = c_0/n$ où c_0 est la célérité de la lumière dans le vide et n l'indice de réfraction. Leur déplacement est supposé quasi-instantané comparé aux autres temps caractéristiques mis en jeu.

4 Les propriétés du milieu sont stables dans le temps, seule varie la fonction de distribution f.

5 Aucune force extérieure ne s'exerce sur les photons et ils n'interagissent pas entre eux. Les seules interactions à considérer sont donc les interactions rayonnement / matière.

6 On néglige toutes corrélations entre les photons.

7 Les interactions sont supposées quasi-instantanées et quasi-ponctuelles, le terme de collision est alors une somme de terme source et puits S représentant le nombre de particules apparaissant ou disparaissant à la position $\mathbf{r}$ et à la quantité de mouvement $\mathbf{p} = \frac{h\nu}{c}\mathbf{u}$.

Dans ces conditions, on introduit la fonction de distribution monoparticulaire spectrale $f_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)$ où $\mathbf{u}$ est la direction de propagation des photons. $f_\nu \mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\mathbf{u}\mathrm{d}\nu$ est alors le nombre de photons présents à l'instant t dans le volume élémentaire $\mathrm{d}\mathbf{r}$ centré en $\mathbf{r}$, avec une direction de propagation dans l'angle solide $\mathrm{d}\mathbf{u}$ centré autour de $\mathbf{u}$, et avec une fréquence dans l'intervalle spectral $[\nu, \nu + \mathrm{d}\nu]$. La fonction f_ν vérifie l'équation de Boltzmann spectrale

$$\frac{1}{c}\frac{\partial f_\nu}{\partial t} + \mathbf{u}.\nabla_{\mathbf{r}} f_\nu = \frac{[\mathcal{C}_\nu]}{c} \tag{1.3}$$

Il reste donc à expliciter le terme collisionnel spectral $[\mathcal{C}_\nu]$.

1.2.2 Expression du terme collisionnel

Les interactions rayonnement / matière peuvent prendre plusieurs formes qui sont résumées dans le tableau suivant, sous l'hypothèse de diffusion élastique :

	Création de photons	Disparition de photons
Échange d'énergie avec la matière	Émission $\mathcal{N}^e$	Absorption $\mathcal{N}^a$
Pas d'échange d'énergie avec la matière	Diffusion entrante $\mathcal{N}^{d+}$	Diffusion sortante $\mathcal{N}^{d-}$

TABLE 1.1 – *Les 4 types d'interaction rayonnement / matière donnant lieu à 4 termes sources (nombre moyen de photons créés ou disparaissant par unité de volume, d'angle solide, et de temps, et par intervalle spectral).*

On introduit $\mathcal{N}_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)$ qui est homogène à une variation temporelle de la fonction de distribution monoparticulaire spectrale : $\mathcal{N}_\nu \mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\mathbf{u}\mathrm{d}\nu\mathrm{d}t$ est une variation

pendant dt du nombre de photons dans le volume élémentaire d$\mathbf{r}$ centré en $\mathbf{r}$, se propageant selon une direction de propagation dans l'angle solide d$\mathbf{u}$ centré autour de $\mathbf{u}$, et avec une fréquence dans l'intervalle spectral $[\nu, \nu + \mathrm{d}\nu]$.
Par définition, l'extinction correspond à tous les évènements de disparition de photons, soit $\mathcal{N}_\nu^{ext} = \mathcal{N}_\nu^a + \mathcal{N}_\nu^{d-}$. Le terme collisionnel spectral est donc :

$$[\mathcal{C}_\nu] = \mathcal{N}_\nu^e + \mathcal{N}_\nu^{d+} - \mathcal{N}_\nu^{ext} \tag{1.4}$$

où les termes sources $\mathcal{N}_\nu$ sont exprimés en fonction des propriétés radiatives de la phase de propagation.

1.2.2.1 Fonctions statistiques radiatives

Les propriétés radiatives d'un milieu quelconque sont décrites par les quatre fonctions statistiques suivantes (Tancrez and Taine 2004) :
(1) $G_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)$ est la fonction de distribution cumulée d'extinction. Elle représente la probabilité pour un photon créé dans l'espace des phases en $(\mathbf{r}, \mathbf{u}, \nu)$ d'être éteint avant d'avoir parcouru une distance s. Il faut bien noter que dans le cas général, cette probabilité dépend du point de création du photon et caractérise ainsi la trajectoire d'un photon de sa création à sa première extinction. $G_{ext,\nu}$ le complément à 1 de la transmitivité $\tau(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)$.
(2) $P_{a,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)$ et $P_{sc,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)$ sont respectivement les probabilités cumulées d'absorption, et de diffusion. Elles représentent la probabilité pour un photon créé dans l'espace des phases en $(\mathbf{r}, \mathbf{u}, \nu)$ d'être respectivement absorbé ou diffusé avant d'avoir parcouru une distance s.
(3) $p_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u_i}, \mathbf{u_r})$ est la fonction de phase. Elle représente la distribution des directions de diffusion $\mathbf{u_r}$ pour un photon incident selon $\mathbf{u_i}$ en $\mathbf{r}$, où $\mathbf{r}$ est cette fois le point de diffusion du photon.

1.2.2.2 Extinction

La probabilité pour un photon créé dans l'espace des phases en ($\mathbf{r}$, $\mathbf{u}, \nu$) d'être transmis puis éteint dans l'intervalle $[s, s + \mathrm{d}s]$ est par définition donnée par :

$$F_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)\mathrm{d}s = G_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s + \mathrm{d}s) - G_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s) \tag{1.5}$$

La trajectoire des photons incidents en $\mathbf{r}'$ avec une direction de propagation $\mathbf{u}$ est représentée sur la figure (1.1). On note s la distance entre le point de la trajectoire $M(\mathbf{r})$ et le point $M'(\mathbf{r}')$ considéré.
En chaque point $M(\mathbf{r})$ de la trajectoire, $\mathcal{N}_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u})$ est le nombre de photons créés par unité de volume, d'angle solide, de temps et par intervalle spectral, *i.e.* $\mathcal{N}_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}) = \mathcal{N}_\nu^{d+}(\mathbf{r}, \mathbf{u}) + \mathcal{N}_\nu^e(\mathbf{r}, \mathbf{u})$. Parmi ces photons, un nombre $\mathcal{N}_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u})F_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)\mathrm{d}s$ est éteint dans l'intervalle $[s, s + \mathrm{d}s]$.
De même, $\mathcal{M}_\nu(\mathbf{r_b}, \mathbf{u})$ est le nombre de photons quittant la paroi au point $M_b(\mathbf{r_b})$ dans la direction $\mathbf{u}$ par unité de surface, d'angle solide, de temps et par intervalle spectral.

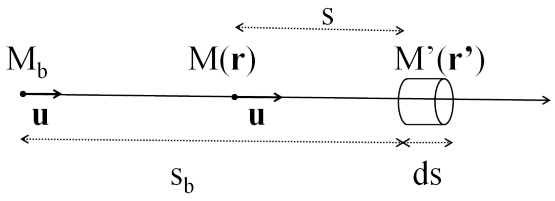


FIGURE 1.1 – *Coordonnées spatiales le long d'une trajectoire.*

Le nombre de photons éteints par élément de volume $\mathrm{d}\mathbf{r}'$, par angle solide $\mathrm{d}\Omega$, par intervalle spectrale et par unité de temps s'écrit alors simplement :

$$\mathcal{N}_\nu^{ext}(\mathbf{r}', \mathbf{u}) = \int_{s_b}^{0} \mathcal{N}_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}) F_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)\mathrm{d}s + \mathcal{M}_\nu(\mathbf{r_b}, \mathbf{u}) F_{ext,\nu}(\mathbf{r_b}, \mathbf{u}, s_b) \quad (1.6)$$

avec s_b la distance entre $M_b(\mathbf{r_b})$ et $M'(\mathbf{r}')$.

1.2.2.3 Diffusion

De même, la probabilité pour un photon créé dans l'espace des phases en ($\mathbf{r}$, $\mathbf{u_i}, \nu$) d'être transmis puis éteint par diffusion dans l'intervalle $[s, s + \mathrm{d}s]$ est par définition donnée par :

$$F_{sc,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u_i}, s)\mathrm{d}s = P_{sc,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u_i}, s + \mathrm{d}s) - P_{sc,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u_i}, s) \quad (1.7)$$

De plus, sachant qu'un photon incident en $\mathbf{r}'$ dans l'angle solide $\mathrm{d}\Omega_i$ centré autour de $\mathbf{u_i}$ est diffusé, sa probabilité d'être diffusé selon la direction $\mathbf{u_r}$ est donnée par $\frac{1}{4\pi} p(\mathbf{r}', \mathbf{u_i}, \mathbf{u_r})\mathrm{d}\Omega_i$.
Dans le cas où ces deux probabilités sont statistiquement indépendantes, le terme de diffusion entrante $\mathcal{N}_\nu^{d+}$ dans l'élément de volume $\mathrm{d}\mathbf{r}'$ pour la direction courante $\mathbf{u_r}$ s'écrit :

$$\mathcal{N}_\nu^{d+}(\mathbf{r}', \mathbf{u_r}) = \int_{s_b}^{0} \int_{4\pi} \mathcal{N}_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u_i}) F_{sc,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u_i}, s) \frac{p(\mathbf{r}', \mathbf{u_i}, \mathbf{u_r})}{4\pi} \mathrm{d}\Omega_i \mathrm{d}s \quad (1.8)$$

$$+ \int_{4\pi} \mathcal{M}_\nu(\mathbf{r_b}, \mathbf{u_i}) F_{sc,\nu}(\mathbf{r_b}, \mathbf{u_i}, s_b) \frac{p(\mathbf{r}', \mathbf{u_i}, \mathbf{u_r})}{4\pi} \mathrm{d}\Omega_i \quad (1.9)$$

1.2.2.4 Émission

Finalement, l'émission est due à des processus de désexcitation d'atomes composant la matière d'un état d'énergie haut (à cause de l'agitation thermique par exemple) vers un état plus bas en énergie. La différence d'énergie entre les deux états est alors émise sous forme de rayonnement électromagnétique. En toute rigueur, le terme d'émission dans un élément de volume $\mathrm{d}\mathbf{r}$ devrait donc être exprimé en fonction des distributions statistiques des populations des différents états d'énergie des atomes et molécules dans cet élément de volume. En pratique, trois points permettent d'exprimer plus simplement ce terme d'émission :

(1) Équilibre Thermodynamique Local (ETL) : pendant un instant $\mathrm{d}t$ et dans un élément de volume $\mathrm{d}V$, le système matériel est infiniment proche d'un état d'équilibre tangent, caractérisé par un ensemble de grandeurs physiques intensives et extensives (Taine, Enguehard, and Iacona 2014). On peut alors définir une température T dans le volume $\mathrm{d}V$ et les distributions des populations sur les différents états d'énergie suivent alors une statistique de Bose.

(2) L'énergie du champ de rayonnement est caractérisée par la luminance : elle représente le flux surfacique d'énergie du rayonnement par intervalle spectral et par angle solide à un instant t et au point considéré. Dans un système à l'équilibre thermodynamique parfait (ETP) d'indice optique isotrope, la luminance est alors isotrope et dépend uniquement de la température. Elle est donnée par la loi de Planck :

$$I^{\circ}_{\nu}(T) = \frac{2h\nu^3}{c^2\left(\exp(\frac{h\nu}{k_B T}) - 1\right)} \tag{1.10}$$

où h et k_B sont respectivement les constantes de Planck et Boltzmann et $c = \frac{c_0}{n}$.

(3) D'après la loi de Kirchhoff, la puissance émise par un élément de corps opaque à l'équilibre avec son environnement à la température T est égale à la puissance absorbée par cet élément.

Par conséquent, à l'ETL on peut définir dans tous les éléments de volume une température locale T. A cette température, la puissance émise par $\mathrm{d}V$ est exprimée en fonction de la puissance absorbée par ce même $\mathrm{d}V$ si il était à l'équilibre thermique parfait avec son environnement à la même température T, et donc s'il régnait autour de lui la luminance d'équilibre $n^2 I^{\circ}_{\nu}(T)$. Le détail des termes source d'émission n'est pas explicité ici, mais le sera dans la troisième partie.

1.2.3 Établissement de la GRTE

1.2.3.1 Relation entre luminance et fonction de distribution

Le rayonnement est généralement décrit par une grandeur énergétique, la luminance L_ν plutôt que par la fonction de distribution monoparticulaire spectrale f_ν. Une relation simple permet d'exprimer la luminance L_ν en fonction de la fonction de distribution f_ν.

Pour $(\mathbf{r}, \mathbf{u}, \nu)$ donnés, la quantité d'énergie traversant la surface $\mathrm{d}S$ de normale $\mathbf{n}$ pendant $\mathrm{d}t$ dans l'angle solide $\mathrm{d}\mathbf{u}$ autour de $\mathbf{u}$ et dans l'intervalle spectrale $[\nu, \nu + \mathrm{d}\nu]$ est donnée par :

$$\delta Q = L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)\,(\mathbf{n}.\mathbf{u})\,\mathrm{d}t\mathrm{d}S\mathrm{d}\mathbf{u}\mathrm{d}\nu \tag{1.11}$$

D'autre part, δQ est aussi égal au nombre de photons traversant cette même

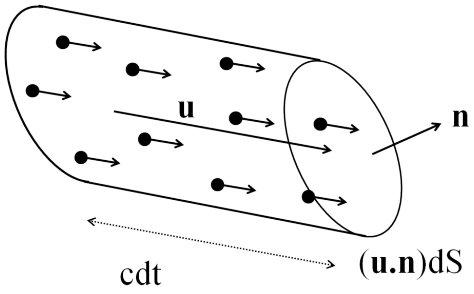


FIGURE 1.2 – *Le nombre de photons traversant* $\mathrm{d}S$ *de normale* $\mathbf{n}$ *pendant* $\mathrm{d}t$ *dans la direction* $\mathbf{u}$ *est le nombre de photons de l'espace des phases* $\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\mathbf{u}$ *avec* $\mathrm{d}\mathbf{r} = c\mathrm{d}t\,(\mathbf{n}.\mathbf{u})\,\mathrm{d}S$.

surface $\mathrm{d}S$ (voir figure 1.2) multiplié par l'énergie de chaque photon $h\nu$. Finalement :

$$\delta Q = f_\nu(\mathbf{r},\mathbf{u},t)c\mathrm{d}t\,(\mathbf{n}.\mathbf{u})\,\mathrm{d}S\mathrm{d}\mathbf{u}h\nu\mathrm{d}\nu \tag{1.12}$$

La luminance s'exprime donc en fonction de la fonction de distribution f :

$$L_\nu(\mathbf{r},\mathbf{u},t) = h\nu c f_\nu(\mathbf{r},\mathbf{u},t) \tag{1.13}$$

1.2.3.2 Écriture de la GRTE

Le terme collisionnel $[\mathcal{C}_\nu]$ a été exprimé comme une variation du nombre de photons par unité d'angle solide, de volume, de temps et par intervalle spectral en fonction de la variation du nombre de photons par extinction $\mathcal{N}_\nu^{ext}$, par diffusion entrante $\mathcal{N}_\nu^{d+}$ et par émission $\mathcal{N}_\nu^{e}$. On a $S_\nu^i = h\nu\mathcal{N}_\nu^i$ avec $i = ext$, $d+$, ou e et $L_\nu^p(\mathbf{r_b},\mathbf{u}) = h\nu\mathcal{M}_\nu(\mathbf{r_b},\mathbf{u})$ la luminance quittant la paroi de l'enceinte en $M_b(\mathbf{r_b})$ dans la direction $\mathbf{u}$.
En multipliant l'équation (1.3) par $h\nu c$, on obtient l'équation de transfert radiatif généralisée (GRTE) :

$$\frac{1}{c}\frac{\partial L_\nu(\mathbf{r}',\mathbf{u},t)}{\partial t} + \mathbf{u}.\nabla_r L_\nu(\mathbf{r}',\mathbf{u},t) = \tag{1.14a}$$

$$+ \quad S_\nu^e(\mathbf{r}',\mathbf{u}) \tag{1.14b}$$

$$- \quad \int_{s_b}^{0} S_\nu(\mathbf{r},\mathbf{u})F_{ext,\nu}(\mathbf{r},\mathbf{u},s)\mathrm{d}s \tag{1.14c}$$

$$- \quad L_\nu^p(\mathbf{r_b},\mathbf{u})F_{ext,\nu}(\mathbf{r_b},\mathbf{u},s_b) \tag{1.14d}$$

$$+ \quad \int_{s_b}^{0}\int_{4\pi} S_\nu(\mathbf{r},\mathbf{u_i})F_{sc,\nu}(\mathbf{r},\mathbf{u_i},s)\frac{p(\mathbf{r}',\mathbf{u_i},\mathbf{u})}{4\pi}\mathrm{d}\Omega_i\mathrm{d}s \tag{1.14e}$$

$$+ \quad \int_{4\pi} L_\nu^p(\mathbf{r_b},\mathbf{u_i})F_{sc,\nu}(\mathbf{r_b},\mathbf{u_i},s_b)\frac{p(\mathbf{r}',\mathbf{u_i},\mathbf{u})}{4\pi}\mathrm{d}\Omega_i \tag{1.14f}$$

Les deux termes (1.14d) et (1.14f) permettent de prendre en compte le rayonnement en provenance des frontières du domaine. Cette équation permet donc

de décrire de façon très générale le transfert radiatif au sein d'un milieu quelconque.
Un bilan sur une direction de propagation en régime stationnaire permet aussi de montrer que

$$L_\nu(\mathbf{r}', \mathbf{u}, t) = \int_{s_b}^{0} S_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}) \left(1 - G_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)\right) \mathrm{d}s \tag{1.15a}$$

$$+ \quad L_\nu^p(\mathbf{r_b}, \mathbf{u}) \left(1 - G_{ext,\nu}(\mathbf{r_b}, \mathbf{u}, s_b)\right) \tag{1.15b}$$

Cette équation correspond à la GRTE sous forme intégrale.

1.3 De la GRTE à la RTE

1.3.1 Cas d'un milieu Beerien

1.3.1.1 Loi de Beer

La transmitivité $\tau(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s) = 1 - G_{ext}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)$ est la probabilité qu'un photon créé en $\mathbf{r}$ se déplaçant dans la direction $\mathbf{u}$ parcoure une distance supérieure à s sans interaction, *i.e.* sans extinction.
Considérons 3 points $M_1(\mathbf{r_1})$, $M_2(\mathbf{r_2})$ et $M_3(\mathbf{r_3})$ sur la même trajectoire ; s_1 est la distance (M_1M_2) et s_2 la distance (M_2M_3). La probabilité que le photon soit transmis de M_1 à M_3 peut s'écrire :

$$\tau(\mathbf{r_1}, \mathbf{u}, s_1 + s_2) = \tau(\mathbf{r_1}, \mathbf{u}, s_1)\tau(s_2|\mathbf{r_1}, \mathbf{u}, s_1) \tag{1.16}$$

$\tau(s_2|\mathbf{r_1}, \mathbf{u}, s_1)$ est ici la probabilité conditionnelle que le photon soit transmis sur une distance s_2 sachant qu'il a parcouru la distance s_1 dans la direction $\mathbf{u}$ depuis $\mathbf{r_1}$.
Supposons maintenant que les lieux d'interaction sont distribués spatialement de façon indépendante ; la probabilité d'interaction entre M_1 et M_2 est complètement indépendante de la probabilité d'interaction entre M_2 et M_3. Autrement dit, il n'y a alors aucune corrélation statistique entre ce qui se passe à partir de M_2 et ce qui est arrivé au photon avant M_2, c'est une absence de mémoire. La probabilité $\tau(s_2|\mathbf{r_1}, \mathbf{u}, s_1)$ s'écrit donc simplement $\tau(\mathbf{r_2}, \mathbf{u}, s_2)$.
La transmitivité vérifie alors les propriétés suivantes :
(1) $\tau(\mathbf{r_1}, \mathbf{u}, s_1 + s_2) = \tau(\mathbf{r_1}, \mathbf{u}, s_1)\tau(\mathbf{r_2}, \mathbf{u}, s_2)$
(2) $\tau(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s) < 1$
(3) $\tau(\mathbf{r}, \mathbf{u}, 0) = 1$
ce qui impose une transmitivité de forme exponentielle.
Revenons au terme de l'équation (1.5), $F_{ext}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)\mathrm{d}s$, qui est la probabilité de transmission puis extinction d'un photon $(\mathbf{r}, \mathbf{u})$ dans l'intervalle $[s, s + \mathrm{d}s]$. En absence de mémoire, cette probabilité s'écrit comme le produit de :
- la transmitivité entre $M(\mathbf{r})$ et $M'(\mathbf{r}')$: $1 - G_{ext}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)$ avec $s = (MM')$
- la probabilité d'extinction par la tranche en $\mathbf{r}'$ d'épaisseur $\mathrm{d}s$ que l'on note $\beta(\mathbf{r}', \mathbf{u})\mathrm{d}s$.

On définit ainsi un coefficient d'extinction $\beta(\mathbf{r}', \mathbf{u})$. Ce coefficient est local et donc complètement indépendant de la provenance du photon.
Le coefficient d'extinction est donc donné par :

$$\beta(\mathbf{r}', \mathbf{u}) = \frac{1}{1 - G_{ext}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)} \frac{\mathrm{d}G_{ext}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)}{\mathrm{d}s} \tag{1.17}$$

pour tout s tel que s soit la distance entre les points $M(\mathbf{r})$ et $M'(\mathbf{r}')$.
Plus simplement, il s'exprime à la limite optiquement mince par :

$$\beta(\mathbf{r}', \mathbf{u}) = \left(\frac{\mathrm{d}G_{ext}(\mathbf{r}', \mathbf{u}, s)}{\mathrm{d}s} \right)_{s \to 0} \tag{1.18}$$

La transmitivité s'écrit finalement :

$$\tau(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s) = \exp\left(- \int_0^s \beta(\mathbf{r}', \mathbf{u}) \mathrm{d}s' \right) \tag{1.19}$$

Cette hypothèse d'indépendance statistique des lieux d'interaction correspond à la loi de Beer. Par la suite, on définit de la même manière :
– Un coefficient d'absorption $\kappa_\nu = (1 - \omega_\nu)\beta_\nu$
– Un coefficient de diffusion $\sigma_\nu = \omega_\nu \beta_\nu$
ω_ν étant appelé l'albédo et étant défini par $\omega_\nu = \sigma_\nu / \kappa_\nu$.

1.3.1.2 Établissement de le RTE

On note $f_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)$ et $g_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)$ les fonctions de distribution $F_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)$ et $G_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)$ dans un milieu où la loi de Beer est vérifiée. La loi de Beer implique :

$$f_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s) = \beta_\nu(\mathbf{r}', \mathbf{u}) \left(1 - g_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)\right) \tag{1.20a}$$

$$f_{sc,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s) = \sigma_\nu(\mathbf{r}', \mathbf{u}) \left(1 - g_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)\right) \tag{1.20b}$$

avec s la distance entre les points $M(\mathbf{r})$ et $M'(\mathbf{r}')$.
En utilisant ces simplifications, l'équation (1.15) devient :

$$\begin{aligned} L_\nu(\mathbf{r}', \mathbf{u}, t) &= \int_{s_b}^0 S_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}) \left(1 - g_{ext,\nu}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)\right) \mathrm{d}s \\ &+ L_\nu^p(\mathbf{r_b}, \mathbf{u}) \left(1 - g_{ext,\nu}(\mathbf{r_b}, \mathbf{u}, s_b)\right) \end{aligned} \tag{1.21}$$

et l'équation (1.14) s'écrit donc :

$$\frac{1}{c} \frac{\partial L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)}{\partial t} + \mathbf{u}.\nabla_r L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) = \tag{1.22a}$$

$$+ S_\nu^e(\mathbf{r}, \mathbf{u}) \tag{1.22b}$$

$$- \beta(\mathbf{r}, \mathbf{u}) L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) \tag{1.22c}$$

$$+ \int_{4\pi} \sigma(\mathbf{r}, \mathbf{u_1}) L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u_1}, t) \frac{p(\mathbf{r}, \mathbf{u_1}, \mathbf{u})}{4\pi} \mathrm{d}\Omega_1 \tag{1.22d}$$

1.3.2 Cas d'un milieu non Beerien optiquement épais

Dans le cas où le milieu est non Beerien, la GRTE peut dégénérer en RTE si le milieu est homogène et optiquement épais. En effet, $G_{ext}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s_b) \simeq 1$ et le terme source venant des frontières n'intervient donc plus. La GRTE sous forme intégrale s'écrit donc en régime stationnaire :

$$L_\nu(\mathbf{r}', \mathbf{u}) = \int_{s_b}^{0} S_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}) \left(1 - G_{ext}(\mathbf{u}, s)\right) \mathrm{d}s \tag{1.23}$$

Dans ce type de milieu, on introduit un indice effectif n_ν, de sorte qu'à l'équilibre thermique, l'extinction par diffusion est compensée par le terme source de diffusion (Bellet, Chalopin, Fichot, Iacona, and Taine 2009). Le milieu est optiquement épais à l'échelle de variation de température (plus précisément à un ordre zéro de perturbation (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010)) ; aussi localement l'intensité d'équilibre est spatialement uniforme dans le milieu : $L_\nu(\mathbf{u}) = n_\nu^2 I_\nu^\circ(T)$. Les variations de température apparaissent alors à une grande échelle spatiale.
Par conséquent, à l'équilibre thermique, le terme source $S_\nu(\mathbf{u})$ s'écrit :

$$S_\nu(\mathbf{u}) = B_\nu(\mathbf{u}) n_\nu^2 I_\nu^\circ(T) \tag{1.24}$$

avec le coefficient d'extinction généralisé à l'équilibre défini par :

$$B_\nu(\mathbf{u}) = \left(\int_{s_b}^{0} \left(1 - G_{ext}(\mathbf{u}, s)\right) \mathrm{d}s \right)^{-1} \tag{1.25}$$

On peut de même définir des coefficients d'absorption et de diffusion généralisés à l'équilibre par (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010)

$$\Sigma_\nu(\mathbf{u}) = P_{sc}(\mathbf{u}, \infty) B_\nu(\mathbf{u}) \tag{1.26}$$

$$K_\nu(\mathbf{u}) = P_a(\mathbf{u}, \infty) B_\nu(\mathbf{u}) \tag{1.27}$$

On montre alors (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010) qu'en régime stationnaire la GRTE pour un milieu non Beerien a priori anisotrope homogène optiquement épais dégénère en une RTE classique :

$$\mathbf{u}.\nabla_r L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}) = + S_\nu^e(\mathbf{r}, \mathbf{u}) \tag{1.28a}$$

$$- B(\mathbf{u}) L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u}) \tag{1.28b}$$

$$+ \int_{4\pi} \Sigma(\mathbf{u_i}) L_\nu(\mathbf{r}, \mathbf{u_i}) \frac{p(\mathbf{r}, \mathbf{u_i}, \mathbf{u})}{4\pi} \mathrm{d}\Omega_i \tag{1.28c}$$

Cette approche est toutefois limitée à des milieux homogènes optiquement épais, et ne peut donc pas être utilisée au voisinage des parois.

Remarque : la démonstration de la dégénérescence de la GRTE en RTE dans des milieux non Beeriens anisotropes mais statistiquement homogènes optiquement épais est proposée par Taine et al. (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010) dans un milieu multiphasique et permet de déterminer la luminance dans une phase de propagation. Dans la démonstration originelle, la luminance dans cette phase est donc pondérée par la probabilité de de présence de la phase Π.

1.3.3 Méthodes de calcul des grandeurs clés

1.3.3.1 Estimation du coefficient d'extinction dans le cas d'un milieu Beerien

Si le milieu est Beerien, plusieurs méthodes peuvent être utilisées pour déterminer le coefficient d'extinction à partir des fonctions de distribution cumulées d'extinction, et toutes ces méthodes sont équivalentes :

(1) Le coefficient d'extinction a été tout d'abord introduit par

$$\beta(\mathbf{r}',\mathbf{u}) = \frac{1}{1-G_{ext}(\mathbf{r},\mathbf{u},s)}\frac{\mathrm{d}G_{ext}(\mathbf{r},\mathbf{u},s)}{\mathrm{d}s} \tag{1.29}$$

où $\beta(\mathbf{r}',\mathbf{u}')$ est indépendant du point $M(\mathbf{r})$ choisi pour le calcul (c'est une conséquence de la loi de Beer) et s la distance entre $M(\mathbf{r})$ et $M'(\mathbf{r}')$.

(2) Le choix du point $M(\mathbf{r})$ étant arbitraire, ce calcul peut être fait en $M(\mathbf{r}) = M'(\mathbf{r}')$, soit à la limite optiquement mince :

$$\beta(\mathbf{r}',\mathbf{u}) = \left(\frac{\mathrm{d}G_{ext}(\mathbf{r}',\mathbf{u},s)}{\mathrm{d}s}\right)_{s\to 0} \tag{1.30}$$

(3) Le coefficient d'extinction généralisé présenté précédemment conduit exactement à l'estimation du coefficient d'extinction mais seulement dans le cas où le milieu est homogène.

$$\beta(\mathbf{u}) = \left(\int_{s_b}^{0}(1-G_{ext}(\mathbf{u},s))\,\mathrm{d}s\right)^{-1} \tag{1.31}$$

(4) Enfin, la méthode RDFI (Radiative Distribution Function Identification) proposée dans les références (Tancrez and Taine 2004) (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006a) (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006b) peut être utilisée dans le cas d'un milieu homogène. Pour un milieu homogène Beerien, la transmitivité est de forme exponentielle, et la fonction de distribution cumulée d'extinction, qui est le complément à 1 de la transmitivité, est donc de la forme :

$$g_{ext}(\mathbf{u},s) = 1-\exp\left(-\beta(\mathbf{u})s\right) \tag{1.32}$$

La méthode RDFI consiste donc à identifier les fonctions de distribution réelles avec celles exponentielles d'un milieu équivalent homogène Beerien.

Le coefficient d'extinction est alors simplement déterminé par une régression linéaire de la courbe $s \to \ln(1 - g_{ext}(\mathbf{u}, s))$.

Toutes ces méthodes sont strictement équivalentes uniquement dans le cas où le milieu est Beerien (les deux dernières ne pouvant être utilisées que dans le cas de milieux homogènes). En revanche, dans le cas où le milieu n'est pas Beerien, $\beta(\mathbf{r}, \mathbf{u})$ n'a pas de sens physique, et ces méthodes peuvent mener à des résultats différents.

Dans le cas de milieux homogènes a priori non optiquement minces ni épais, la quatrième méthode est préférable car elle permet de minimiser l'erreur sur l'estimation de $\beta(\mathbf{u})$. Dans le cas de milieux hétérogènes, la deuxième méthode permet une estimation objective, qui peut avoir un sens physique à la limite optiquement mince.

1.3.3.2 Critère de validité de la loi de Beer

On ne connaît pas a priori le caractère Beerien ou non du milieu. Afin de déterminer la validité de la loi de Beer, il est nécessaire d'estimer au préalable un coefficient $\beta(\mathbf{r}, \mathbf{u})$ par une des méthodes précédemment présentées. La fonction de distribution cumulée d'extinction Beerienne $g_{ext}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s)$ est alors calculée par :

$$g_{ext}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s) = 1 - \exp\left(-\int_0^s \beta(\mathbf{r}', \mathbf{u}) \mathrm{d}s'\right) \tag{1.33}$$

Pour déterminer si le milieu est Beerien, un critère permettant de calculer l'écart relatif entre des fonctions de distribution réelles et celles d'un milieu Beerien a été introduit par Tancrez et Taine (Tancrez and Taine 2004) pour des milieux poreux statistiquement isotropes et par Zeghondy *et al.* (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006a) (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006b) pour des milieux poreux statistiquement anisotropes. Ce critère s'écrit dans le cas général :

$$\varepsilon_{RDFI}(\mathbf{r}, \mathbf{u}) = \frac{\sum_{i=0}^{N_s} \left[G_{ext}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s_i) - g_{ext}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s_i)\right]^2}{\sum_{i=0}^{N_s} \left[G_{ext}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, s_i)\right]^2} \tag{1.34}$$

On considère pragmatiquement que la loi de Beer est valide, et que par conséquent le milieu est Beerien pour $\varepsilon_{RDFI} < 4.10^{-2}$. Le coefficient d'extinction déterminé par la méthode RDFI dans le cas d'un milieu homogène ou à la limite optiquement mince dans le cas d'un milieu hétérogène représente alors le coefficient d'extinction réel de la phase ainsi caractérisée. La RTE peut alors être résolue pour le calcul des champs de luminances.

1.4 Loi de Fourier

1.4.1 Passage à la loi de Fourier à partir de la RTE

On suppose maintenant que le milieu est **Beerien optiquement épais**, ou **non Beerien homogène optiquement épais** (isotrope ou anisotrope). Dans

les deux cas, le transfert radiatif est décrit par l'équation de transfert radiatif où les coefficients notés B, Σ et K sont :
- les coefficients d'extinction, de diffusion et d'absorption dans le cas d'un milieu Beerien optiquement épais, déterminés par l'une des méthodes présentées dans le paragraphe 1.3.3.1 ;
- les coefficients généralisés d'extinction, de diffusion et d'absorption dans le cas d'un milieu non Beerien homogène optiquement épais, déterminés par l'équation (1.25), (1.26), et (1.27).

On définit une échelle spatiale δ, telle qu'à cette échelle le nombre de Knudsen Kn soit petit devant 1 :

$$Kn = \frac{1}{B\delta} << 1 \tag{1.35}$$

Cela signifie que le libre parcours moyen d'extinction des photons est très petit devant l'échelle caractéristique δ. Après adimensionnement de la RTE en y introduisant Kn, le flux radiatif est exprimé en utilisant la technique des perturbations (Bellet, Chalopin, Fichot, Iacona, and Taine 2009). Deux cas se présentent : le cas du milieu anisotrope, et le cas du milieu isotrope.

1.4.1.1 Cas 1 : Milieux anisotropes

A l'ordre 1, on démontre que le flux radiatif a pour expression

$$q_i^R = -k_{ij}(\mathbf{x})\frac{\partial T}{\partial x_j} \tag{1.36}$$

expression dans laquelle le tenseur de conductivité radiative $k_{ij}(x)$ vaut

$$k_{ij}(\mathbf{x}) = \int_0^\infty \frac{dI_\nu^\circ}{dT}[T(\mathbf{x})]\left(\int_{4\pi} u_i(\mathbf{u})D_{\nu j}(\mathbf{u})d\Omega\right)d\nu \tag{1.37}$$

avec :

$$D_{\nu j}(\mathbf{u}) = \sum_{k=0}^{\infty} L_\nu^k\left[A_{\nu j}\right](\mathbf{u}) \tag{1.38}$$

$$A_{\nu j}(\mathbf{u}) = \frac{u_j(\mathbf{u})n_\nu^2(\mathbf{u})}{B_\nu(\mathbf{u})} \tag{1.39}$$

et l'opérateur L_ν^k est l'opérateur L_ν appliqué k fois avec

$$L_\nu\left[X\right](\mathbf{u}) = \frac{1}{4\pi B_\nu(\mathbf{u})}\int_{4\pi}\Sigma_\nu(\mathbf{u}')p(\mathbf{u}',\mathbf{u})X(\mathbf{u}')\mathrm{d}\Omega' \tag{1.40}$$

1.4.1.2 Cas 2 : Milieu isotrope et fonction de phase dépendant de l'angle de diffusion uniquement

Dans ces conditions, le tenseur k_{ij} introduit ci-dessus devient isotrope :

$$q_i^R = -k^R \frac{\partial T}{\partial x_i} \tag{1.41}$$

et l'expression de la conductivité radiative se simplifie en :

$$k^R = \frac{4\pi}{3} \int_0^\infty \frac{dI_\nu^\circ}{dT} \frac{1}{K_\nu + \Sigma_\nu(1-g_\nu)} d\nu \tag{1.42}$$

où g_ν est le facteur d'asymétrie de la diffusion défini par

$$g_\nu = \frac{1}{2} \int_{-1}^{1} p_\nu(\mu_{sc}) \mu_{sc} d\mu_{sc} \tag{1.43}$$

avec $\mu_{sc} = \mathbf{u_i}.\mathbf{u_r}$, le cosinus de l'angle de diffusion.
Ces résultats sont démontrés en détail dans les Ref. (Bellet, Chalopin, Fichot, Iacona, and Taine 2009), (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010), (Gomart and Taine 2011).

1.4.2 Critère de validité de la loi de Fourier

Tout comme la loi de Beer, la loi de Fourier n'est applicable qu'à certaines conditions. Un critère de validité quantitatif a été proposé par Gomart et Taine (Gomart and Taine 2011) pour des milieux absorbants, diffusants, homogènes et isotropes. Dans cette étude, il apparaît que deux conditions doivent être vérifiées pour pouvoir appliquer la loi de Fourier :

(1) La loi de Fourier n'est valable qu'au cœur du milieu. La distance aux parois doit donc être optiquement épaisse. En pratique, on se place à une distance des frontières $L_{bd} >> 1/B$:

(2) Le critère suivant doit être vérifié :

$$\frac{1}{T}\frac{dT}{dx} < \eta(\epsilon_F) K C(\omega, g) \tag{1.44}$$

où le coefficient multiplicatif $C(\omega, g)$, fonction de l'albédo ω et du facteur d'asymétrie g est tabulé à la référence (Gomart and Taine 2011). $\eta(\epsilon_F)$, fonction de ϵ_F, la précision relative recherchée sur les puissances radiatives en utilisant la loi de Fourier, est aussi tabulé dans la référence (Gomart and Taine 2011). Par exemple, pour $\eta(\epsilon_F) = 0.033$, l'erreur sur les puissances radiatives calculées avec une loi de Fourier sera inférieure à 1%.

1.5 Méthodes de résolution de la RTE

Il existe de nombreuses méthodes de résolution de la RTE, permettant le calcul des flux surfaciques et des puissances volumiques radiatifs pour un champ de

température donné. Les flux surfaciques et puissances volumiques radiatifs sont déterminés à partir de la luminance :

$$\mathbf{q^R}(\mathbf{r}) = \int_0^\infty \int_{4\pi} L_\nu(\mathbf{r},\mathbf{u})\mathbf{u}\mathrm{d}\Omega\mathrm{d}\nu \tag{1.45}$$

$$P^R(\mathbf{r}) = -\mathrm{div}(\mathbf{q^R}) \tag{1.46}$$

On note $\varphi^R(\mathbf{r}) = \mathbf{q^R}(\mathbf{r}).\mathbf{n}$ le flux surfacique à travers la surface élémentaire $dS(\mathbf{r})$ en un point $\mathbf{r}$, si $\mathbf{n}$ est le vecteur unitaire de la normale à $dS(\mathbf{r})$.
Dans certains cas très simples, il est possible de résoudre la RTE (presque) analytiquement. Deux exemples classiques sont détaillés ici dans la mesure où ces deux cas permettent le calcul exact des puissances volumiques et flux surfaciques radiatifs lorsque le champ de température est connu. Ces deux exemples sont très utiles pour la validation des codes de transfert : le cas du mur plan et du cylindre.

1.5.1 Solutions analytiques

1.5.1.1 Cas du mur plan

Soit un milieu semi-transparent d'indice n absorbant mais non diffusant dont les propriétés radiatives sont uniformes et isotropes, compris entre deux murs plans distants de L, d'émissivités uniformes et isotropes $\varepsilon_{1\nu}$ et $\varepsilon_{2\nu}$, et de températures T_1 et T_2. Les grandeurs radiatives du milieu semi-transparent $T(x)$, $P^R(x)$, $\varphi^R(x)$ et $\kappa_\nu(x)$ ne dépendent que de l'abscisse x et également de la fréquence. Le champ de température est fixé et connu dans le milieu. Pour alléger les notations, on notera $L_\nu^\circ[T(x)] = L_\nu^\circ(x)$.
Dans ces conditions, les puissances volumiques radiatives s'écrivent (Taine, Enguehard, and Iacona 2014) :

$$\begin{aligned} P^R(x) &= \int_0^\infty 2\pi\kappa_\nu(x)\left\{L_\nu^-(L)E_2\left[e_\nu(x,L)\right] + L_\nu^+(0)E_2\left[e_\nu(0,x)\right]\right\}\mathrm{d}\nu \\ &- \int_0^\infty 4\pi\kappa_\nu(x)L_\nu^\circ(x)\mathrm{d}\nu \\ &+ \int_0^\infty \int_x^L 2\pi L_\nu^\circ(x')\kappa_\nu(x)\kappa_\nu(x')E_1\left[e_\nu(x,x')\right]\mathrm{d}x'\mathrm{d}\nu \\ &+ \int_0^\infty \int_0^x 2\pi L_\nu^\circ(x')\kappa_\nu(x)\kappa_\nu(x')E_1\left[e_\nu(x',x)\right]\mathrm{d}x'\mathrm{d}\nu \end{aligned} \tag{1.47}$$

avec

$$L_\nu^+(0) = \varepsilon_{1\nu}n^2L_\nu^\circ(T_1) + (1-\varepsilon_{1\nu})L_\nu^-(0) \tag{1.48}$$

$$L_\nu^-(L) = \varepsilon_{2\nu}n^2L_\nu^\circ(T_2) + (1-\varepsilon_{2\nu})L_\nu^+(L) \tag{1.49}$$

$$L_\nu^-(0)\mathrm{d}\nu = \mathrm{d}\varphi_\nu^{R-}(0)/\pi \tag{1.50}$$

$$L_\nu^+(L)\mathrm{d}\nu = \mathrm{d}\varphi_\nu^{R+}(L)/\pi \tag{1.51}$$

$$e_\nu(x',x) = \int_{x'}^x \kappa_\nu(x'')\mathrm{d}x'' \tag{1.52}$$

Les fonctions E_1, et E_2 sont les fonctions intégro-exponentielles définies dans la Ref. (Abramowitz and Stegun 1970), et les flux surfaciques $\mathrm{d}\varphi_\nu^{R-}(0)$ et $\mathrm{d}\varphi_\nu^{R+}(L)$ sont les flux incidents respectivement sur les plans situés en $x = 0$ et $x = L$.

1.5.1.2 Cas du cylindre

Soit un milieu absorbant semi-transparent mais non diffusant dont les propriétés radiatives sont isotropes et uniformes, compris dans un cylindre de hauteur infinie, de rayon R et dont la paroi a une émissivité uniforme et isotrope ε et une température T_R. Le champ de température est fixé et connu dans le milieu. Pour alléger les notations, on ne considère pas la dépendance spectrale, et on note comme auparavant $L_\nu^\circ[T(\tau)] = L_\nu^\circ(\tau)$. Les grandeurs radiatives du milieu semi-transparent ne dépendent que de τ : $\kappa(\tau)$, $T(\tau)$, $P^R(\tau)$ et $\varphi^R(\tau)$, avec

$$\tau = e_\nu(0, r) = \int_0^r \kappa(r')\mathrm{d}r' \tag{1.53}$$

Dans ces conditions, le flux radiatif s'écrit (Modest 2003) :

$$\begin{aligned} \varphi^R(\tau) &= F(\tau, \tau_R) \int_0^\infty \pi \left(L_\nu^\circ(T_R) - L_\nu^-(\tau_R)\right) \mathrm{d}\nu \\ &- \int_0^\infty \int_0^\tau \frac{\mathrm{d}L_\nu^\circ(\tau')}{\mathrm{d}\tau'} \frac{\tau'}{\tau} F(\tau', \tau)\mathrm{d}\tau'\mathrm{d}\nu \\ &- \int_0^\infty \int_\tau^{\tau_R} \frac{\mathrm{d}L_\nu^\circ(\tau')}{\mathrm{d}\tau'} F(\tau, \tau')\mathrm{d}\tau'\mathrm{d}\nu \end{aligned} \tag{1.54}$$

avec

$$\varepsilon_\nu L_\nu^-(\tau_R) = \varepsilon_\nu L_\nu^\circ(T_R) + (1 - \varepsilon_\nu) L_\nu^+(\tau_R) \tag{1.55}$$

$$L_\nu^+(\tau_R)\mathrm{d}\nu = \mathrm{d}\varphi_\nu^{R+}(\tau_R)/\pi \tag{1.56}$$

$$\tau_R = e_\nu(0, R) \tag{1.57}$$

et avec la fonction géométrique :

$$F(\tau, \tau') = \frac{-4}{\pi} \int_{\psi=0}^{\pi} \int_{\theta=0}^{\pi/2} \exp\left[-\frac{\tau}{\sin\theta}\left(\cos\psi + \sqrt{\left(\frac{\tau'}{\tau}\right)^2 - \sin^2\psi}\right)\right] \sin^2\theta \cos\psi \mathrm{d}\theta\mathrm{d}\psi \tag{1.58}$$

1.5.2 Méthodes numériques

Dans la plupart des cas réels, il n'existe pas de solutions analytiques de la RTE. Il existe donc de nombreuses méthodes numériques pour le calcul des puissances et des flux, et seules les principales sont rapidement revues ici. Parmi les méthodes de résolution de la RTE, on différenciera les méthodes différentielles qui résolvent la RTE sous forme différentielle, les méthodes intégrales qui résolvent la RTE sous forme intégrale, et les méthodes statistiques.

1.5.2.1 Méthodes différentielles

L'idée principale de la *méthode aux ordonnées discrètes (DOM)* (Chandrasekharl 1950) consiste à simplifier les intégrations directionnelles : un nombre restreint de directions est considéré. La luminance est calculée pour chacune de ces directions de proche en proche par un bilan de maille. Afin d'intégrer sur toutes les directions, les luminances peuvent être approximées par interpolation quadratique. Le gain en terme de temps de calcul se fait néanmoins au détriment de la précision du calcul, en particulier pour des champs de luminance anisotropes. On citera à titre d'exemple (Fiveland 1984) (Soufiani and Taine 1993).
La *méthode des harmoniques sphériques* consiste à simplifier la résolution de la RTE en décomposant la luminance sur la base des harmoniques sphériques. Elle s'exprime donc sous la forme d'une combinaison linéaire de fonctions dépendant de façon indépendante de **r** et de **u**. En pratique, la luminance est décomposée seulement sur les harmoniques d'ordre inférieur ou égal à un niveau donné N : on parle alors de méthode P_N. Les méthodes P_1 et P_3 sont couramment utilisées pour des milieux optiquement épais, les méthodes d'ordre élevé plus rarement car la complexité mathématique devient alors trop importante.
La convergence de ces méthodes au voisinage des parois est problématique.

1.5.2.2 Méthodes intégrales

La *méthode de tracé de rayons* repose sur une discrétisation du domaine en N_p nœuds situés soit sur les frontières du domaine soit au sein du milieu, et une discrétisation en N_d directions. Chaque noeud est caractérisé par ses propriétés radiatives, ainsi que sa température. Il s'agit donc de résoudre un système de $2N_pN_d$ équations pour le calcul des luminances directionnelles incidentes et partantes en chaque nœud du domaine. Les flux et puissances radiatifs peuvent ensuite être déduits du champ de luminance connu en tout point par interpolation. Cette méthode précise devient rapidement coûteuse en temps de calcul dans le cas de milieux diffusants. Quelques exemples peuvent être trouvés dans les références (Siegel and Howell 1992) (Lockwood and Shah 1981).
La *méthode des zones* (Hottel and Sarofim 1972) est basée sur le calcul des surfaces efficaces de transfert caractérisant les échanges d'énergie soit entre un volume élémentaire V_i et une surface S_j, soit entre deux volumes élémentaires V_i et V_j ou deux surfaces S_i et S_j. Le calcul de ces surfaces efficaces de transfert peut être simplifié grâce au principe de réciprocité. Les flux radiatifs aux parois du domaine et les puissances radiatives dans les volumes élémentaires du domaine sont facilement calculables en fonction des flux et puissances échangés. C'est une méthode très efficace dans le cas de milieux gris, mais qui connaît des limites dans des milieux de géométrie complexe où le calcul des surfaces efficaces de transfert peut être très lourd.

1.5.2.3 Méthodes statistiques : méthodes de Monte Carlo

Les méthodes de Monte Carlo sont des méthodes de calcul numérique faisant appel à des processus aléatoires pour le calcul de grandeurs. Introduites par Metropolis, leur nom fait référence aux jeux de hasard pratiqués à Monte Carlo. En transfert radiatif, l'approche de Monte Carlo peut dans un premier temps facilement être comprise comme étant la simulation de la propagation d'un grand nombre de quanta de puissance dans le système considéré. Les quanta de puissance sont émis sous forme de tirs aléatoires respectant les fonctions de distribution d'émission en tout point et dans toutes les directions du milieu. Leur trajectoire est déterminée en fonction des propriétés radiatives du milieu jusqu'à ce qu'ils soient absorbés par le milieu ou transmis à travers celui-ci. Chaque quantum transporte une quantité de puissance ce qui permet le calcul des flux radiatifs et puissances radiatives. Cette analogie entre la méthode numérique utilisée et les phénomènes physiques sous-jacents peut toutefois induire en erreur. Par exemple, l'énergie transportée lors de la simulation d'une trajectoire peut ne pas correspondre à l'énergie physiquement transportée par un photon. Il est donc préférable de considérer la méthode de Monte Carlo comme une méthode de calcul d'intégrale.

Calcul d'intégrale par Monte Carlo
Soit une intégrale du type

$$I = \int_{\Omega} f(\mathbf{X}) d\mathbf{X} \tag{1.59}$$

où $\mathbf{X}$ est un vecteur de dimension d à valeur dans le domaine Ω. Le principe de la méthode de Monte Carlo pour le calcul d'intégrale consiste à introduire une fonction de distribution $g_X(\mathbf{X})$ du vecteur $\mathbf{X}$ telle que

$$I = \int_{\Omega} \frac{f(\mathbf{X})}{g_X(\mathbf{X})} g_X(\mathbf{X}) d\mathbf{X} = \int_{\Omega} h(\mathbf{X}) g_X(\mathbf{X}) d\mathbf{X} \tag{1.60}$$

avec

$$h(\mathbf{X}) = \frac{f(\mathbf{X})}{g_X(\mathbf{X})} \tag{1.61}$$

La normalisation impose bien sûr :

$$\int_{\Omega} g_X(\mathbf{X}) d\mathbf{X} = 1 \tag{1.62}$$

I est alors l'espérance de $h(\mathbf{X})$ et peut donc être calculée de façon discrète par :

$$I = \lim_{N \to \infty} \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} h(\mathbf{X_i}) \tag{1.63}$$

où $h(\mathbf{X_i})_{i=1,N}$ est une série de réalisations de $h(\mathbf{X})$ telle que les réalisations du vecteur $\mathbf{X}$ sont distribuées selon la fonction $g_X(\mathbf{X})$.
L'intégrale I peut donc être approximée par

$$< I >= \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} h(\mathbf{X_i}) \tag{1.64}$$

avec un nombre N suffisamment grand de réalisations de $h(\mathbf{X})$. La méthode de Monte Carlo consiste alors à générer un grand nombre de réalisations indépendantes $(\mathbf{X_1}, \mathbf{X_2}, ..., \mathbf{X_N})$ selon la loi de distribution $g_X(\mathbf{X})$. I est alors estimé en calculant la moyenne des réalisations $h(\mathbf{X_i})$.
Il faut noter enfin que le vecteur $\mathbf{X}$ est de dimension d et la génération de $\mathbf{X}$ se ramène donc à la réalisation de d variables mono-dimensionnelles $(x_1, x_2, ..., x_d)$. Dans le cas où ces variables sont toutes indépendantes, chaque variable est générée indépendamment selon sa propre fonction de distribution $g_{x_i}(x_i)$ avec

$$g_X(\mathbf{X}) = \prod_{i=1}^{d} g_{x_i}(x_i) \tag{1.65}$$

Dans le cas contraire, les variables $(x_1, x_2, ..., x_d)$ doivent être générées de façon corrélée à partir de la fonction de distribution jointe $g_X(\mathbf{X})$.

Théorème de la limite centrale
On rappelle le théorème de la limite centrale : soit une série de variables aléatoires (Y_1, Y_2, ... Y_n). Toutes ces variables aléatoires sont indépendantes mais suivent la même loi de probabilité d'espérance m et d'écart-type σ. On considère la nouvelle variable aléatoire $S = Y_1 + Y_2 + ...Y_n$. Pour n suffisamment grand, S suit une loi normale d'espérance nm et d'écart-type $\sigma\sqrt{n}$:

$$\mathcal{N}(S) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi n}} \exp\left(\frac{-(S-nm)^2}{2n\sigma^2}\right) \tag{1.66}$$

D'après ce théorème, l' estimateur $< I >$ converge vers la valeur moyenne de $h(\mathbf{X})$, c'est à dire I exprimée en (1.59) avec un écart-type $\sigma_I \propto 1/\sqrt{N}$.

Lien entre la méthode de Monte Carlo pour le calcul d'intégrale et les transferts radiatifs
Les flux et puissances radiatifs sont exprimés comme des intégrales de la luminance sur l'angle solide et le spectre, la luminance pouvant elle-même être exprimée sous forme intégrale (RTE ou GRTE sous forme intégrale). Plusieurs méthodes de résolution présentées précédemment cherchent à approximer ces intégrales successives par discrétisation suivie d'interpolation. La méthode de Monte Carlo permet elle aussi d'approcher ces intégrales et présente de nombreux avantages. D'une part, la méthode assure une convergence vers la solution

exacte et dont l'erreur peut être précisément estimée et donc contrôlée. D'autre part, elle permet de traiter des problèmes complexes (milieux anisotropes, hétérogènes, à géométrie complexe, ...) sans augmenter de façon démesurée les temps de calcul. Elle est tout-à-fait appropriée pour des milieux diffusants, ainsi que pour prendre en compte les dépendances spectrales des propriétés radiatives.
En revanche, il faut noter que la convergence est assez lente puisqu'elle évolue à partir d'un grand nombre de quanta en $1/\sqrt{N}$. De nombreuses méthodes d'optimisation des méthodes de Monte Carlo ont été développées afin de diminuer soit le temps de calcul pour une erreur donnée, soit l'erreur pour un temps de calcul donné. On citera à titre d'exemple les méthodes basées sur le principe de réciprocité (Tesse, Dupoirieux, Zamuner, and Taine 2002).

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté trois modèles de transfert radiatif, par ordre de généralité et de complexité décroissantes, en partant de l'équation de Boltzmann appliquée aux photons. Le transfert radiatif est donc ici décrit de façon probabiliste : la fonction de densité de photons est reliée à la luminance, et les propriétés radiatives du milieu de propagation sont complètement caractérisées par la fonction de distribution cumulée d'extinction G_{ext}, les probabilités cumulées d'absorption et de diffusion P_a et P_{sc}, et la fonction de phase p. A partir de ces propriétés radiatives, la GRTE est démontrée en explicitant le terme d'interaction rayonnement / matière. Ce premier modèle de transfert radiatif est le plus général : il prend en compte la présence des parois et ne fait aucune hypothèse sur la phase de propagation. Il faut toutefois noter qu'il suppose que l'approximation classique est vérifiée : il est donc limité au transfert radiatif en champ lointain.
Dans un second temps, on a vu que sous certaines conditions (validité de la loi de Beer ou milieu homogène optiquement épais), la GRTE dégénère en RTE. Il est alors possible de définir des propriétés radiatives à l'échelle d'un volume élémentaire, c'est-à-dire des coefficients d'extinction, d'absorption et de diffusion. Il existe plusieurs méthodes de détermination des coefficients d'extinction en fonction des caractéristiques du milieu considéré (homogène où hétérogène). Enfin, les conditions d'applications de la loi de Fourier sont rapidement revues. De nombreuses méthodes de résolution de la RTE ont aussi été présentées, et parmi elles, les méthodes de Monte Carlo pour le calcul intégral.
Le modèle de transfert radiatif à utiliser étant dépendant du comportement radiatif du milieu semi-transparent d'étude, nous proposons donc la démarche systématique suivante (voir aussi Fig.(1.3)) :
(1) La première étape consiste à caractériser entièrement le milieu considéré par les fonctions statistiques radiatives.
(2) A partir de la fonction G_{ext}, il s'agit d'estimer les coefficients d'extinction

fictifs par une des méthodes présentées au paragraphe 1.3.3.1. Ces coefficients n'ont pas de sens physique à ce stade, mais sont nécessaires pour le calcul du critère de validité de la loi de Beer.

(3) Si le critère de validité de la loi de Beer est vérifié ou si le milieu est homogène optiquement épais, les coefficients d'extinction déterminés précédemment ont alors un sens physique et le transfert radiatif peut être modélisé par la RTE. Dans le cas contraire, il faut modéliser le transfert radiatif par la GRTE.

Cette méthodologie sera appliquée aux milieux qui nous intéressent dans la partie 2, après avoir explicité les méthodes numériques de génération et de caractérisation des milieux poreux. On verra ainsi que dans des empilements de sphères ou de cylindres en proche paroi, la loi de Beer n'est pas vérifiée.
La partie 3 sera entièrement consacrée à la résolution de la GRTE. Les termes d'émission n'ont pas été explicités dans ce chapitre. Leur modélisation constitue pour des milieux statistiquement hétérogènes un des challenges les plus importants de ce travail. Le modèle sera ensuite appliqué aux différents milieux étudiés au cours de cette thèse.

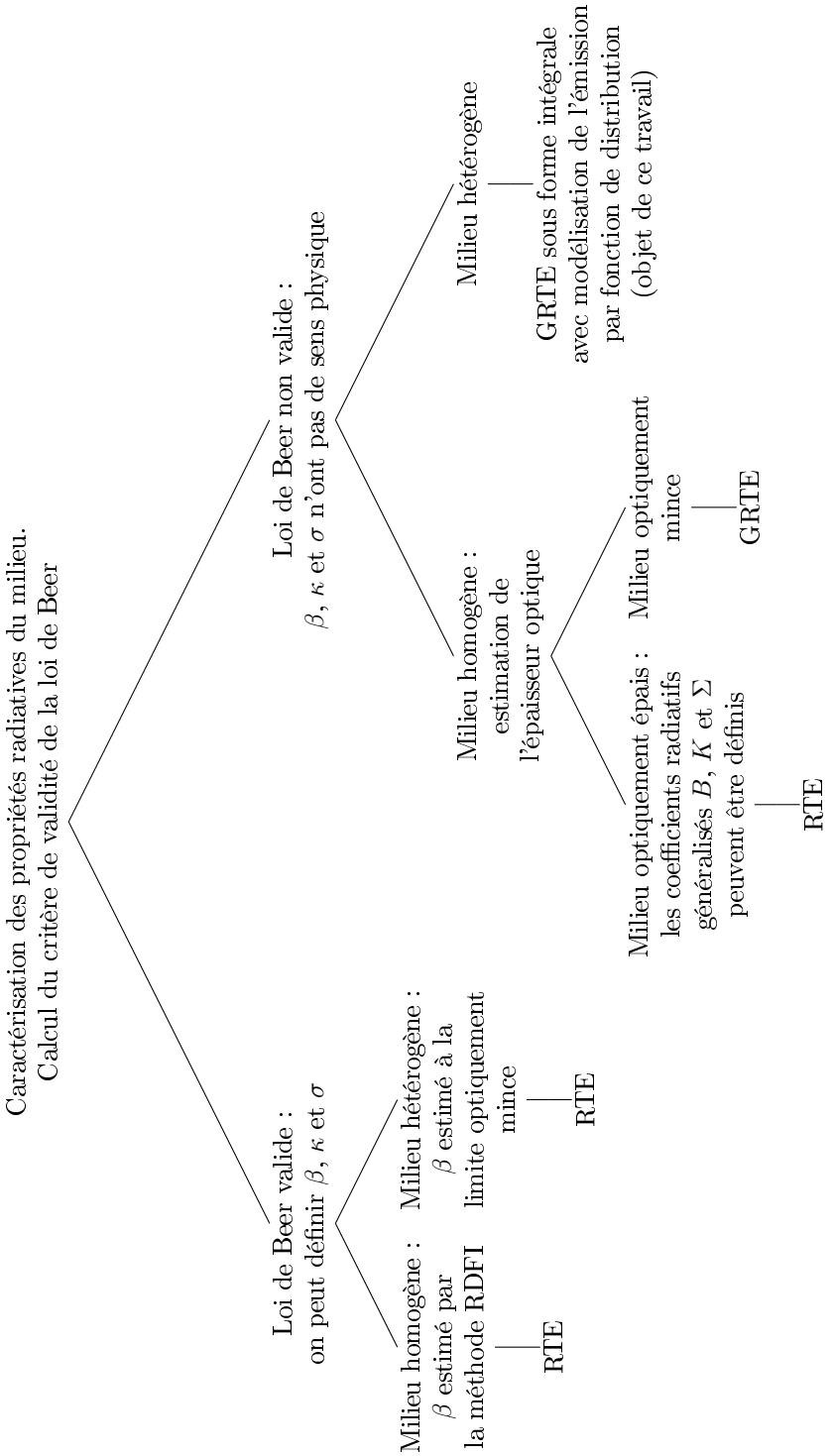


Figure 1.3 – *Méthodologie pour modéliser le transfert radiatif dans un milieu a priori non Beerien.*

Deuxième partie

Approche statistique pour la caractérisation de milieux poreux

Chapitre 2

Méthodes de génération et de caractérisation des milieux poreux étudiés

Sommaire

2.1 Méthodes de génération des milieux poreux étudiés 38
2.1.1 Présentation de l'outil DigiPac 38
2.1.2 Empilements engendrés avec l'outil 40
2.1.2.1 Empilement de sphères entre deux plans . . 40
2.1.2.2 Empilement de sphères dans un tube . . . 41
2.1.2.3 Empilement industriel 42
2.1.3 Validation de l'outil 42
2.2 Méthode de Monte Carlo pour la caractérisation . 45
2.2.1 Fonctions statistiques radiatives dans un milieu poreux 45
2.2.2 Définition d'un volume élémentaire 46
2.2.3 Algorithme de Monte Carlo 48
2.2.4 Paramètres de calcul 50
2.2.4.1 Taille des zones 50
2.2.4.2 Discrétisation angulaire 51
2.2.4.3 Convergence statistique de la méthode de Monte Carlo 51
2.2.4.4 Opacité du milieu 52
2.2.4.5 Temps de calcul 53

Introduction

La méthodologie exposée dans le chapitre précédent permet de traiter le transfert radiatif dans tout type de milieu en champs lointain, à condition de connaitre ses propriétés radiatives, c'est-à-dire les fonctions radiatives statistiques. On s'intéresse ici à un type de milieu assez particulier, des lits de particules catalytiques. Dans les fours de vapo-reformage de méthane, les réacteurs tubulaires sont remplis de particules de taille centimétrique recouvertes de catalyseur. Les particules sont introduites par le haut du tube et forment sous l'effet de la gravité un empilement compact. Dans ce type d'empilement, les particules proches des parois vont être ordonnées alors que l'empilement est complètement aléatoire loin des parois. L'agencement des particules va avoir un effet important sur la porosité locale et cet effet est d'autant plus important que le diamètre du tube est proche de la taille caractéristique des particules. Si l'objectif final est de décrire le transfert radiatif dans ces lits de particules catalytiques, l'étude d'autres empilements plus simples permet de valider les modèles proposés par la suite dans des configurations connues. Différents types d'empilements de particules seront donc étudiés.
Dans les milieux poreux ainsi formés, les particules forment la première phase, solide et opaque. La deuxième phase est alors constituée des gaz circulant dans le réacteur, gaz qui seront supposés transparents à l'échelle du pore. Une méthode d'homogénéisation va être utilisée : le milieu poreux va être remplacé par une phase continue semi-transparente équivalente. Les propriétés radiatives de cette phase homogénéisée seront complètement décrites par les fonctions radiatives statistiques.
Dans ce chapitre, nous nous intéresserons donc aux méthodes numériques utilisées pour la génération et la caractérisation des propriétés radiatives d'empilements de particules. Dans un premier temps, l'outil de génération d'empilements sera présenté, ainsi que les empilements étudiés. Dans un second temps, les fonctions radiatives statistiques seront explicitées dans le cas d'un milieu poreux de morphologie connue. Ces fonctions peuvent être précisément déterminées par une méthode de Monte Carlo. Quelques paramètres de calcul pour les simulations numériques seront finalement introduits.

2.1 Méthodes de génération des milieux poreux étudiés

2.1.1 Présentation de l'outil DigiPac

La première étape de l'étude consiste à engendrer le milieu poreux. Pour engendrer un empilement de particules, le logiciel commercial DigiPac est utilisé. Celui ci est basé sur un code permettant d'engendrer des empilements aléatoires de particules de forme arbitraire dans un contenant. Ce code a été validé sur différentes configurations (Jia and Williams 2001), (Caulkin, Jia, Williams, and

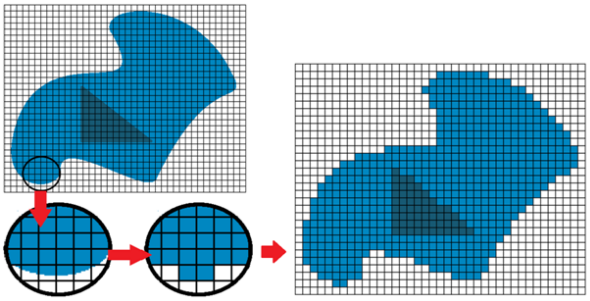


Figure 2.1 – *Digitalisation d'une forme arbitraire.*

Fairweather 2005), (Jia, Gan, Williams, and Rhodes 2007), (Caulkin, Fairweather, Jia, Ahmad, and Williams 2008), (Caulkin, Ahmad, Fairweather, Jia, and Williams 2009). Deux points font l'originalité de l'approche utilisée dans DigiPac et contribuent à la diminution des temps de calcul nécessaires et de l'espace mémoire utilisé pour la génération d'un empilement : la digitalisation et le fait que la trajectoire des particules n'est pas calculée de façon déterministe.
La digitalisation consiste à représenter l'espace par une grille cartésienne 3D avec une résolution δ choisie par l'utilisateur. Des voxels (*i.e.* des pixels en 3D) sont ainsi définis sur la grille. Tout objet, aussi complexe soit-il, est remplacé par un ensemble de voxels : une valeur non nulle est attribuée aux voxels occupés par l'objet, et 0 aux voxels vides. Cette opération introduit une erreur sur la forme des particules puisque leur surface est "en marche d'escalier" comme représenté sur la Fig.(2.1). Cette erreur peut être diminuée en diminuant la taille des voxels δ, mais cela au détriment du temps de calcul et de l'espace mémoire nécessaire.
L'approche repose uniquement sur les formes des particules, et permet donc un empilement géométrique. Les principales étapes des algorithmes utilisés (DigiRWP ou DigiCGP) peuvent être décrites de la façon suivante :

(1) Les particules sont ajoutées à partir d'une zone et à une fréquence spécifiées par l'utilisateur. L'utilisateur peut choisir par exemple d'ajouter 10 particules toutes les 100 itérations à partir d'un cercle situé situé au dessus du contenant ;

(2) Pour l'algorithme DigiRWP (Random Walk Packing), les particules suivent une marche aléatoire sur la grille 3D. A chaque itération, un déplacement de 1 voxel dans une direction aléatoire (26 directions possibles en 3D) et une rotation aléatoire sont engendrées : le mouvement de translation et de rotation est accepté s'il n'aboutit pas à un recouvrement de la particule considérée avec un autre objet solide (une autre particule de l'empilement ou la paroi du contenant) (Jia and Williams 2001) ;

(3) Pour permettre la sédimentation, une probabilité de rebond est ajoutée : cette dernière permet de refuser certains déplacements de translation vers le haut. Une probabilité de 1 signifie que les particules ont la même probabilité

de se déplacer vers le haut que vers le bas. Une probabilité de 0 signifie que les particules ne peuvent pas se déplacer vers le haut. Cette probabilité est fixée par l'utilisateur ;

(4) Pour l'algorithme DigiCGP (Collision Guided Packing), l'approche est très similaire mais, s'il y a contact avec d'autres objets, la direction du déplacement n'est pas engendrée aléatoirement : elle est déterminée en fonction du bilan des forces et moments s'appliquant sur la particule, chaque point de contact contribuant également (Caulkin, Ahmad, Fairweather, Jia, and Williams 2009) ;

(5) La simulation prend fin lorsque plus aucune particule ne peut être ajoutée. En pratique, l'utilisateur fixe un seuil permettant de figer les particules qui n'ont subi aucun mouvement pendant un certain nombre d'itérations. L'empilement a convergé lorsque toutes les particules sont figées.

Enfin, il faut noter que des conditions périodiques peuvent être ajoutées afin de supprimer les effets de bord. Avec des conditions périodiques, les particules peuvent chevaucher les frontières du domaine. Les voxels pleins situés à l'extérieur du domaine sont alors réintroduits du côté opposé. Les conditions périodiques permettent ainsi de réduire la taille de l'empilement nécessaire, et donc de diminuer les temps de simulation. Il faut cependant noter que des conditions périodiques selon l'axe z (axe vertical) peuvent créer des zones de vides affectant la porosité de l'empilement et non représentatives de l'empilement réel. De plus, dans la mesure où on s'intéresse aux effets des bords sur l'empilement dans une direction donnée (par exemple dans la direction x), il n'est pas souhaitable d'utiliser ces conditions périodiques dans cette direction.

2.1.2 Empilements engendrés avec l'outil

On s'intéresse par la suite à trois types d'empilements : (1) empilements de sphères entre deux plans ; (2) empilements de sphères dans un tube ; (3) empilements représentatifs de la configuration industrielle.

2.1.2.1 Empilement de sphères entre deux plans

Le cas d'un empilement de sphères entre deux plans est un cas académique. Il permet donc une comparaison des résultats de caractérisation des propriétés radiatives et des modèles de transfert radiatif avec des résultats connus, et donc dans une certaine mesure de juger du niveau d'innovation apporté par notre stratégie de modélisation.

Des sphères, de même diamètre D, sont empilées dans un parallélépipède rectangle, de dimensions L_x, L_y et L_z non multiples de D de façon à éviter d'éventuels arrangements réguliers des sphères. Les deux plans sont situés en $x = 0$ et en $x = L_x$, et des conditions périodiques sont appliquées en $y = 0$ et $y = L_y$ avec $L_y \simeq 25D$. La boite a une hauteur $L_z \simeq 30D$, mais seule la partie située entre $z_{min} \simeq 5D$ et $z_{max} \simeq 25D$ est utilisée de façon à supprimer l'effet de la

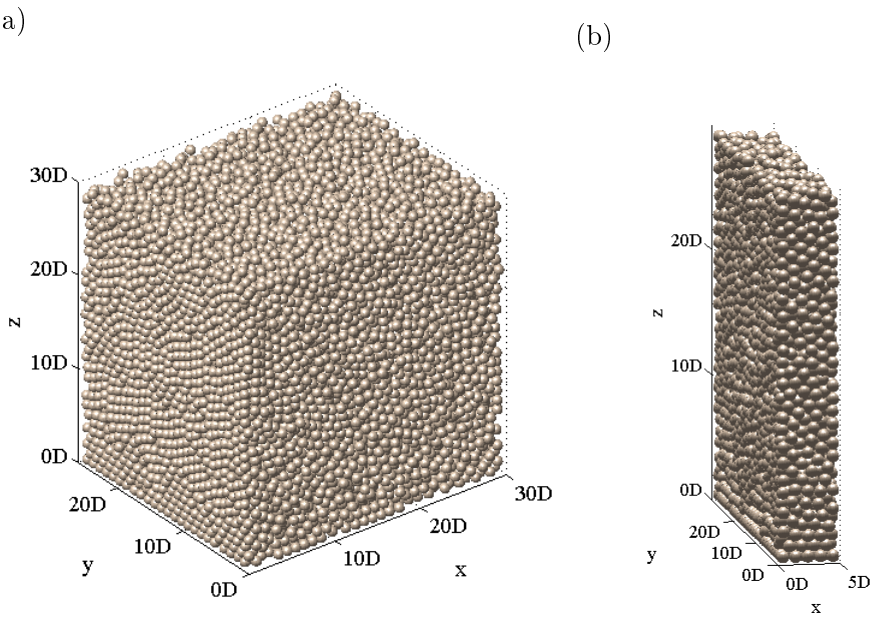


FIGURE 2.2 – *Empilement de sphères entre deux plans d'équations $x = 0$ et $x = L_x$ engendrés numériquement pour : Figure(a) $L_x \simeq 30D$; Figure(b) $L_x \simeq 5D$*

paroi du fond en $z = 0$ et la surface libre en $z = L_z$.
Deux exemples d'empilements sont présentés Fig.(2.2). Le premier cas ($L_x \simeq 30D$) est intéressant car il comporte une grande zone statistiquement isotrope et homogène : on montrera par la suite que le milieu est homogène et isotrope pour une distance à la paroi supérieure à $5D$. Ce premier cas servira donc de base à tous les cas $L_x \geq 10D$ en utilisant la zone $x < L_x/2$ et en symétrisant les propriétés radiatives à partir d'un plan en $x = L_x/2$. Pour les empilements plus confinés, il est nécessaire d'engendrer de nouveaux empilements tels que le deuxième cas présenté ($L_x \simeq 5D$) : dans ce type d'empilement confiné, le milieu poreux n'atteint nulle part l'homogénéité et l'isotropie ; les effets de bord sont présents en tout point de ce milieu.

2.1.2.2 Empilement de sphères dans un tube

Ce deuxième type d'empilement n'est pas d'un intérêt primordial mais est nécessaire à la validation des codes de caractérisation des propriétés radiatives dans le cas d'une géométrie cylindrique. En effet, le passage à une géométrie cylindrique augmente le nombre de dépendances angulaires et complexifie le problème. Il est donc nécessaire de valider tous les codes sur un tube où on s'attend à des résultats comparables aux empilements de sphères entre deux plans. Un exemple d'un tel empilement est présenté Fig.(2.3). Dans cet empilement, on verra par la suite que il existe une zone faiblement hétérogène où la loi de Beer est vérifié, qui permettra la validation des codes, et les propriétés

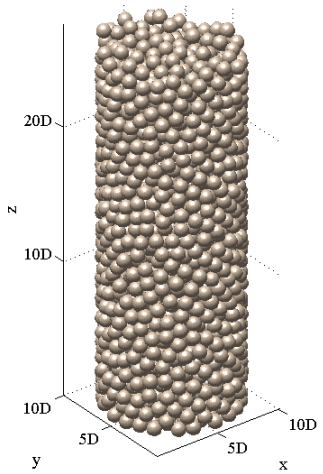


Figure 2.3 – *Empilement de sphères dans un tube engendré numériquement pour* $D_{tube} = 10D$

radiatives en proche paroi seront similaires à celle d'un empilement de sphères entre deux plans.

2.1.2.3 Empilement industriel

Le troisième type de milieu étudié nous intéresse plus particulièrement dans le cadre de cette thèse industrielle. Il s'agit d'un lit de particules fixes dans un réacteur tubulaire. Dans les fours de vapo-reformage de méthane, ces particules sont de petits cylindres de hauteur et de diamètre centimétrique percés de trous (de diamètre millimétrique) le long de l'axe du cylindre (le nombre et la position des trous pouvant varier en fonction du fabricant). Ces trous ont pour but de diminuer les pertes de charge dans le réacteur, et d'optimiser les mélanges des fluides favorisant ainsi les réactions chimiques. Un exemple d'empilement est présenté Fig.(2.4). Dans la suite, nous ignorons le transfert radiatif à l'intérieur des trous des cylindres. Les cylindres seront donc par la suite supposés pleins.

2.1.3 Validation de l'outil

L'outil DigiPac a été validé dans plusieurs études (Jia, Gan, Williams, and Rhodes 2007), mais il faut rester critique sur les empilements engendrés car la résolution choisie peut avoir un impact sur les résultats obtenus. Considérons par exemple une sphère de diamètre D et un pas de discrétisation spatiale δ. Le volume réel occupé par la sphère $\pi D^3/6$ est comparé au volume occupé par les voxels la composant(voir Table 2.1). L'erreur engendrée par la discrétisation choisie tend vers 0 quand la finesse de la discrétisation augmente, mais ne peut être estimée négligeable que sur des sphères de diamètres supérieurs ou égaux à 20 voxels. On utilisera toujours par la suite des sphères de diamètre $D = 20\delta$.

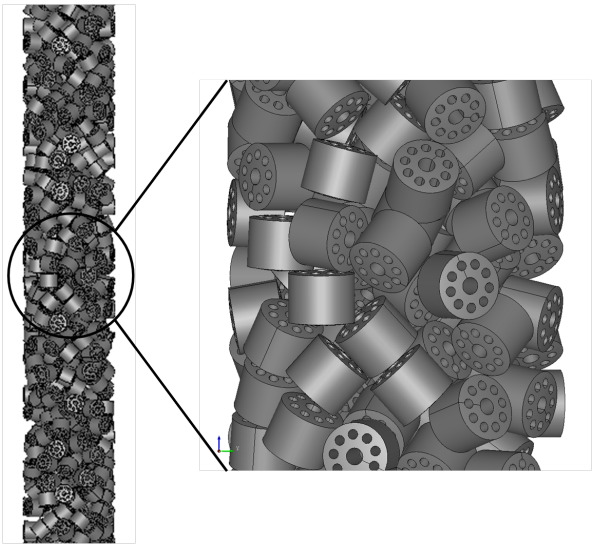


Figure 2.4 – *Empilement de cylindres dans le tube d'un four de vapo-reformage de méthane*

Diamètre normalisé (D/δ)	Volume de la sphère réelle normalisé ($(\pi D^3/6)/\delta^3$)	Nombre de voxels représentant la sphère discrétisée	Écart relatif (%)
80	268 083.2	268 096	0.005 %
20	4 188.8	4 224	0.8 %
15	1767.1	1791	1.35%
10	523.6	552	5.4%

Table 2.1 – *Écart relatif entre la taille réelle des sphères et la taille des sphères digitalisés.*

Dans un second temps, les profils de porosité calculés par la méthode qui sera présentée section 2.2.3 peuvent être comparés à des profils de porosité issus de corrélations empiriques. De nombreuses corrélations sont disponibles dans la littérature pour décrire l'évolution de la porosité dans un empilement de sphères dans un réacteur tubulaire, ainsi que la porosité moyenne (au cœur du tube).
Au cœur du tube de diamètre D_{tube} grand devant le diamètre D des sphères, l'empilement est homogène et isotrope et la porosité moyenne s'écrit (Dixon 1988)

$$\Pi_{bulk} = 0.4 + 0.05\frac{D}{D_{tube}} + 0.412\left(\frac{D}{D_{tube}}\right)^2 \tag{2.1}$$

Au cœur de l'empilement présenté figure (2.2a), la porosité moyenne est de 0.390 avec un écart-type de 0.007. Cette valeur est en très bon accord avec les

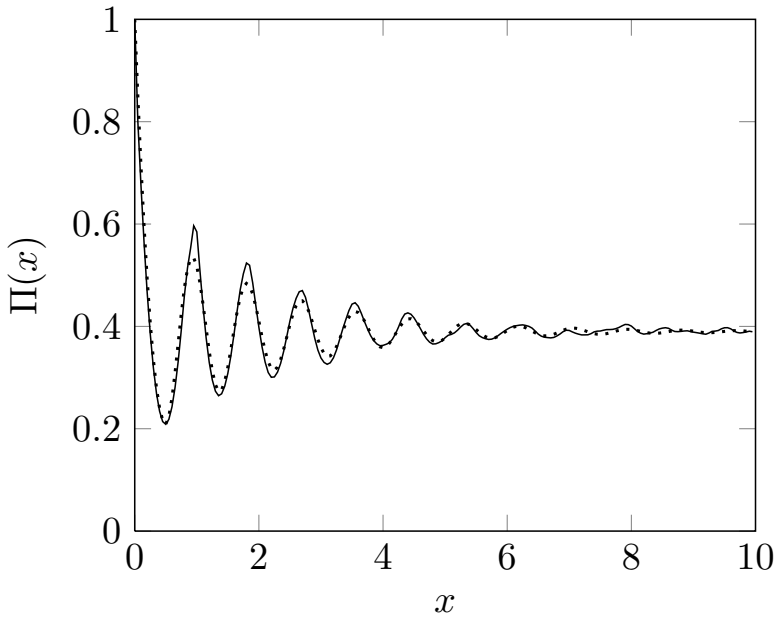


Figure 2.5 – *Profil de porosité calculé sur l'empilement engendré numériquement (trait plein) et issus de la corrélation empirique de Martin (trait pointillé).*

prédictions de Dixon (0.400 pour un tube de diamètre infiniment grand) et les résultats de simulations numériques de (du Toit 2008) (0.385 pour un tube de diamètre $D_{tube} > 10D$).
En proche paroi, des corrélations sont proposées pour prendre en compte les oscillations du profil de porosité. Quelques exemples peuvent être trouvés dans les Ref.(du Toit 2008), (Theuerkauf, Witt, and Schwesig 2006). Parmi elles, la corrélation de Martin (1978) est développée dans le cas d'un empilement de sphères dans un tube de diamètre D_{tube} grand devant D :

$$\begin{aligned} \Pi(x) &= \Pi_{min} + (1-\Pi_{min})x'^2 \text{ pour } x' < 0 \\ &= \Pi_{bulk} + (\Pi_{min} - \Pi_{bulk})e^{(-x'/4)} \cos\left(\frac{\pi x'}{0.876}\right) \text{ pour } x' > 0 \end{aligned} \tag{2.2}$$

où $x' = 2x - 1$ et $x = (0.5D_{tube} - r)/D$, r est la position radiale, et Π_{min} est la porosité minimale (en général autour de $x = 0.5$). Typiquement, Π_{min} varie entre 0.2 et 0.26. Pour l'empilement présenté sur la figure (2.2a), $\Pi_{min} = 0.2087$. On peut donc dans une certaine limite appliquer cette corrélation dans le cas des empilements de sphères entre deux plans. La comparaison de cette corrélation avec un profil de porosité calculé par Monte Carlo est présentée Fig.2.5.
L'accord est assez bon, et ce de même avec d'autres corrélations et d'autres types d'empilement. Cette vérification nous autorise une certaine confiance quant au réalisme et à la représentativité des empilements engendrés par le logiciel DigiPac.

2.2 Méthode de Monte Carlo pour la caractérisation

Il s'agit maintenant de caractériser les propriétés radiatives de la phase continue équivalente au milieu poreux engendré. Dans un premier temps, les fonctions statistiques radiatives sont explicitées. Dans un second temps, l'algorithme permettant le calcul de ces fonctions est détaillé. Quelques aspects de technique numérique seront ensuite rapidement abordés.

2.2.1 Fonctions statistiques radiatives dans un milieu poreux

Les fonctions statistiques radiatives ont été présentées précédemment. Par définition, la fonction de distribution cumulée d'extinction $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ est la probabilité qu'un rayon tiré à partir d'un point M du milieu homogénéisé dans une direction $\mathbf{u}$ soit éteint avant d'avoir parcouru une distance s. Dans un milieu poreux constitué d'une phase solide opaque et d'une phase fluide transparente, l'extinction (*i.e.* absorption et diffusion) a lieu à l'interface solide-fluide et $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ dépend donc uniquement de la morphologie du milieu poreux et non de la longueur d'onde du rayonnement. $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ peut donc s'exprimer à partir de la fonction de distribution des cordes MI du milieu poreux. M est un point d'émission dans la phase fluide, et I un point d'extinction à l'interface fluide-solide dont la position ne dépend que de la position de $M(\mathbf{r})$ et de la direction $\mathbf{u}$ considérée. La distance d'extinction est notée $s_0(\mathbf{r}, \mathbf{u}) = MI$ et :

$$G_{ext}(M, \mathbf{u}, s) = \frac{1}{\mathrm{d}\mathbf{r}_f{}^3} \int_0^s \int_{\mathrm{d}\mathbf{r}_f{}^3} \delta\left(s' - s_0(\mathbf{r}', \mathbf{u})\right) \mathrm{d}\mathbf{r}' \mathrm{d}s' \tag{2.3}$$

où l'intégration porte sur $\mathrm{d}\mathbf{r}_f{}^3$, le volume élémentaire de la phase fluide centré en $\mathbf{r}$.
De même, les probabilités cumulées d'absorption et de diffusion s'écrivent :

$$P_{a,\nu}(M, \mathbf{u}, s) = \frac{1}{\mathrm{d}\mathbf{r}_f{}^3} \int_0^s \int_{\mathrm{d}\mathbf{r}_f{}^3} \alpha_\nu(\mathbf{u}.\mathbf{n_I}) \delta\left(s' - s_0(\mathbf{r}', \mathbf{u})\right) \mathrm{d}\mathbf{r}' \mathrm{d}s' \tag{2.4}$$

$$P_{sc,\nu}(M, \mathbf{u}, s) = \frac{1}{\mathrm{d}\mathbf{r}_f{}^3} \int_0^s \int_{\mathrm{d}\mathbf{r}_f{}^3} \rho_\nu(\mathbf{u}.\mathbf{n_I}) \delta\left(s' - s_0(\mathbf{r}', \mathbf{u})\right) \mathrm{d}\mathbf{r}' \mathrm{d}s' \tag{2.5}$$

où α_ν et $\rho_\nu = 1 - \alpha_\nu$ sont respectivement l'absorptivité et la réflectivité monochromatiques directionnelles des interfaces qui dépendent généralement de la fréquence ν et du produit scalaire $(\mathbf{u}.\mathbf{n_I})$ avec $\mathbf{n_I}$ la normale à l'interface au point d'extinction I.
Par la suite, on admettra que la surface des particules est rugueuse et grise, que la réflexion est alors diffuse isotrope et α ne dépend ni de ν ni de $(\mathbf{u}.\mathbf{n_I})$. Dans ces conditions, les probabilités cumulées d'absorption et de diffusion s'écrivent :

$$P_a(M, \mathbf{u}, s) = (1 - \omega)\, G_{ext}(M, \mathbf{u}, s) \tag{2.6}$$

$$P_{sc}(M, \mathbf{u}, s) = \omega\, G_{ext}(M, \mathbf{u}, s) \tag{2.7}$$

avec l'albédo $\omega = 1 - \alpha$.

Enfin, la fonction de phase générale définie à partir de la réflectivité monochromatique bidirectionnelle locale $\rho''_\nu(\mathbf{u_i}, \mathbf{u_r}, \mathbf{n})$ s'écrit :

$$\frac{1}{4\pi} p_\nu(\mathbf{u_i}, \mathbf{u_r}, \mathbf{r}) \mathrm{d}\Omega_r = \frac{\displaystyle\int_{\mathrm{d}\mathbf{r}_f{}^3/\mathbf{n}(\mathbf{r}').\mathbf{u_r}\geq 0} \rho''_\nu(\mathbf{u_i}, \mathbf{u_r}, \mathbf{n}(\mathbf{r}')) \left(\mathbf{n}(\mathbf{r}').\mathbf{u_r}\right) \mathrm{d}\mathbf{r}' \mathrm{d}\Omega_r}{\displaystyle\int_{4\pi}\int_{\mathrm{d}\mathbf{r}_f{}^3/\mathbf{n}(\mathbf{r}').\mathbf{u_r}\geq 0} \rho''_\nu(\mathbf{u_i}, \mathbf{u_r}, \mathbf{n}(\mathbf{r}')) \left(\mathbf{n}(\mathbf{r}').\mathbf{u_r}\right) \mathrm{d}\mathbf{r}' \mathrm{d}\Omega_r} \tag{2.8}$$

Comme précédemment, les surfaces sont supposées grises et rugueuses, la réflectivité bidirectionnelle ne dépend donc pas des directions d'incidence et de réflexion, ni de la fréquence. Dans ces conditions, la fonction de phase générale s'écrit :

$$\frac{1}{4\pi} p(\mathbf{u_i}, \mathbf{u_r}, \mathbf{r}) \mathrm{d}\Omega_r = \frac{\displaystyle\int_{\mathrm{d}\mathbf{r}_f{}^3/\mathbf{n}(\mathbf{r}').\mathbf{u_r}\geq 0} \left(\mathbf{n}(\mathbf{r}').\mathbf{u_r}\right) \mathrm{d}\mathbf{r}' \mathrm{d}\Omega_r}{\displaystyle\int_{4\pi}\int_{\mathrm{d}\mathbf{r}_f{}^3/\mathbf{n}(\mathbf{r}').\mathbf{u_r}\geq 0} \left(\mathbf{n}(\mathbf{r}').\mathbf{u_r}\right) \mathrm{d}\mathbf{r}' \mathrm{d}\Omega_r} \tag{2.9}$$

2.2.2 Définition d'un volume élémentaire

Les fonctions statistiques sont précédemment explicitées de façon locales : l'intégrale porte sur un volume élémentaire dans lequel toutes les configurations locales possibles sont statistiquement représentées. Ces volumes élémentaires n'ont de sens que s'ils sont suffisamment grands dans au moins une dimension.

Dans le cas d'un empilement de particules proche d'une paroi, le gradient de porosité est très important dans la direction normale à la paroi et ce gradient de porosité va induire un gradient de température important dans l'empilement au voisinage de la paroi et conduire à un comportement non monotone de la température (voir chapitre 4). Les volumes élémentaires doivent donc avoir une taille caractéristique δ_{VE} petite devant l'échelle des hétérogénéités (taille des particules ou taille des pores) dans la direction normale à la paroi, telle qu'à l'échelle δ la porosité et la température varient peu, soit :

$$\frac{\Delta\Pi}{\Pi} << 1 \text{ et } \frac{\Delta T}{T} << 1 \tag{2.10}$$

ce qui est en pratique vérifié pour $\delta_{VE} \leq 0.05D$ avec D la taille caractéristique des particules. Cette approche a un sens dans la mesure où le milieu est considéré comme infini dans les dimensions parallèles à la paroi ce qui permet de définir statistiquement avec précision la porosité locale $\Pi(M)$. On verra par la suite qu'à cette échelle, les volumes élémentaires sont optiquement minces suivant la direction normale à la paroi.

D'autre part, dans les directions parallèles à la paroi les empilements sont considérés statistiquement homogènes. On définit donc les volumes élémentaires de la façon suivante :

- Empilements entre deux plans normaux à l'axe x (figures 2.2(a) et 2.2(b)) : les volumes élémentaires sont les tranches comprises entre les plans situés en x_i et $x_{i+1} = x_i + \delta_{VE}$, et le milieu est statistiquement homogène selon les axes y et z de dimensions L_y et L_z.
- Empilements dans un tube (figures 2.3 et 2.4) : les volumes élémentaires sont de forme tubulaire, compris dans l'intervalle $[r_i; r_i + \delta_{VE}]$, et le milieu est statistiquement homogène dans les directions axiale, de dimension L_z, et azimutale.

Enfin, le volume doit être suffisamment grand pour que toutes les configurations possibles soient représentées : les dimensions L_y et/ou L_z doivent être grandes devant la taille des particules D. Pour déterminer la valeur minimale des longueurs L_y et L_z, la convergence statistique sur la porosité dans un empilement de sphères entre deux plans est estimée. Pour cela, la porosité est calculée sur N_{VE} empilements de mêmes dimensions L_y et L_z selon les axes y et z. La dispersion des résultats autour de la porosité moyenne est donnée par l'écart type :

$$\sigma_{VE}(i_x) = \sqrt{\frac{\sum_{n=1}^{N_{VE}} \left(\Pi(i_x)_n - < \Pi(i_x) >_{VE}\right)^2}{N_{VE} - 1}} \tag{2.11}$$

où $\Pi(i_x)_n$ est la porosité dans le volume élémentaire i_x pour le $n$ième empilement, et est $< \Pi(i_x) >_{VE}$ la porosité moyenne sur les N_{VE} empilements distincts.

L'écart type relatif moyen sur la porosité se calcule par :

$$\sigma_{VE} = \frac{1}{N_C} \sum_{i_x=1}^{N_C} \frac{\sigma_{VE}(i_x)}{< \Pi(i_x) >_{VE}} \tag{2.12}$$

avec N_C le nombre de volumes élémentaires. On considère que les volumes élémentaires sont suffisamment grands dans les directions transverses lorsque $\sigma_{VE} \simeq 1\%$. Les résultats sont présentés table (2.2) pour quelques dimensions $L_y = L_z$. Pour $L_y = L_z = 15D$, le critère $\sigma_{VE} \simeq 1\%$ est presque vérifié. On considère par extrapolation que $\sigma_{VE} < 1\%$ pour L_y et/ou L_z supérieures ou égales à $20D$, et on travaillera par la suite avec des volumes élémentaires de cette taille dans les directions autres que celle du gradient de porosité.

$L_y = L_z$	σ_{VE}
$5D$	7%
$10D$	3%
$15D$	1.2%

Table 2.2 – *Écart-type moyen sur la porosité calculée dans des volumes élémentaires de tailles variables. On considère que le volume élémentaire est suffisamment grand dans les directions transverses pour* $\sigma_{VE} \simeq 1\%$.

Remarque : l'intérêt des volumes élémentaires ainsi définis est que leur dimension δ_{VE} dans la direction normale à la paroi peut être très petite. Il suffit qu'il soit suffisamment grand dans les autres directions pour être statistiquement représentatif. Les résultats obtenus dépendront bien évidement de la taille δ_{VE} si celle-ci est trop grande pour décrire correctement les hétérogénéités. Il s'agit d'un équilibre entre précision et temps de calcul.

2.2.3 Algorithme de Monte Carlo

Les fonctions statistiques radiatives ont donc été explicitées, et s'écrivent toutes sous forme intégrale. De plus, les probabilités cumulées d'absorption et de diffusion s'expriment directement à partir de la fonction de distribution cumulée d'extinction G_{ext} et de l'albédo ω. Une méthode de Monte Carlo est appropriée pour le calcul de G_{ext}, de la porosité locale $\Pi(x)$ ou $\Pi(r)$ (*i.e.* la probabilité de présence de la phase fluide) et de la fonction de phase p.
Nous avons vu que le milieu étant hétérogène, il est discrétisé en N_C volumes élémentaires. Dans certains volumes élémentaires, la porosité est très faible de sorte que la probabilité de tirer un point dans la phase fluide est faible. Pour que les fonctions statistiques soient déterminées avec la même précision dans ces volumes que dans les volumes à porosité plus élevée, on s'assure que le nombre total de rayons tirés à partir de la phase fluide $N_f(i)$ est le même dans chaque volume élémentaire i.
On définit de plus des zones qui contiennent un grand nombre de volumes élémentaires. Ces zones ont pour but, lorsque l'empilement de particules est de grande taille, de le fragmenter en un nombre N_z zones de taille (arbitraire) petite devant l'empilement mais grande devant la taille des volumes élémentaires (voir figure (2.6)). Ces zones ne sont pas nécessaires pour ce qui est du principe de la méthode de Monte Carlo, mais elles accélèrent considérablement les calculs dans le cas d'empilements de grandes tailles.
Les principales étapes de la méthode de Monte Carlo pour la caractérisation sont les suivantes :
(1) Étape préliminaire : le milieu est découpé en N_z zones, comme représenté sur la figure (2.6). Pour chaque zone, les particules s'y trouvant (en totalité ou

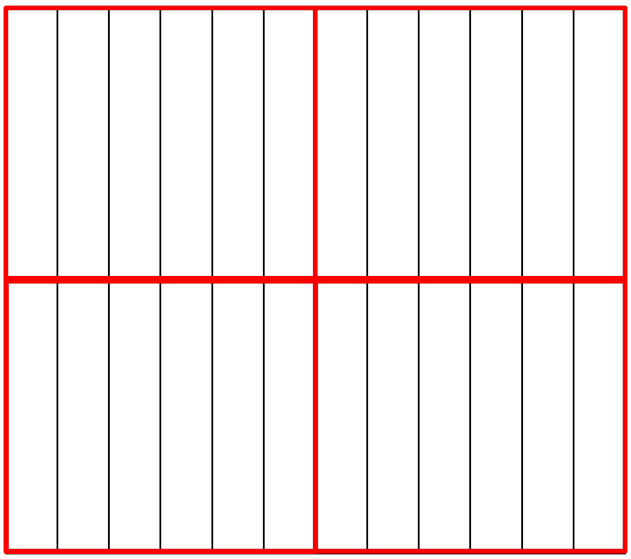


FIGURE 2.6 – *En 2D, 4 zones délimitées par les traits rouges sont représentées. Ces zones peuvent contenir plusieurs particules ; les volumes élémentaires, délimités par des traits noirs, sont eux petits par rapport à la taille des particules. Les zones n'ont pas d'autre utilité que de diminuer les temps de calcul lorsque l'empilement est de grande taille.*

en partie) sont identifiées et implémentées dans un tableau. De cette façon, pour un point M, il est facile de connaitre la zone où il se trouve, puis les coordonnées et orientations des particules avoisinantes.

(2) Pour chaque volume élémentaire, les coordonnées d'un point M sont aléatoirement engendré sur les frontières du volume élémentaire. On cherche si le point tiré est dans la phase fluide ou dans la phase solide :
   - Si le point est tiré dans la phase solide, le nombre total de points tirés dans ce volume élémentaire $N_{tot}(i)$ est incrémenté et le calcul est repris à l'étape (2) ;
   - Si le point est tiré dans la phase fluide, les deux variables $N_{tot}(i)$ et $N_f(i)$ sont incrémentée et le calcul passe à l'étape suivante.

(3) Une direction de propagation $\mathbf{u}(\theta, \varphi)$ est engendrée aléatoirement.

(4) Un impact entre le rayon $(M, \mathbf{u})$ et une des particules dans la zone est recherché. S'il n'y a pas d'impact, le rayon se propage jusqu'à la zone suivante, et ce jusqu'à ce qu'il impacte une particule. Les coordonnées du point d'impact I sont alors déterminées. Le rayon peut aussi atteindre les parois sans impacter aucune particule de l'empilement : la point d'impact est alors sur la paroi.

(5) A la suite d'un impact en I, la distance d'extinction MI est calculée afin d'incrémenter la fonction G_{ext}.

(6) La normale locale en I est déterminée afin de tirer aléatoirement une direction de diffusion respectant la condition de non-pénétration du rayon diffusé

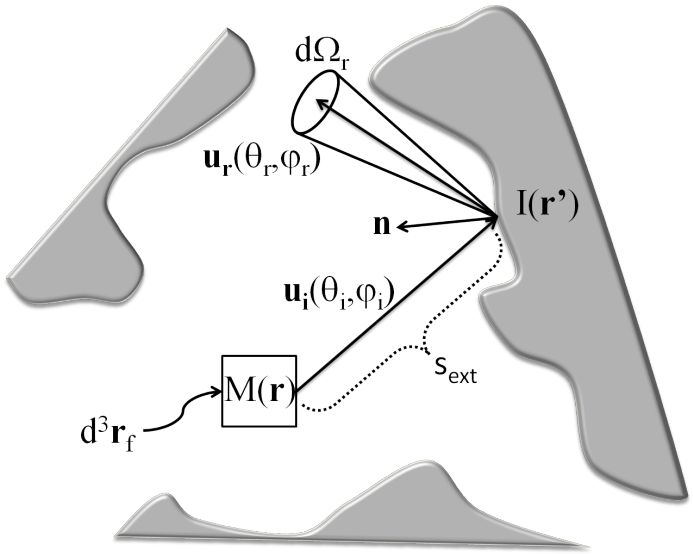


Figure 2.7 – *Représentation schématique de l'étape de lancer de rayon de l'algorithme de Monte Carlo pour la caractérisation des propriétés radiatives.*

dans la phase solide. La fonction de phase p est alors incrémentée.

(7) Retour à l'étape (2) jusqu'à ce que $N_f(i)$ atteigne la limite imposée par l'utilisateur. Les étapes (2) à (7) sont alors répétées à partir d'un nouveau volume élémentaire.

La porosité est finalement déterminée dans chaque volume élémentaire par :

$$\Pi(i) = \frac{N_f(i)}{N_{tot}(i)} \tag{2.13}$$

et les fonctions de distribution G_{ext} et de phase p sont normalisées selon les équations (2.3) et (2.9). Un schéma représentatif de l'algorithme est présenté figure (2.7).

2.2.4 Paramètres de calcul

Il est enfin nécessaire de préciser les paramètres utilisés pour les calculs. En l'absence d'indications contraires, les paramètres de calcul présentés ici seront utilisés pour la génération de tous les résultats présentés dans les chapitres suivants.

2.2.4.1 Taille des zones

La taille des zones doit être optimisée pour contrôler les temps de calcul. L'algorithme inclut en effet une boucle pour la recherche du point d'impact d'un rayon : recherche d'un impact dans la zone, sinon propagation dans la zone suivante. Si la zone est trop grande, l'étape de recherche du point d'impact peut

être très longue. Au contraire, si la zone est trop petite, un grand nombre de changement de zones sera nécessaire avant d'impacter une particule. La taille optimale de la zone correspond au libre parcours moyen d'un rayon dans le milieu. Pour un empilement isotrope compact Beerien de sphères de diamètre D, le coefficient d'extinction peut être estimé par (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2013)

$$\beta = \frac{3}{4D}\left(\frac{1}{\Pi} - 1\right) \tag{2.14}$$

où la porosité moyenne Π vaut 0.4. Le libre parcours moyen $1/\beta$ est donc de l'ordre de grandeur de la taille des particules. Par la suite, le milieu sera donc toujours découpé en zones de tailles données par la taille des particules de l'empilement.

2.2.4.2 Discrétisation angulaire

En plus de la discrétisation selon l'axe normal à la paroi (axe x ou r) en N_r valeurs, il est nécessaire d'utiliser une discrétisation angulaire uniforme en angle solide.
La fonction $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ par exemple est un tableau de $N_r N_\mu N_\varphi N_s$ valeurs, où N_μ, N_φ et N_s désignent respectivement le nombre de valeurs discrètes possibles de μ, φ et s. Pour limiter la taille de ce tableau, la discrétisation choisie est telle que :
- $\mu = \cos\theta$, compris entre -1 et 1, est discrétisé avec un pas $\mathrm{d}\mu = 0.1$, soit $N_\mu = 20$ valeurs ;
- φ, compris entre 0 et π (on utilise la symétrie des milieux), est discrétisé avec un pas $\mathrm{d}\varphi = \pi/20$, soit $N_\varphi = 20$ valeurs.

Le même nombre de rayons N_{tir} sera tiré pour chaque triplet de valeurs (i_r, i_μ, i_φ), et N_{tir} doit être suffisamment grand pour assurer la convergence de $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$.

2.2.4.3 Convergence statistique de la méthode de Monte Carlo

In convient de s'assurer de la convergence statistique de la méthode de Monte Carlo. Pour cela, le calcul de $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ est répété plusieurs fois (avec à chaque fois une nouvelle initialisation du générateur de nombre aléatoire) et la dispersion des estimations de $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ est calculée autour de la valeur moyenne sur toutes les réalisations. Soit $N_g = 10$ le nombre d'estimations de $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$; l'écart type moyen est donné par :

$$\sigma_G^{MC} = \frac{1}{N_r N_\mu N_\varphi N_s} \sum_{N_r N_\mu N_\varphi N_s} \sigma_G^{MC}(i_r, i_\mu, i_\varphi, i_s) \tag{2.15}$$

avec

$$\sigma_G^{MC}(i_r, i_\mu, i_\varphi, i_s) = \sqrt{\frac{\sum_{i_g=1}^{N_g} \left(G_{ext}(i_r, i_\mu, i_\varphi, i_s)_{i_g} - < G_{ext}(i_r, i_\mu, i_\varphi, i_s) >\right)^2}{N_g - 1}} \tag{2.16}$$

et

$$< G_{ext}(i_r, i_\mu, i_\varphi, i_s) >= \frac{\sum_{i_g=1}^{N_g} G_{ext}(i_r, i_\mu, i_\varphi, i_s)_{i_g}}{N_g} \tag{2.17}$$

où $G_{ext}(i_r, i_\mu, i_\varphi, i_s)_{i_g}$ désigne la fonction de distribution cumulée d'extinction calculée pour la réalisation i_g.
On a tout d'abord vérifié que cet écart-type décroît bien au delà d'un certain nombre de tirs en $1/\sqrt{N_{tir}}$ où N_{tir} est le nombre de tirs par volume élémentaire et domaine angulaire. Cette étude nous a par ailleurs amenés à la conclusion que la convergence est généralement atteinte pour $N_{tir} \geq 1.10^6$ par volume élémentaire et par direction.

Il est d'autre part indispensable que le générateur de nombres aléatoires ait une période grande devant le carré du nombre de nombres aléatoires utilisés. Typiquement, pour $N_r = 100$, $N_\mu = 20$ et $N_\varphi = 20$, soit 4.10^4 configurations, 1.10^6 tirs par configuration et au maximum 5 nombres aléatoires par tir, l'algorithme nécessitera la génération de 2.10^{11} nombres aléatoires indépendants. Le générateur de nombres pseudo-aléatoires de Mersenne-Twister ayant une période de $2^{19937} - 1 \simeq 10^{6000}$, la condition $(2.10^{11})^2 << 10^{6000}$ est bien vérifiée et les nombres aléatoires engendrés par cet algorithme seront effectivement indépendants. Le calcul de la fonction de phase nécessite la génération de nombres aléatoires supplémentaires, mais la condition reste bien vérifiée.

2.2.4.4 Opacité du milieu

Afin de tabuler les fonctions de distribution cumulée d'extinction, il est nécessaire de définir une longueur maximale de propagation des tirs. Pour cela, on examine l'opacité du milieu. Cette longueur maximale d'extinction est définie dans des zones éloignées des parois. En effet, en proche paroi le milieu n'est pas opaque : la transmission ne tend pas vers 0 puisqu'un certain nombre de rayons sortent du milieu poreux pour impacter la paroi. La tranmission dans une direction transverse au cœur du milieu poreux est donc calculée. On considère arbitrairement que la distance maximale d'extinction est atteinte pour une transmission inférieure à 10^{-6}, c'est-à-dire :

$$1 - G_{ext}(M, \mathbf{u}, s_{max}) < 10^{-6} \tag{2.18}$$

En pratique, on trouve dans les différents types de milieux $s_{max} \simeq 5D$.

2.2.4.5 Temps de calcul

Le code étant parallélisé sur N_{proc} processeurs, le temps de calcul peut être approximativement estimé par :

$$t \simeq \left(\frac{aN_{tir}}{N_{proc}} + b \right) N_r N_\mu N_\varphi \tag{2.19}$$

où a et b sont associés respectivement au temps de calcul d'un lancer d'un rayon, et au temps d'écriture des tableaux de résultats. Typiquement, pour $N_r N_\mu N_\varphi = 4.10^4$ et $N_{tir} = 10^6$ sur 10 processeurs, le calcul complet prend un peu plus d'une journée. Évidemment, le temps de calcul est 20 fois plus rapide pour les configurations entre deux plans, puisqu'une la dépendance en φ peut être omise.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les méthodes numériques permettant la génération d'empilements de particules de formes arbitraires dans des contenants tels que des boîtes ou des tubes. L'algorithme de génération d'empilement repose sur une digitalisation du domaine d'empilement et des particules. Cette digitalisation peut induire une erreur sur la morphologie des empilements ainsi formés, et la représentativité de ces empilements a donc été examinée.
Dans un second temps, les fonctions statistiques radiatives ont été explicitées dans le cas d'un milieu poreux homogénéisé. Un algorithme de calcul de ces fonctions a été présenté, ainsi que tous les paramètres de calcul qui seront utilisés par la suite. Ces calculs sont effectués pour chaque volume élémentaire de façon à prendre en compte l'hétérogénéité des milieux étudiés. La définition de ces volumes élémentaires est peu classique dans le cadre des méthodes d'homogénéisation des milieux poreux car leur taille est très inférieure à celle des pores dans au moins une direction (celle du gradient de porosité). Néanmoins, leur grande taille dans les autres directions assure une représentativité statistique dans ces directions.

Chapitre 3

Propriétés morphologiques et radiatives d'empilements de particules à fort gradient de porosité

Sommaire

3.1 Étude morphologique 57
3.1.1 Distribution des positions des particules 57
3.1.2 Profils de porosité 60
3.2 Propriétés radiatives 63
3.2.1 Propriétés radiatives théoriques loin des parois . . . 63
3.2.2 Fonctions de distribution proche de la paroi 63
3.2.3 Relation de réciprocité de la transmittivité 68
3.2.4 Coefficients radiatifs 70
3.2.5 Critère de validité de la loi de Beer 74
3.2.6 Fonctions de phase 76

Introduction

Dans les précédents chapitres, nous avons tout d'abord présenté une méthodologie pour la modélisation des transferts radiatifs. Nous avons mis en évidence le fait que dans des milieux poreux, une telle approche statistique est préférable car elle ne présuppose pas le caractère Beerien ou non du milieu étudié. Nous avons ensuite présenté les différentes méthodes numériques nécessaires pour la génération d'empilements aléatoires de particules et la caractérisation de ces empilements. Dans ce chapitre, nous allons appliquer ces différentes méthodes à trois empilements différents, en nous intéressant plus particulièrement aux spécificités des empilements à proximité des parois, où il est primordial de pouvoir correctement modéliser les transferts thermiques, et plus spécifiquement les transferts radiatifs, car c'est à la paroi qu'un flux est imposé.
Les trois empilements sont les suivants :

- Empilement A : Sphères de diamètre $D = 20\delta$ entre deux plans distants de $L = 30D$. Ce cas très académique a servi de base pour la validation des modèles en cours d'élaboration. Ce milieu est de grande taille, et on ne présentera parfois les résultats que dans la zone située à une distance de la paroi inférieure à $5D$ car au delà, le milieu devient très vite homogène et isotrope, c'est-à-dire Beerien.
- Empilement B : Sphères de diamètre $D = 20\delta$ dans un tube de diamètre $D_{tube} = 10D$. Cet empilement permet de retrouver des résultats similaires à ceux de l'empilement A mais avec une nouvelle définition des volumes élémentaires. Il permet donc de valider les méthodes numériques dans une configuration cylindrique.
- Empilement C : Cylindres de diamètre $D = 119\delta$ et de hauteur $H = 95\delta$ dans un tube de diamètre $D_{tube} = 600\delta \simeq 5D$. Ce cas correspond approximativement aux empilements de cylindres catalytiques dans les réacteurs tubulaires des vapo-reformers de méthane de Air Liquide.

Notons enfin que pour l'empilement A, on se placera systématiquement dans le repère cartésien $(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z})$ représenté sur la figure (3.1a), tandis que pour les empilements B et C, on se placera dans le repère tournant $(\mathbf{e_r}, \mathbf{e}_\theta, \mathbf{e_z})$ représenté sur la figure (3.1b). Dans les deux cas, l'axe z correspond toujours à l'axe vertical, parallèle aux parois.

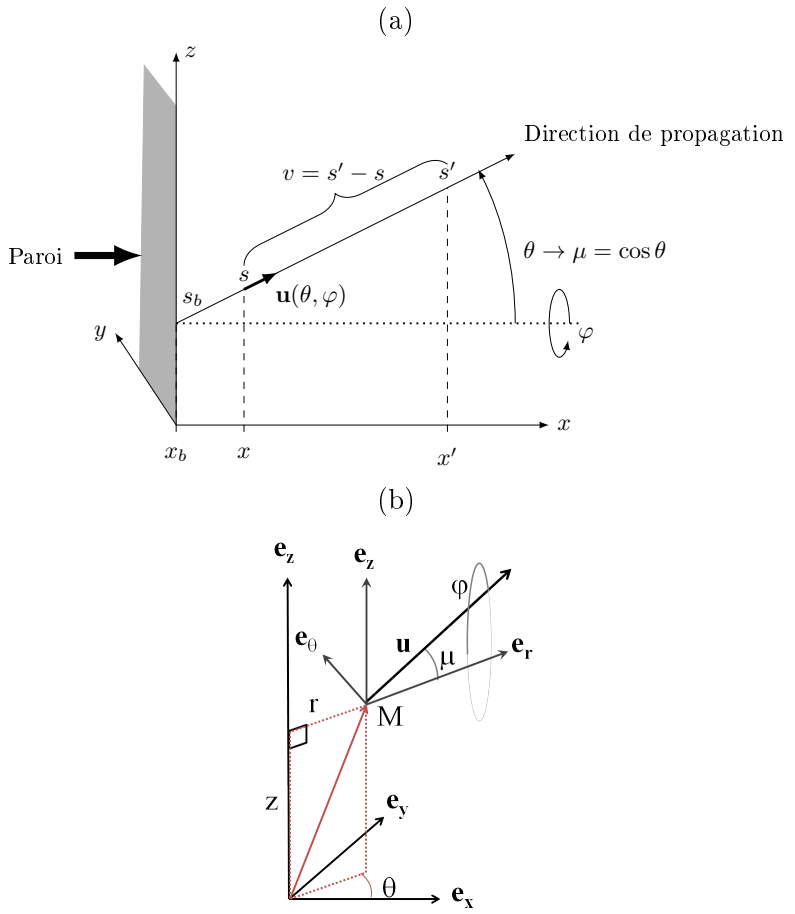


FIGURE 3.1 – *Coordonnées spatiales et angulaires dans les empilements A (a), B et C (b)*

3.1 Étude morphologique

3.1.1 Distribution des positions des particules

Même si l'empilement est engendré aléatoirement, la présence de la paroi va fortement impacter sa morphologie. En effet, une première rangée de particules va s'ordonner en contact direct avec la paroi, puis une deuxième rangée légèrement moins ordonnée en contact avec la première, et ainsi de suite jusqu'à ce que l'agencement imposé par la paroi disparaisse. Pour illustrer cet agencement, le plus probant est la représentation des positions des centres des particules de la figure (3.2).

Dans l'empilement A (figure (3.2a)), une première rangée de sphères est en contact direct avec la paroi : les centre sont donc en $x/D = 1/2$. Puis les quelques rangées de billes suivantes sont agencées en empilement hexagonal compact. Cet arrangement explique la distance presque constante entre les

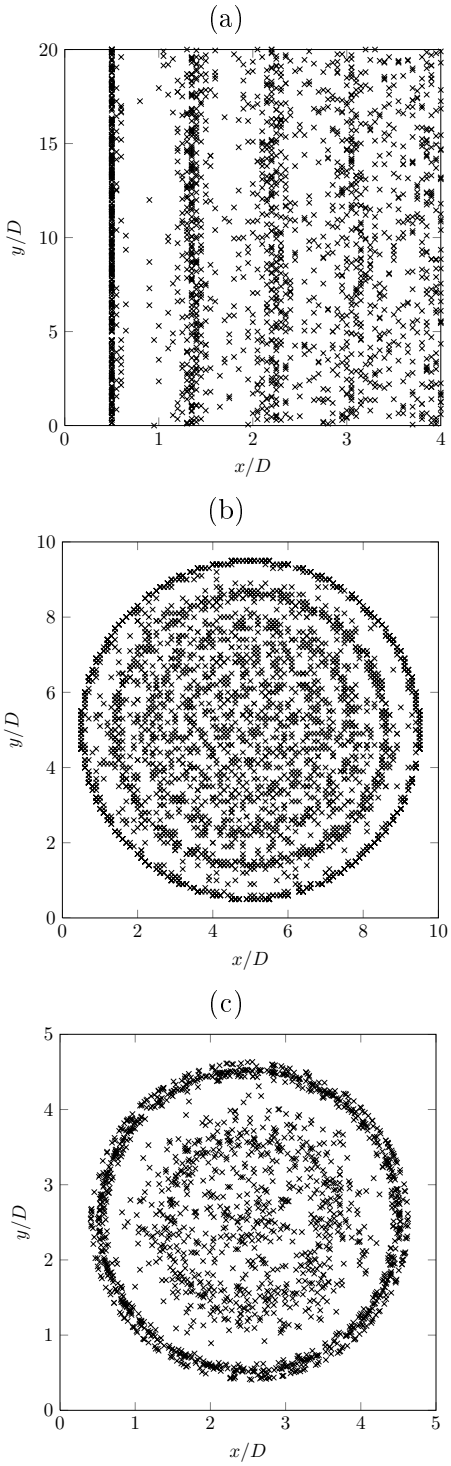


Figure 3.2 – *Positions des centres des particules dans le plan normal aux parois dans le cas d'un empilement de sphères entre deux plans (a) ; de sphères dans un tube (b) ; de cylindres dans un tube (c). Chaque symbole (+) correspond au centre d'une particule.*

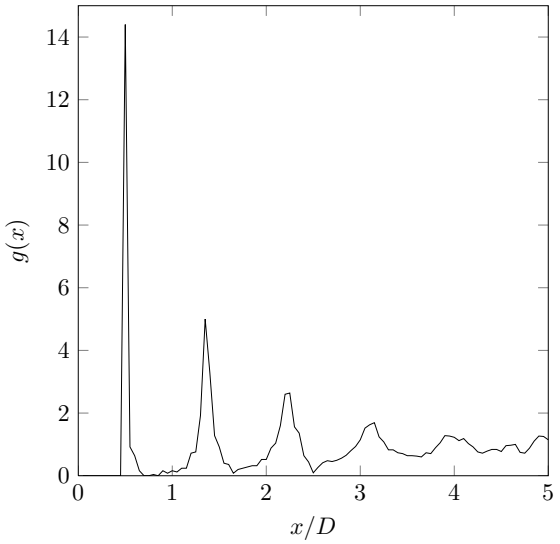


Figure 3.3 – *Fonction de distribution des positions des centres des sphères proche de la paroi $x = 0$ pour l'empilement A.*

rangées. Dans cette configuration, la distance entre deux plans correspond à la hauteur a d'un tétraèdre régulier d'arêtes égales à D, les sommets du tétraèdre étant occupés par les centres des sphères. On trouve

$$a = \frac{\sqrt{6}}{3} D \tag{3.1}$$

En réalité, dans l'espace digitalisé, les centres des sphères sont placés aux nœuds de la grille 3D. La distance entre les plans doit donc être un nombre entier de la taille des voxels δ, d'où $a = 17\delta$ pour $D = 20\delta$. Cette distance est en très bon accord avec les positions des pics de la fonction de distribution des centres des sphères présentée Fig.(3.3) et calculée pour l'empilement A par :

$$g(x) = \frac{N_x}{g_\infty} \tag{3.2}$$

où N_x est le nombre de sphères dont le centre est situé à la position x et g_∞ la densité moyenne de particules loin de la paroi. La comparaison des positions théoriques et réelles des pics de la fonction $g(x)$ est présentée dans la table (3.1). L'élargissement progressif des pics est bien sûr dû à la perte d'ordre au fur et à mesure qu'on s'éloigne de la paroi.

Position théorique du pic (x/D)	Position réelle du pic (x/D)
0.5	0.5
1.35	1.35
2.2	2.25
3.05	3.05

Table 3.1 – *Positions théoriques et réelles des pics de la fonction de distribution des positions des centres des sphères pour l'empilement A.*

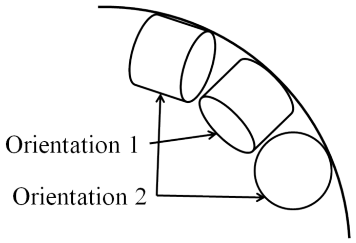


Figure 3.4 – *Orientations préférentielles des cylindres en contact avec la paroi du tube dans le cas de l'empilement C.*

Pour l'empilement B, on observe aussi sur la figure (3.2b) une première rangée de sphères en contact avec la paroi : les centres sont situés au rayon $R_{tube} - D/2$. On voit un deuxième niveau d'arrangement puis l'ordre disparaît assez rapidement : le milieu semble alors statistiquement homogène.
Enfin, il est intéressant de noter que pour l'empilement C, les cylindres vont s'agencer avec deux orientations préférentielles à la paroi, comme illustré sur la figure (3.4). La première orientation (la moins représentée) correspond au premier pic de la fonction $g(r)$ en $(R_{tube} - r)/D = 0.42$ sur la figure (3.5), ce qui correspond à $r = R_{tube} - H/2$. La deuxième orientation (la plus représentée) correspond au deuxième pic de $g(r)$ en $(R_{tube} - r)/D = 0.52$ ce qui est en accord avec $r = R_{tube} - D/2$. La largeur relativement importante de ce pic vers la droite est due à la possibilité de rotation de l'axe du cylindre entre $[0; \pi]$ comme représenté sur la figure (3.4).

3.1.2 Profils de porosité

Les profils de porosité ont été calculés par la méthode de Monte Carlo présentée au chapitre précédent dans les trois empilements considérés ici. Ces profils sont présentés dans la Fig.(3.6).

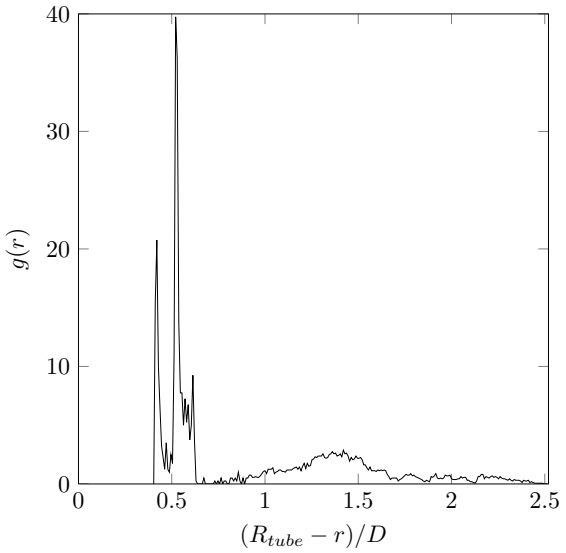


Figure 3.5 – *Fonction de distribution radiale des positions des centres des cylindres (empilement C).*

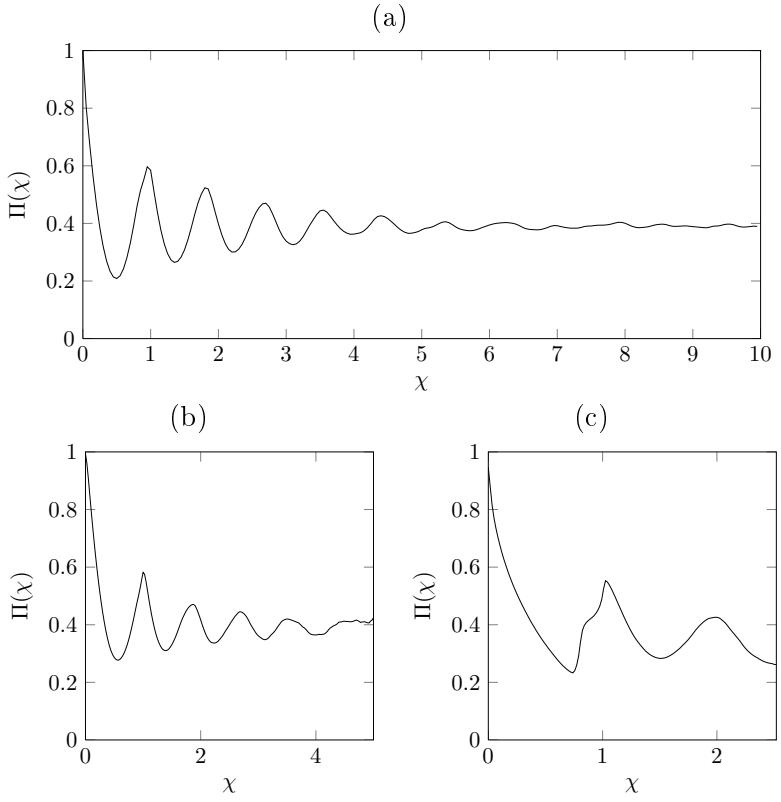


Figure 3.6 – *Profil de porosité pour les empilements A (a), B (b) et C (c) en fonction de la distance à la paroi adimensionnée $\chi = x/D$ (cas A) ou $\chi = (R_{tube} - r)/D$ (cas B et C).*

Dans les trois empilements, en proche paroi les profils de porosité varient fortement : on observe des oscillations amorties. Dans l'empilement A, les positions des minima correspondent aux positions des pics de la fonction de distribution des positions de sphères $g(x)$, et le profil de porosité s'explique donc aisément. Les oscillations les plus amorties sont évidement observées dans le cas C, ce qui correspond à une transition ordre/désordre plus rapide ; dans le cas A au contraire, les oscillations sont les moins amorties, et l'impact de la paroi sur l'agencement des particules semble disparaître pour une distance à la paroi supérieure ou égale à 5 diamètres de particules.
Intéressons-nous à présent à l'aire spécifique A, c'est-à-dire l'aire d'interface par unité de volume total du milieu poreux. Elle a été calculée de façon analytique dans le cas de l'empilement A. Loin de la paroi (pour $x > 5D$), on trouve $AD = 3.66$ pour une porosité $\Pi = 0.39$. Dans un empilement statistiquement homogène et isotrope de sphères de diamètre D, l'aire spécifique est reliée à la porosité par la relation

$$A = \frac{6}{D}(1 - \Pi) \tag{3.3}$$

relation qui est vérifiée dans notre cas.

3.2 Propriétés radiatives

3.2.1 Propriétés radiatives théoriques loin des parois

La fonction de distribution des longueurs des cordes dans un milieu statistiquement isotrope et homogène de sphères non-interpénétrantes opaques dans une phase fluide transparente est rigoureusement exponentielle (Torquato and Lu 1993). Par conséquent, on s'attend à ce que $1 - G_{ext}$ soit exponentielle loin des parois où l'empilement est statistiquement homogène et isotrope.
De plus, pour un milieu poreux statistiquement homogène et isotrope de porosité Π et d'aire spécifique A constitué d'une phase opaque et d'une phase de propagation transparente, le coefficient d'extinction à la limite optiquement mince est donné par (Tancrez and Taine 2004)

$$B_{ot} = \frac{A}{4\Pi} \tag{3.4}$$

En prenant en compte la relation 3.3 entre Π et A, B_{ot} s'écrit encore

$$B_{ot} = \frac{3}{2D}\left(\frac{1}{\Pi} - 1\right) \tag{3.5}$$

On s'intéresse tout d'abord aux propriétés radiatives des empilements de type A et B loin des parois. Les fonctions de distribution cumulée sont calculées par la méthode de Monte Carlo présentée dans le chapitre précédent. Loin de la paroi, pour les empilements A et B, les milieux étant statistiquement homogènes, un coefficient d'extinction B_{RDFI} est calculé à partir de la méthode RDFI présentée dans le chapitre 1 (1.3.3.1). On définit l'épaisseur optique $s^+ = B_{RDFI}s$ avec s la distance d'extinction. Comme illustré sur la figure (3.7), la courbe $\ln(1 - G_{ext})$ en fonction de s^+ est une droite : le milieu est Beerien.
Les coefficients d'extinction B_{RDFI} sont ensuite comparés aux coefficients d'extinction théoriques B_{ot} dans le cas d'un milieu poreux statistiquement isotrope donnés par l'équation (3.5). Les résultats des simulations de Monte Carlo présentés dans la table (3.2) sont en accord avec les résultats théoriques, avec une erreur inférieure à 3%. Cela permet de valider les résultats obtenus par le code.

Cas	Porosité moyenne	$B_{ot}D$ théorique	$B_{RDFI}D$ calculé	Erreur
A	0.390	2.414	2.346	3%
B	0.389	2.404	2.352	2.2%

Table 3.2 – *Comparaison des coefficients d'extinction théoriques dans des empilements statistiquement homogènes et isotropes à leurs valeurs calculées à partir des fonctions G_{ext} (méthode RDFI).*

3.2.2 Fonctions de distribution proche de la paroi

Tout d'abord, notons que les fonctions de distribution cumulée d'extinction en proche paroi sont tronquées. En effet, dans le cas d'une propagation dans la

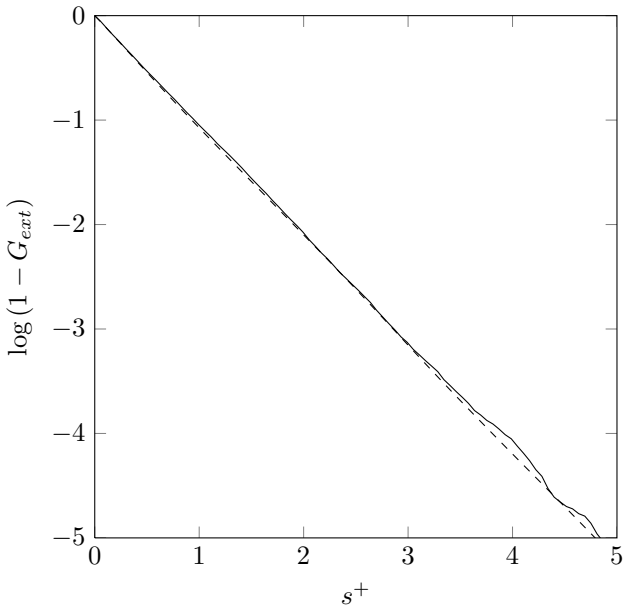


Figure 3.7 – *Fonctions de distribution cumulée d'extinction au cœur de l'empilement A (empilement de sphères entre deux plans, trait plein) ; de l'empilement B (empilement de sphères dans un tube, trait pointillé).*

direction de la paroi, la plupart des rayons issus d'un point M proche de la paroi impactent la paroi sans avoir été éteints par le milieu poreux. Toutes les fonctions $G_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$ sont donc tronquées au point M'_b appartenant à la paroi comme représenté sur la figure (3.8), et $G_{ext}(M, \mathbf{u}, M'_b)$ permet alors de calculer l'intensité incidente sur les parois.
Dans un premier temps, les fonctions de distribution cumulée d'extinction sont calculées dans le cas d'un empilement hexagonal compact parfait. La fonction de distribution $F_{ext}(M, \mathbf{u}, M')\mathrm{d}s$ représente la probabilité pour un rayon d'être éteint dans l'intervalle $[s, s+\mathrm{d}s]$ autour de M' sachant qu'il a été tiré en M dans la direction $\mathbf{u}$. La fonction $F_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$ est représentée pour différents points de tir $M(x)$ et pour la direction de propagation $\mathbf{u} = -\mathbf{x}$ sur la figure (3.9). On rappelle que $F_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$ tout comme $G_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$ ne dépend que de la morphologie du milieu poreux. Des sphères de l'empilement hexagonal compact parfait sont donc représentées sur la même figure (centres situés respectivement en $x/D = 0.5$ et $x/D = 1.35$, en accord avec les positions des centres données table 3.1).
Les positions des pics de la fonction $F_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$ correspondent aux points où la probabilité d'extinction est la plus importante. Leurs positions sont donc tout-à-fait en accord avec celles des premiers points d'impact des sphères. En revanche, on remarque que la probabilité d'extinction en $x'/D = 1$ n'est pas la même pour les rayons issus de $x/D = 1.35$ où on observe un pic d'extinction, et les rayons issus de $x/D = 2.25$ où cette probabilité est nulle. La dépendance

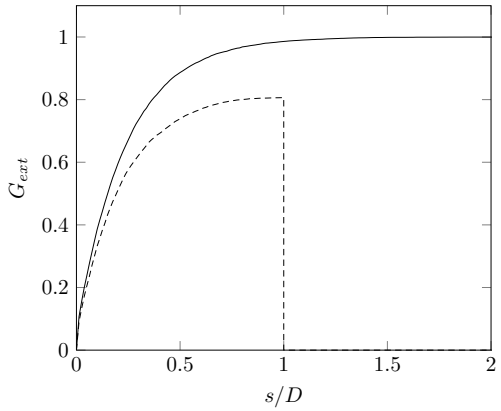


Figure 3.8 – *Fonctions de distribution cumulée d'extinction dans l'empilement A ;* $x/D = 0.5$ *;* $\mathbf{x}.\mathbf{u} = -0.5$ *: trait pointillé,* $\mathbf{x}.\mathbf{u} = 0$ *: trait plein. Dans la direction* $\mathbf{x}.\mathbf{u} = 0$ *les rayons n'atteignent pas la paroi. Dans la direction* $\mathbf{x}.\mathbf{u} = -0.5$ *les rayons atteignent la paroi après avoir parcouru une distance* $s = \mid x/\mathbf{x}.\mathbf{u} \mid$ *où* x *est l'abscisse du point de tir* M*.*

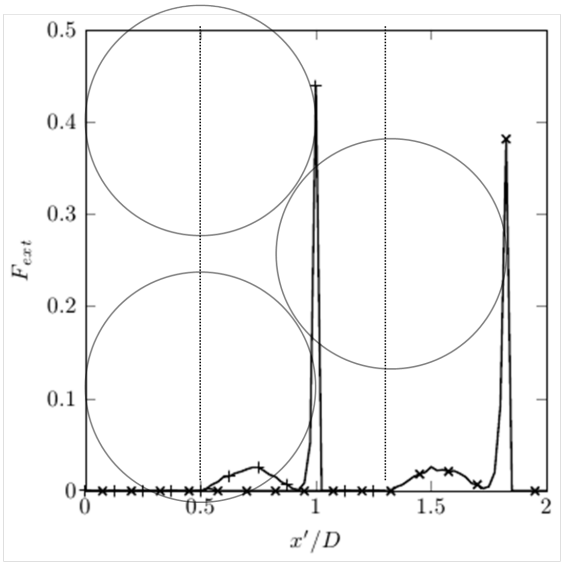


Figure 3.9 – *Fonction de distribution* $F_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$ *dans la direction* $\mathbf{u} = -\mathbf{x}$ *à partir de* $x/D = 1.35$ *(+) ;* $x/D = 2.25$ *(×).*

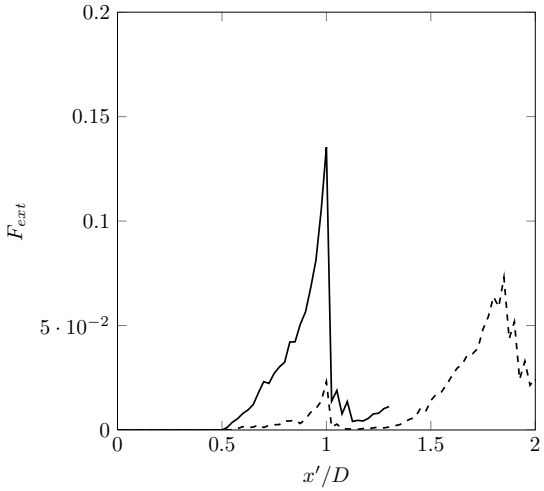


FIGURE 3.10 – *Fonction de distribution $F_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$ dans la direction $\mathbf{u} = -\mathbf{x}$ pour l'empilement A à partir de $x/D = 1.35$ (trait plein) ; $x/D = 2.25$ (trait pointillé).*

de cette probabilité par rapport au lieu de tir illustre le caractère non Beerien de l'empilement hexagonal compact.
On s'intéresse à présent aux empilements A et B. Les fonctions de distribution $F_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$ sont calculées de la même façon et sont représentées sur la figure (3.10). Seul le cas de l'empilement A est représenté, des résultats identiques étant obtenus dans le cas de l'empilement B. Les pics d'extinction sont situés aux mêmes positions que dans le cas de l'empilement hexagonal compact, mais sont plus larges du fait d'une plus faible organisation dans les empilements A et B que dans l'empilement hexagonal compact.
Quelques fonctions de distribution cumulée d'extinction $\ln(1 - G_{ext})$ sont finalement représentées en fonction de la distance d'extinction pour les empilements B et C sur les figures (3.11) et (3.12). Pour l'empilement B au cœur de l'empilement ($r = 0$), la courbe semble être rectiligne : l'empilement tend à être isotrope, homogène, et Beerien. A mesure qu'on s'approche de la paroi, les courbes deviennent de mois en moins rectiligne : les effets de paroi du tube sont de plus en plus importants. Quant à l'empilement C, les courbes de $\ln(1 - G_{ext})$ ne sont rectilignes nulle part.
Il faut bien noter que si les courbes de $\ln(1 - G_{ext})$ ne sont pas des droites, cela peut être attribué soit à l'hétérogénéité des milieux, soit à leur caractère non Beerien. Seul le critère de validité de la loi de Beer ε_{RDFI} peut permettre de conclure quant au caractère Beerien ou non des milieux.

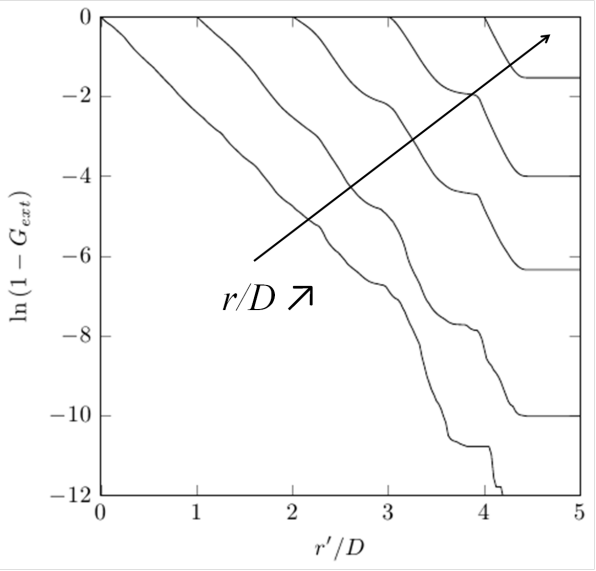


Figure 3.11 – $\ln(1 - G_{ext}(M(r), \mathbf{u}, M'(r')))$ *dans l'empilement B pour* $\mathbf{u} = \mathbf{e_r}$ *(direction de propagation radiale) et* $r/D = 0, 1, 2, 3$ *et* 4.

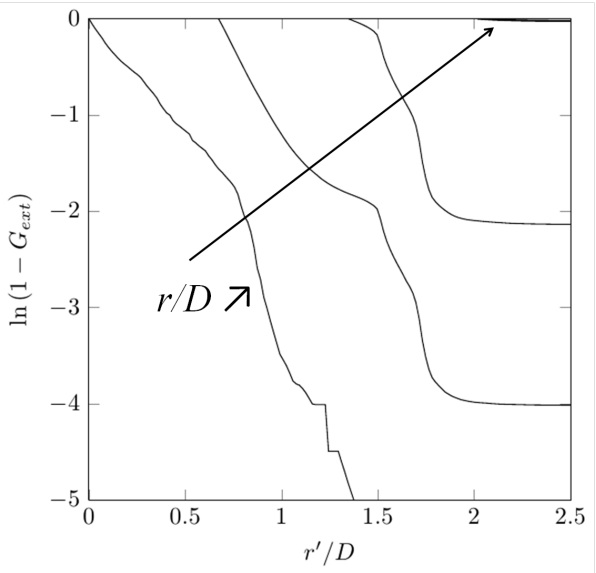


Figure 3.12 – $\ln(1 - G_{ext}(M(r), \mathbf{u}, M'(r')))$ *dans l'empilement C pour* $\mathbf{u} = \mathbf{e_r}$ *(direction de propagation radiale) et* $r/D = 0, 0.67, 1.33$ *et* 2.

3.2.3 Relation de réciprocité de la transmittivité

Avant de s'intéresser au caractère Beerien ou non des milieux étudiés, une relation fondamentale doit être vérifiée. Il s'agit de la relation de réciprocité de la transmittivité

$$\Pi(M)\left(1-G_{ext}(M,\mathbf{u},M')\right)=\Pi(M')\left(1-G_{ext}(M',-\mathbf{u},M)\right) \tag{3.6}$$

Cette relation sera démontrée rigoureusement dans le chapitre 4 et illustrée dans le cas de l'empilement A. Elle assure que la probabilité pour un rayon d'être transmis d'un point M à un point M' dans la phase de propagation est la même que la probabilité de transmission du point M' au point M.
Dans le cas des empilements B et C, les figures (3.13), (3.14) et (3.15) représentent des exemples de matrices $\ln\left(\Pi(M)\left(1-G_{ext}(M,\pm\mathbf{u},M')\right)\right)$ pour diverses directions $\mathbf{u}$: la symétrie des ces matrices est une illustration du respect de la relation (3.6). Pour chaque direction, on calcule l'écart moyen à la symétrie :

$$err=\frac{2}{N_r^2}\sum_{r_i<r_j}\frac{\mid\Pi(r_i)\left(1-G_{ext}(r_i,\mathbf{u},r_j)\right)-\Pi(r_j)\left(1-G_{ext}(r_j,-\mathbf{u},r_i)\right)\mid}{\mid\Pi(r_i)\left(1-G_{ext}(r_i,\mathbf{u},r_j)\right)+\Pi(r_j)\left(1-G_{ext}(r_j,-\mathbf{u},r_i)\right)\mid} \tag{3.7}$$

où r_i et r_j sont les coordonnées radiales discrètes des points M et M', et N_r le nombre de nœuds pour une direction de propagation. Cette erreur est principalement due aux approximations liées aux discrétisations angulaire et spatiale, et diminue donc si on affine les discrétisations.

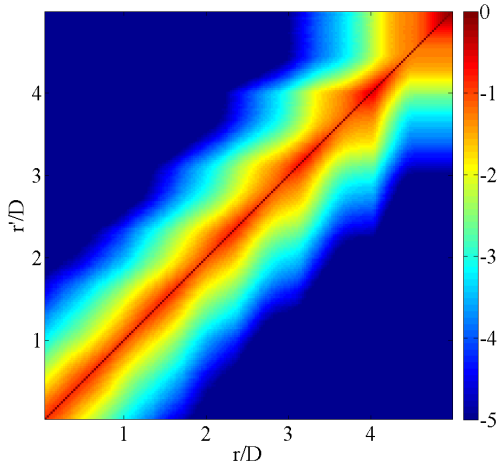


FIGURE 3.13 – $\ln\left(\Pi(M)\left(1-G_{ext}(M,\pm\mathbf{u},M')\right)\right)$ *pour* $\mathbf{u}=\pm\mathbf{e_r}$ *dans le plan* $(0,\mathbf{e_r},\mathbf{e}_\theta)$ *dans l'empilement B. On obtient une erreur moyenne* $err=2.2\%$.

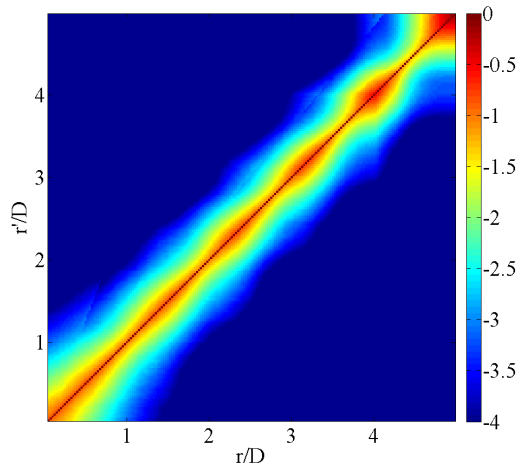


Figure 3.14 – $\ln\left(\Pi(M)\left(1-G_{ext}(M,\pm\mathbf{u},M')\right)\right)$ *pour* $\mathbf{u}.\mathbf{e_r} = \pm 0.6$ *dans le plan* $(0,\mathbf{e_r},\mathbf{e}_\theta)$ *dans l'empilement B. On obtient une erreur moyenne* $err = 3.2\%$.

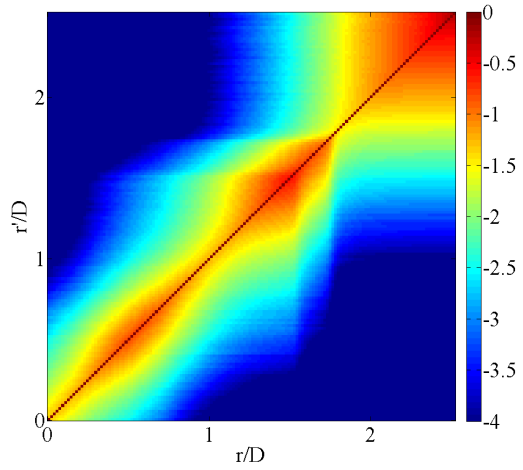


Figure 3.15 – $\ln\left(\Pi(M)\left(1-G_{ext}(M,\pm\mathbf{u},M')\right)\right)$ *pour* $\mathbf{u} = \pm\mathbf{e_r}$ *dans le plan* $(0,\mathbf{e_r},\mathbf{e}_\theta)$ *dans l'empilement C. On obtient une erreur moyenne* $err = 2.7\%$.

Les zones rouges étendues (par exemple les carrés en haut à droite de chaque matrice) correspondent à des zones où il a a peu d'extinction. On remarque donc que dans la direction $\mathbf{u} = \pm\mathbf{e_r}$ dans les empilements B et C, la transmittivité entre les éléments de volume situés à une distance inférieure à $r \simeq 0.5D$ de la paroi et la paroi est importante. Les éléments de volume situés à une distance supérieure à $r \simeq 0.5D$ de la paroi auront au contraire une transmittivité plus importante vers le cœur de l'empilement.

3.2.4 Coefficients radiatifs

On rappelle qu'on peut toujours définir des coefficients d'extinction B à partir des fonctions de distribution cumulée d'extinction. Ces coefficients n'ont de sens physique que si la loi de Beer est vérifiée. Dans ce cas, les coefficients B calculés sont les coefficients d'extinction de la phase continue Beerienne équivalente au milieu poreux, et ils sont uniques. Un modèle de transfert basé sur la loi de Beer tel que l'ETR peut être utilisé. En revanche, si la loi de Beer n'est pas vérifiée, ces coefficients n'ont aucun sens et ne peuvent pas être utilisés pour évaluer le transfert radiatif au sein des milieux étudiés.
Nous supposons donc dans un premier temps que la loi de Beer est valide dans les trois empilements étudiés, de façon à définir ces coefficients B. La validité de la loi de Beer est examinée dans un second temps à partir de ces coefficients B.
Les propriétés morphologiques et radiatives du milieu présentées jusqu'ici mettent en évidence les points suivants :

- Le milieu est très hétérogène à des échelles non négligeables devant la taille totale du milieu étudié. Cette hétérogénéité apparaît clairement au travers des oscillations du profil de porosité et des motifs des fonctions de distribution cumulée d'extinction. La taille caractéristique des hétérogénéités correspond à la taille des particules D, alors que la taille des milieux étudiés est de l'ordre de 5 à $10D$. Cette hétérogénéité, qui est produite par les parois, est localisée dans leur voisinage et le milieu peut être homogène loin des parois ;
- Pour un empilement statistiquement isotrope et homogène Beerien, on aurait un coefficient d'extinction donné par la relation (3.5). La porosité moyenne dans ces empilements compacts de sphères étant de l'ordre de 0.4, l'épaisseur optique pour une longueur caractéristique de l'hétérogénéité de D est donc de l'ordre de 2. En réalité, la porosité augmentant en proche paroi, l'épaisseur optique diminue. Dans des volumes élémentaires de taille inférieure à la taille caractéristique de l'hétérogénéité, le milieu ne peut donc en aucun cas être considéré comme optiquement épais.

Le milieu étant hétérogène et optiquement mince en proximité des parois, les coefficients B sont calculés à la limite optiquement mince, par la relation

$$B(M,\mathbf{u}) = \left(\frac{\mathrm{d}G_{ext}(M,\mathbf{u},s)}{\mathrm{d}s}\right)_{s\to 0} \tag{3.8}$$

Quelques résultats de calcul des coefficients B pour les empilements A, B et C sont présentés sur les figures (3.16), (3.17) et (3.18). On remarque pour l'empilement A (figure (3.16)) que loin des parois, les coefficients B convergent vers la valeur théorique du coefficient d'extinction à la limite optiquement mince. En proche paroi au contraire, les coefficients varient très fortement et de façon similaire au profil de porosité.

Remarque Bien que B soit défini à partir de la relation (3.8), il n'est pas judicieux d'utiliser cette expression numériquement car les résultats seraient déterminés avec une trop grande imprécision, à moins d'utiliser une discrétisation très fine de la fonction G_{ext} pour $s \to 0$.
B n'a de sens physique que dans des milieux Beeriens ou à la limite optiquement mince où le milieu peut toujours être considéré comme Beerien. Dans ces deux cas, G_{ext} s'exprime sous forme exponentielle. On utilise donc une régression linéaire pour déterminer B qui est donné précisément par la pente de $\ln(1 - G_{ext})$ pour s suffisamment petit.

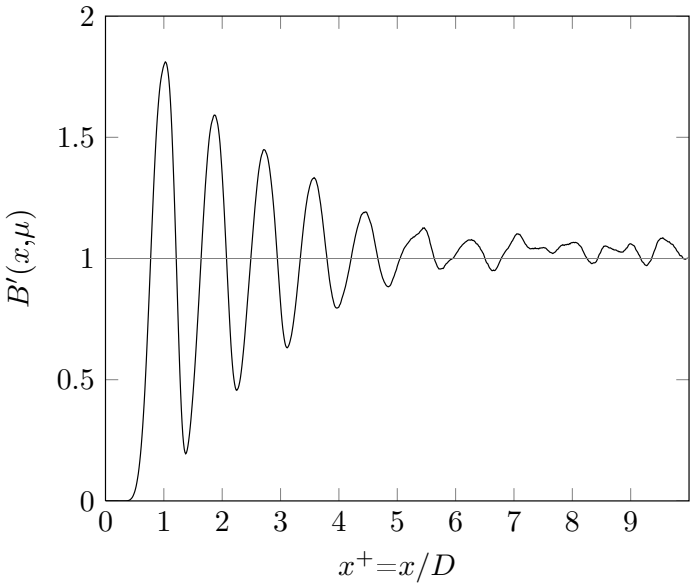


FIGURE 3.16 – *Coefficients radiatifs B pour l'empilement A et dans la direction $\mathbf{u} = -\mathbf{x}$, normalisés par le coefficient d'extinction loin des parois $B = A/4\Pi$.*

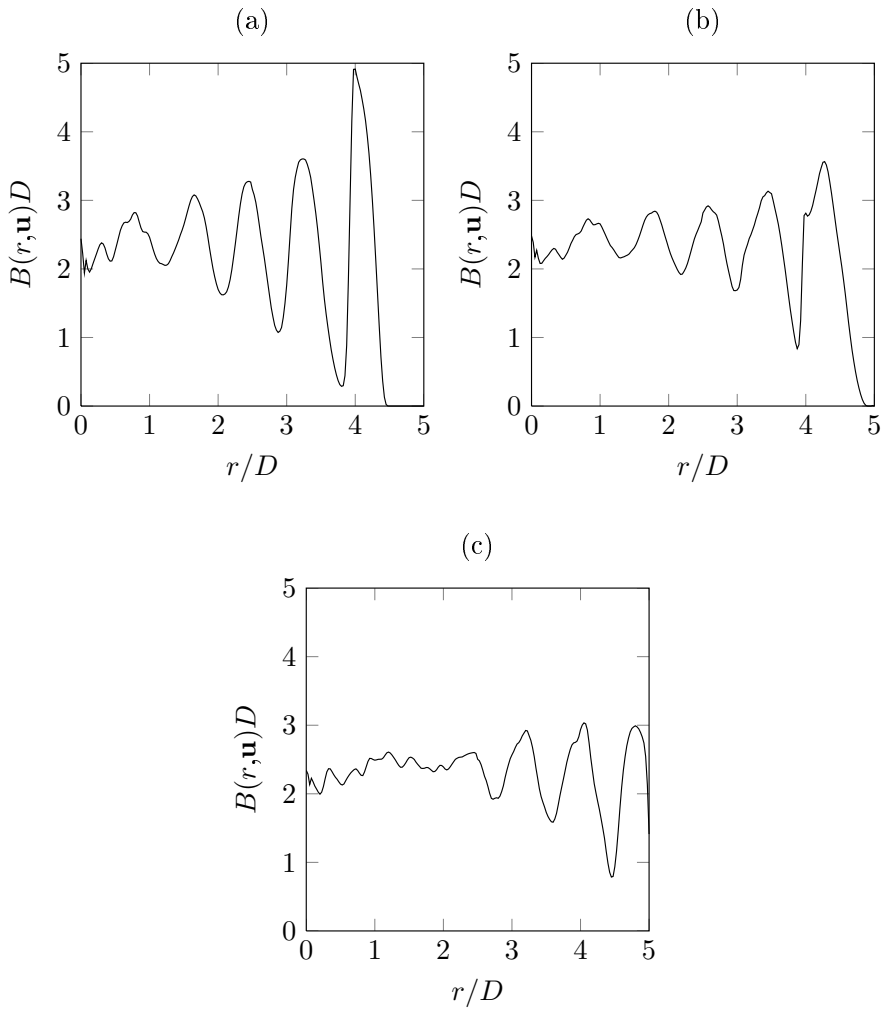


Figure 3.17 – *Coefficients radiatifs B pour l'empilement B, pour $\mathbf{u} = \mathbf{e_r}$ (a), $(\mathbf{u}.\mathbf{e_r}) = 0.5$ et $\varphi = 0$ (b), et $\mathbf{u} = -\mathbf{e_r}$ (c).*

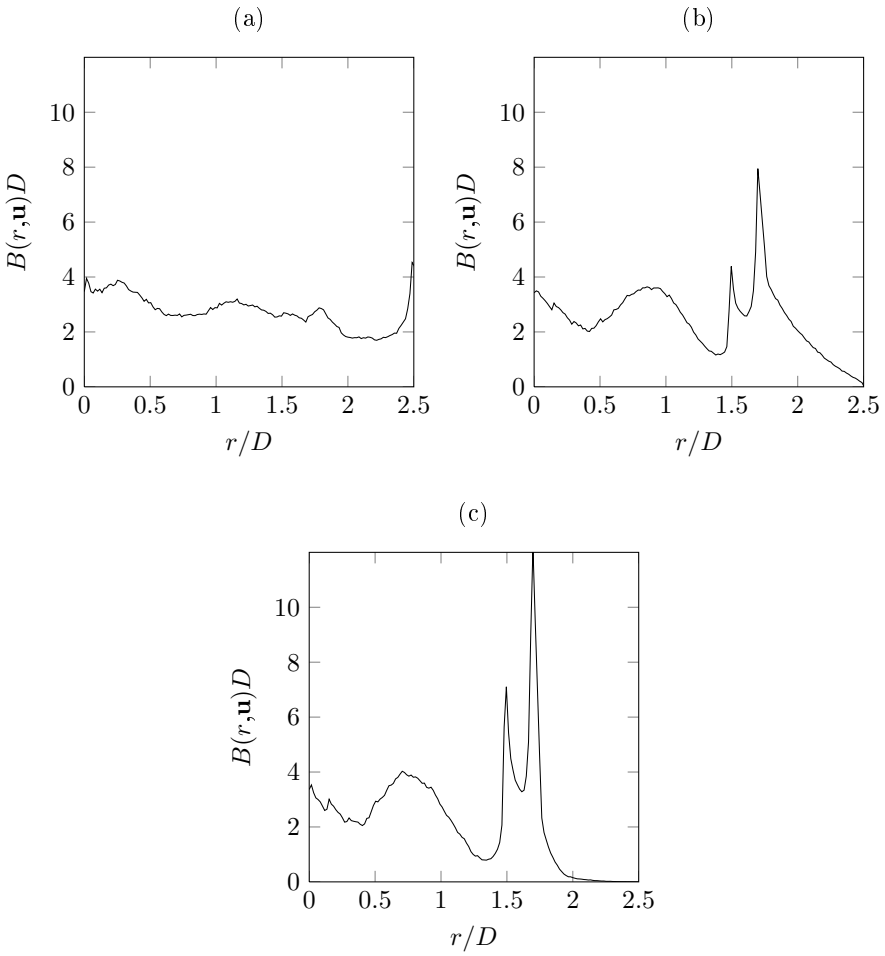


Figure 3.18 – *Coefficients radiatifs B pour l'empilement C, pour $\mathbf{u} = -\mathbf{e_r}$ (a), $(\mathbf{u}.\mathbf{e_r}) = 0.5$ et $\varphi = 0$ (b), et $\mathbf{u} = \mathbf{e_r}$ (c).*

3.2.5 Critère de validité de la loi de Beer

Pour les trois empilements, on calcule le critère de validité de la loi de Beer ε_{RDFI} (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006b). Dans des milieux hétérogènes et anisotropes, ε_{RDFI} dépend à la fois de la direction et du point de départ du rayonnement. Après détermination des fonctions de distribution cumulée d'extinction Beeriennes $g_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ à partir de la relation (1.33), $\varepsilon_{RDFI}(M, \mathbf{u})$ est calculé à partir de la relation (1.34) et les résultats sont donnés pour les trois empilements sur les figures (3.19), (3.20) et (3.21).

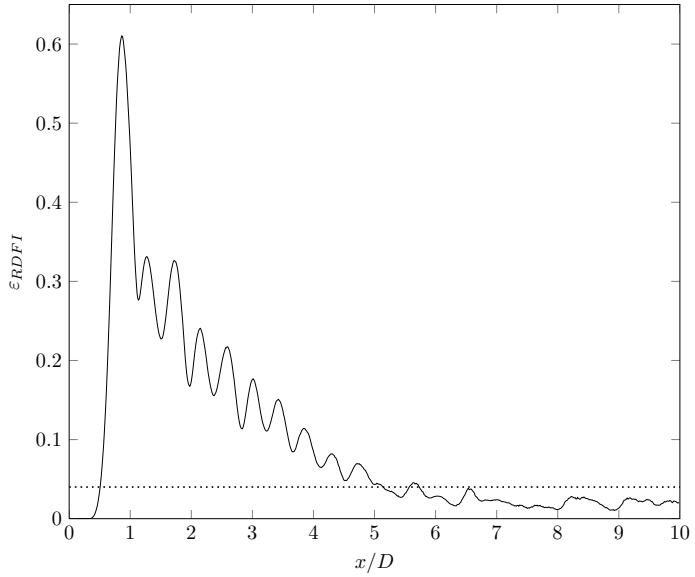


Figure 3.19 – *Empilement A : valeur du critère $\varepsilon_{RDFI}(x, \mathbf{u})$ pour $\mathbf{u} = -\mathbf{x}$ (courbe noire) et limite de validité $\varepsilon_{RDFI}(x, \mathbf{u}) = 4\%$ (courbe pointillée).*

Le critère, correspondant à un écart-type relatif entre les fonctions de distribution cumulée d'extinction réelles et celles d'un milieu Beerien, est supérieur à la limite de 4% en proche paroi dans les trois empilements, et peut être assez élevé puisqu'il atteint jusqu'à 50% dans certaines directions. L'agencement des particules rend donc la loi de Beer caduque dans la zone située en proche paroi. Cette zone s'étend sur 2 ou $3D$ pour les empilements B et C où D est la dimension caractéristique des particules, mais peut être beaucoup plus étendue dans le cas où l'empilement est très ordonné (empilement A par exemple).

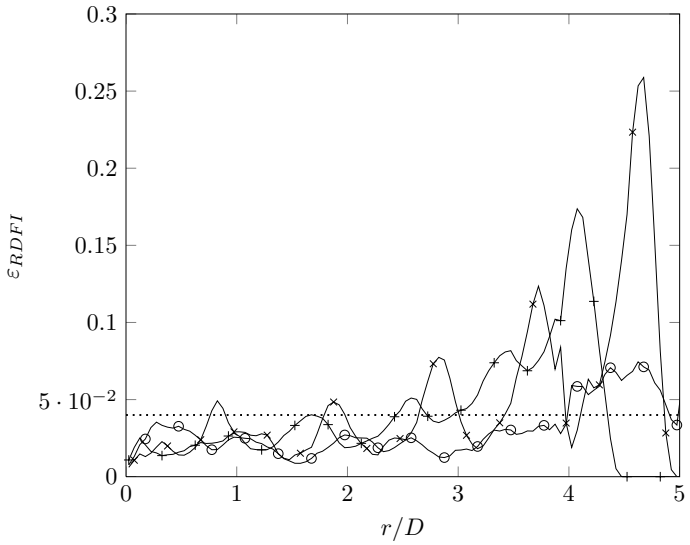


Figure 3.20 – *Empilement B : valeur du critère $\varepsilon_{RDFI}(r, \mathbf{u})$ pour $\varphi = 0$ et $\mathbf{u} = \mathbf{e_r}$ (+) ; $(\mathbf{u}.\mathbf{e_r}) = -0.2$ (×) ; $\mathbf{u} = -\mathbf{e_r}$ (○) et limite de validité $\varepsilon_{RDFI}(x, \mathbf{u}) = 4\%$ (courbe pointillée).*

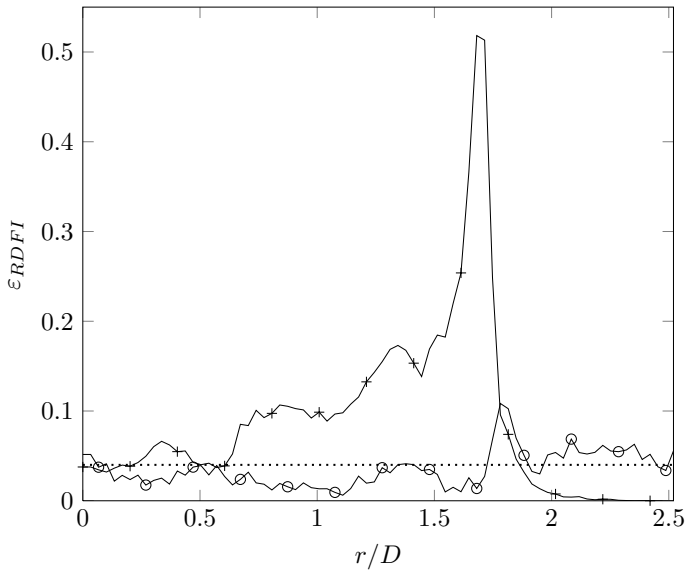


Figure 3.21 – *Empilement C : valeur du critère $\varepsilon_{RDFI}(r, \mathbf{u})$ pour $\varphi = 0$ et $\mathbf{u} = \mathbf{e_r}$ (+) ; $(\mathbf{u}.\mathbf{e_r}) = -0.6$ (○) et limite de validité $\varepsilon_{RDFI}(x, \mathbf{u}) = 4\%$ (courbe pointillée).*

3.2.6 Fonctions de phase

Les fonctions de phase générales $p(\mathbf{u_i}, \mathbf{u_r}, \mathbf{r})$ ont été calculées dans tous les empilements par la technique de Monte Carlo sur la base de l'expression (2.9). Dans le cas général, la fonction de phase dépend de la position du volume élémentaire r_i, des angles de la direction incidente θ_i, φ_i et des angles de la direction de diffusion θ_r, φ_r. Cependant, dans certains cas la fonction de phase peut être simplifiée et s'exprimer par exemple en fonction de l'angle de diffusion θ_{sc} avec $\mathbf{u_i}.\mathbf{u_r} = \cos(\theta_{sc})$. C'est la cas dans un empilement de sphères statistiquement homogène et isotrope (Modest 2003) :

$$p(\theta_{sc}) = \frac{8}{3\pi}(\sin\theta_{sc} - \theta_{sc}\cos\theta_{sc}) \tag{3.9}$$

Cette expression (3.9) est redémontrée sur la base d'arguments statistiques (fonctions de distribution des différentes directions intervenant) en annexe (A.1). Notons que dans le **cas particulier** où la fonction de phase ne dépend que de l'angle de diffusion $\mu_s = \mathbf{u_i}.\mathbf{u_r}$, l'équation (2.9) devient :

$$\frac{1}{4\pi}p(\mu_s)\mathrm{d}\Omega_r = \frac{\displaystyle\int_{V_I,\,\mathbf{u_i}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\leq 0,\,\mathbf{u_r}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\geq 0} \delta(\mu_s - \mathbf{u_i}.\mathbf{u_r})\mathbf{u_r}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_r}{\displaystyle\int_{4\pi}\int_{V_I,\,\mathbf{u_i}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\leq 0,\,\mathbf{u_r}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\geq 0} \delta(\mu_s - \mathbf{u_i}.\mathbf{u_r})\mathbf{u_r}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_r} \tag{3.10}$$

Tancrez et al. (Tancrez and Taine 2004) définissent dans des milieux homogènes et isotropes la fonction de distribution des angles de diffusion par :

$$\frac{1}{4\pi}f(\mu_s)\mathrm{d}\Omega_r = \frac{\displaystyle\int_{V_I,\,\mathbf{u_i}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\leq 0,\,\mathbf{u_r}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\geq 0} \delta(\mu_s - \mathbf{u_i}.\mathbf{u_r})\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_r}{\displaystyle\int_{4\pi}\int_{V_I,\,\mathbf{u_i}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\leq 0,\,\mathbf{u_r}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\geq 0} \delta(\mu_s - \mathbf{u_i}.\mathbf{u_r})\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_r} \tag{3.11}$$

et ils montrent numériquement que cette fonction peut être identifiée à

$$f(\mu_{sc}) = 1 - \mu_{sc} \tag{3.12}$$

mais aucune démonstration n'avait été proposée pour justifier ce résultat numérique. Une démonstration analytique est proposée en annexe (A.2).
Dans les empilements A et B, on retrouve loin des parois la fonction de phase donnée par l'expression (3.9) et la fonction de distribution des angles de diffusion donnée par l'expression (3.12). Proche des parois au contraire, les fonctions de phase dépendent à la fois des directions incidentes et diffusées. Quelques exemples sont présentés dans le cas de l'empilement B sur la figure (3.22).

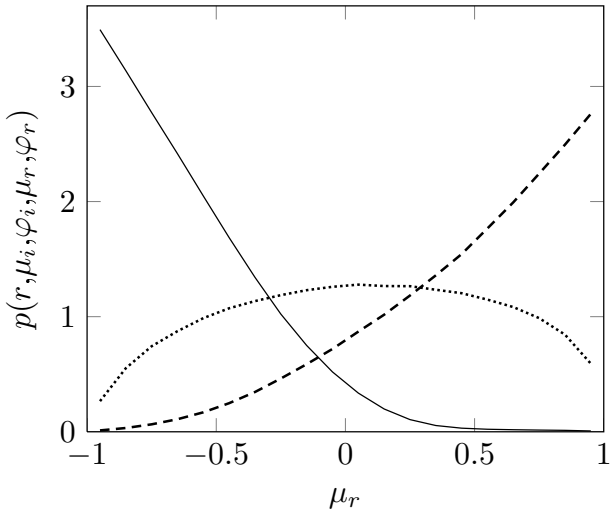


FIGURE 3.22 – *Fonctions de phase statistiques dans l'empilement B pour $r = 4D$, $\varphi_i = \varphi_r = 0$ $\mu_i = 1$ (trait plein) ; $r = 4D$, $\mu_i = -1$ (tirets) ; $r = 4.5D$, $\mu_i = 0$ (pointillés).*

Finalement, le facteur d'asymétrie est défini par :

$$g(\mathbf{u}) = \frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} p(\mathbf{u_i}, \mathbf{u_r}, \mathbf{r}) \mathrm{d}\Omega_r \tag{3.13}$$

Ce facteur d'asymétrie permet de caractériser l'effet de la diffusion sur les transferts radiatifs :
- g négatif correspond à une rétrodiffusion dominante qui s'oppose au passage des flux ;
- g positif correspond au contraire à une diffusion principalement vers l'avant qui favorise le passage des flux.

Typiquement, dans un empilement de sphères statistiquement isotrope et homogène, $g = -0.444$.

Conclusion

Dans ce chapitre, les trois empilements A, B et C ont été entièrement caractérisés au moyen des méthodes numériques présentées au chapitre précédent. Pour toutes les propriétés morphologiques et radiatives (profils de porosité, fonctions de distribution cumulée d'extinction, et fonctions de phase), les résultats loin des parois ont été comparés au cas connu de l'empilement homogène isotrope. Dans certains cas, les résultats proches des parois ont aussi été comparés à ceux d'un empilement hexagonal compact. Ces comparaisons ont permis à la fois la validation des codes de caractérisation et une meilleure compréhension des résultats obtenus.

Des coefficients radiatifs ont été calculés afin de déterminer la validité de la loi de Beer dans ces empilements. Il a ainsi été montré que la loi de Beer n'est pas valide au voisinage des parois sur une distance atteignant cinq diamètres de particule pour l'empilement A, trois diamètres de particule pour l'empilement B, et deux diamètres de particule pour l'empilement C. Dans les trois cas, les coefficients d'extinction, d'absorption et de diffusion n'ont donc pas de sens physique dans ces zones. Comme de plus les empilements sont fortement hétérogènes, d'après la classification proposée au chapitre 1, seule l'équation de transfert radiatif généralisée peut être utilisée pour la modélisation du transfert radiatif. La prochaine partie sera donc consacrée à l'application de cette équation aux trois empilements caractérisés dans ce chapitre.

Troisième partie

Modèle de transfert radiatif applicable à des milieux non Beeriens statistiquement hétérogènes

Introduction

Dans la première partie de la thèse, différents modèles de transfert radiatif ont été présentés. En particulier, une équation de transfert radiatif généralisée (GRTE) a été introduite ; elle ne dépend que des fonctions statistiques caractérisant l'absorption et la diffusion par un milieu quelconque. Cette équation est nécessaire pour décrire le transfert radiatif dans des milieux statistiquement anisotropes où la loi de Beer n'est pas vérifiée. Mais les empilements étudiés dans la deuxième partie sont de plus fortement hétérogènes en particulier au voisinage des parois. De ce fait, une nouvelle formulation, intégrale cette fois, de l'équation de transfert radiatif généralisée va être proposée dans cette partie. Celle ci permet de traiter l'émission elle-même directement à partir des probabilités cumulées d'absorption du milieu grâce à l'usage du principe de réciprocité. Pour être plus clair, les différents niveaux de modèles sont rappelés ci-dessous.

Dans le cas d'un milieu semi-transparent Beerien, les propriétés radiatives sont caractérisées par β_ν, κ_ν et σ_ν. Si le milieu est à l'Equilibre Thermodynamique Local (ETL), on admet que l'émission qui est une propriété locale du milieu a même expression qu'à l'Equilibre Thermodynamique Parfait (ETP) (Taine, Enguehard, and Iacona 2014).
A l'ETP, il règne dans le milieu la luminance de rayonnement d'équilibre $n^2 L^\circ_\nu(T)$. Dans l'équation de transfert radiatif (RTE) à l'ETP, les termes d'émission doivent compenser les termes d'absorption. Autrement dit, le flux émis par chaque élément de volume est égal au flux absorbé par ce même élément de volume.
Le flux absorbé par l'élément de volume $\mathrm{d}V$, dans l'angle solide $\mathrm{d}\Omega$ autour de la direction $\mathbf{u}$, et dans la bande spectrale $[\nu, \nu+\mathrm{d}\nu]$ vaut à l'ETP à la température T :

$$\mathrm{d}^6\phi^a_\nu = -\kappa_\nu n^2 L^\circ_\nu(T)\mathrm{d}V\mathrm{d}\Omega\mathrm{d}\nu \tag{3.14}$$

et l'expression du flux émis par cet élément de volume à l'ETP (et à l'ETL) est donc

$$\mathrm{d}^6\phi^e_\nu = \kappa_\nu n^2 L^\circ_\nu(T)\mathrm{d}V\mathrm{d}\Omega\mathrm{d}\nu \tag{3.15}$$

Dans les premiers travaux d'homogénéisation statistique de milieux a priori non Beeriens réalisés par Tancrez et Taine (Tancrez and Taine 2004), les milieux

étudiés étaient statistiquement homogènes et isotropes, donc Beeriens. Les fonctions de distribution cumulée d'extinction et probabilités cumulées d'absorption et de diffusion permettaient alors la détermination de coefficients d'extinction, d'absorption et de diffusion. Les fonctions statistiques radiatives étant isotropes et homogènes, les coefficients radiatifs étaient aussi isotropes et homogènes et le coefficient d'absorption κ_ν pouvait être utilisé pour la détermination du terme source d'émission. L'approche a été étendue à des milieux légèrement anisotropes Beeriens par Zeghondy et al (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006a), (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006b).
Dans les milieux non Beeriens cependant, le coefficient d'absorption κ_ν n'a pas de sens physique. Il n'est donc pas possible définir le terme source d'émission à partir de ce dernier. C'est le cas dans les travaux de Chahlafi et al. (Chahlafi, Bellet, Fichot, and Taine 2012) qui se sont intéressés à des milieux statistiquement homogènes, anisotropes mais non Beeriens. Comme le milieu était de plus **optiquement épais**, il a été possible d'introduire rigoureusement un terme d'émission reposant sur le coefficient d'absorption généralisé à l'équilibre :

$$K_\nu(\mathbf{u}) = \alpha_\nu \left[\int_0^\infty (1 - G_{ext}(\mathbf{u}, s))\, \mathrm{d}s \right]^{-1} \tag{3.16}$$

De la même façon, des coefficients généralisés d'extinction B et de diffusion Σ ont été introduits
Les fonctions de distribution cumulée d'extinction sont calculées direction par direction, et les coefficients radiatifs généralisés sont donc anisotropes. Pour assurer l'égalité des termes sources de diffusion et d'extinction par diffusion à l'équilibre thermique, les auteurs ont introduit un indice effectif n tel que

$$\int_{4\pi} K(\theta, \varphi) n^2(\theta, \varphi) \mathrm{d}\Omega = \frac{A\pi\alpha}{\Pi} \tag{3.17}$$

où Π et A désignent respectivement la porosité et l'aire spécifique du milieu poreux, et α l'absorptivité des interfaces. Le terme source d'émission s'écrit donc simplement en fonction du produit $K(\theta, \varphi)n^2(\theta, \varphi)$, et est isotrope. Cette approche est valide uniquement dans la limite où les volumes élémentaires sont optiquement épais.
De plus, comme le milieu est optiquement épais, le transfert radiatif n'a finalement pas été modélisé par la RTE mais par une loi de Fourier radiative après détermination des tenseurs de conductivité radiative.
Dans le cas étudié ici, le milieu est statistiquement anisotrope et non Beerien, mais de plus fortement statistiquement hétérogène. L'hypothèse d'un milieu localement optiquement épais n'est donc pas applicable. La forte hétérogénéité impose la définition de volumes élémentaires optiquement minces.
Deux approches sont proposées, qui correspondent à une évolution de la modélisation au cours de ce travail de thèse :

– La première approche repose sur la définition d'un volume élémentaire qui soit homogène. Comme l'émission est une propriété de la matière, le terme source

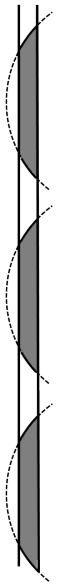


Figure 3.23 – *Exemple de volume élémentaire en proche paroi.*

d'émission dans ce volume élémentaire homogène a été identifié au terme source dans un milieu homogène infini de morphologie similaire. L'expression des termes sources est détaillée en annexe C.
Cette approche est cependant limitée à un milieu dans lequel on peut définir un volume élémentaire homogène, c'est-à-dire un volume élémentaire dans lequel le gradient de porosité est nul (et non juste négligeable). Le gradient de porosité dans un volume élémentaire peut facilement s'exprimer en fonction des normales $\mathbf{n}$ (Gray and Lee 1977) (Howes and Whitaker 1985) :

$$\nabla\Pi = \frac{1}{V}\int_{A_{sf}} \mathbf{n_{sf}}(\mathbf{r})\mathrm{d}\mathbf{r} \tag{3.18}$$

où A_{sf} est l'interface solide/fluide et $\mathbf{n_{sf}}(\mathbf{r})$ est le vecteur unitaire normal à cette interface au point $M(\mathbf{r})$ orienté vers la phase fluide. La démonstration de cette formule est faite en annexe B.
Sur la figure (3.23), tous les vecteurs normaux pointent vers la gauche. De ce fait, l'intégrale des normales ne sera donc pas nulle. Le gradient de porosité n'est pas strictement nul et il est donc impossible de définir un milieu homogène infini ayant les mêmes propriétés morphologiques que ce volume élémentaire. Cette première approche n'est donc pas en fait applicable à nos milieux.

– La deuxième approche propose d'exprimer le terme source d'émission directement à partir des fonctions de distribution radiatives. Pour cela, on revient à la première définition de l'émission : celle-ci est introduite à l'équilibre thermique sur la base du principe d'égalité des termes d'émission et d'absorption. Ces derniers s'expriment facilement à partir des fonctions de distribution ra-

diatives, et sont corrélés à la transmission. Le principe de réciprocité permet alors d'exprimer le terme source par un élément de volume même fortement hétérogène.

Cette approche est présentée dans le chapitre 4 et appliquée au cas académique de l'empilement A : ce chapitre est le texte intégral d'une publication soumise à *Physical Review E* en janvier 2015.

L'approche présentée dans le chapitre 4 sera ensuite étendue au cas de l'empilement B dans le chapitre 5 : les nouvelles symétries requérant une autre définition des volumes élémentaires, l'expression des termes sources d'émission par ces volumes élémentaires sera détaillée. Ce chapitre est un acte de conférence, soumis pour "International Symposium on Micro and Nanotechnologies" à Calgary en juin 2015. Il est suivi par l'application de ce modèle à l'empilement C, qui nous permettra de conclure cette partie ainsi que le travail de cette thèse, répondant ainsi à l'objectif fixé par Air Liquide.

Chapitre 4

Radiative transfer model within strongly non homogeneous porous media : Application to a slab of packed particles

Sommaire

4.1 Introduction 87
4.2 Physical Model 89
4.2.1 Reciprocity property of the extinction cumulative distribution function 91
4.2.2 Correlated emission by a cell of a nonhomogeneous medium 91
4.2.3 Absorption and scattering 93
4.2.4 General scattering phase function 94
4.3 Implementation of the physical model for a slab . . 95
4.3.1 Emission correlated to transmission 96
4.3.2 Statistical approach of the transfer 96
4.3.3 Implementation of the phase function for a slab of a packed bed 98
4.3.4 Particular case of a Beerian homogeneous slab . . . 98
4.4 Numerical Method for a slab of packed bed 99
4.4.1 Monte Carlo algorithm 99
4.4.2 Validation of the numerical approach 100
4.5 Application to a strongly non-homogeneous packed bed 102
4.5.1 Radiative power exchanged in non-homogeneous media 102
4.5.2 Validation of temperature fields in purely absorbing non-homogeneous media in steady state 104

4.5.3 Scattering and absorbing non homogeneous packed beds 106
4.5.4 Limitations of the usual models 108
4.5.4.1 Limitations of the Fourier law 109
4.5.4.2 Limitations of the model based on exponential extinction 111
4.6 Conclusion 112

Abstract

The original radiation transfer model is dedicated to strongly non homogeneous porous media with a transparent phase and an opaque one, characterised by a diffuse reflection law at local scale. It is only based on radiative statistical functions of extinction and scattering and a general phase function, which completely characterise the radiation properties of the medium. The model is a generalisation for these media, under integral formulation, of the Generalised Radiative Transfer Equation (GRTE) introduced by Taine et al. [Taine et al., IJHMT **53** 4071 (2010)]. The rigorous expression of the emission source term from the radiation reciprocity principle is the key point. The model is developed and applied in the case of a slab of a packed bed of spherical particles, by using a statistical Monte Carlo method. It has been validated by comparison with results of the bibliography in the academic case of purely absorbing media and in the case of optically thick slabs. Realistic cases of scattering, absorbing and emitting porous media are finally treated. The model also accurately accounts for local configurations resulting in non-monotonous temperature profiles.

4.1 Introduction

Heat and mass transfer models in porous media have received a considerable attention in the last decades (Kaviany 1995). A main difficulty encountered in these media is that, if the physics is known at the pore scale, a complete determination at this scale of flux and temperature fields is not realistic, especially for scattering porous media. Replacing a porous medium with an equivalent continuous phase is thus a common assumption for radiation transfer at the scale of the whole medium and for coupling with other heat transfer modes. In this upscaling approach, the characterization of the effective radiative properties of the equivalent continuous phase is required before determining the radiative flux and temperature fields with an appropriate radiative transfer model.
The equivalent semitransparent continuous phase is generally considered as beerian, *i.e.* the extinction is an exponential function of the optical thickness. A beerian semi transparent medium is completely characterised by an extinction coefficient β_ν, a scattering coefficient σ_ν (or an absorption coefficient κ_ν) and a scattering phase function p_ν. Various approaches have been developed to determine these effective properties of beerian media and a review has been given by Ballis and Sacadura (Baillis and Sacadura 2000). In the case of dilute media, according to the independent scattering theory, the effective properties can be calculated by adding up the effect of each particle. For dense porous media, the independent theory falls down and three main approaches have been followed :

In the first one, the authors seek at identifying the results of a given radiative model with reference data (Hendricks and Howell 1996) (Loretz, Coquard,

Baillis, and Maire 2008) (Argento and Bouvard 1996) (Baillis, Arduini-Schuster, and Sacadura 2002). The approach however requires some assumptions (radiative transfer model, type of phase function, etc.), and accumulates various sources of errors (experimental uncertainty, numerical errors, uncertainty of the identification techniques).

In the second one, the effective properties have been ab initio determined from appropriate models based on the spatial averaging theorem by Consalvi and al., Lipinski and al. and Gusarov (Consalvi, Porterie, and Loraud 2002) (Lipiński, Petrasch, and Haussener 2010) (Petrasch, Haussener, and Lipiński 2011) (Gusarov 2008) (Gusarov 2013), or by using scaling coefficients to correct the multiple scattering (Kamiuto 1990) (Singh and Kaviany 1991) (Singh and Kaviany 1992).

However, the beerian assumption is not valid in statically anisotropic or/and non homogeneous porous media. For instance, near the boundaries of a packed bed of spherical particles the wall induces strong porosity gradient and anisotropy, which results in the non validity of the Beer's law (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2013). For a priori non beerian media, a statistical characterisation method has been proposed by Tancrez and Taine (Tancrez and Taine 2004). The authors completely characterised the semitransparent continuous phase associated with the opaque interfaces of the porous media by the following statistical functions :

- A cumulative distribution function of extinction $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ which represents the probability for a ray issued from a point M within the homogenized medium in the direction $\mathbf{u}$ to be extinguished in the range $[0, s]$;
- A cumulative probability of scattering $P_{sc}(M, \mathbf{u}, s)$ (or a cumulative probability of absorption $P_a(M, \mathbf{u}, s)$) ;
- A general phase function $p(\mathbf{u_i}, \mathbf{u_{sc}})$.

These radiative functions are very accurately determined by a stochastic Monte Carlo method using the morphology of a representative sample of the porous medium, generally issued from tomography, and the radiative properties of each phase at pore scale. In the case of a beerian medium, the extinction coefficient β_ν of the equivalent semitransparent continuous phase can be obtained by the radiative distribution function identification method (RDFI) (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006a). However, in the case of a non beerian medium, the extinction coefficient has no physical meaning. As a consequence, the Radiative Transfer Equation (RTE), based on Beer's law can not be used.

A generalised radiative transfer equation (GRTE), only based on the radiative statistical distribution functions, has been established to account for the non Beerian behaviour of an equivalent semitransparent continuous phase (Taine,

Bellet, Leroy, and Iacona 2010) (Taine and Iacona 2012) ; The presence of walls has also been accounted for (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2013). This formalism has been applied to locally optically thick anisotropic porous media (Chahlafi 2011). The main difficulty is then to rigorously express the emission source term in these conditions : A generalised absorption coefficient and an effective optical index have been introduced (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010), (Chahlafi, Bellet, Fichot, and Taine 2012). This approach has allowed the conductivity tensor of a radiative Fourier law to be directly determined from only the radiative statistical distribution functions and the effective optic index. In parallel, two precise validity criteria of the radiative Fourier law have been given by Gomart (Gomart and Taine 2011) : In particular, the Fourier law can not be used at the vicinity of the medium boundaries.
In an alternative approach, the emission source term has been approximately expressed as a function of the specific area of the porous medium (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2013). However, this approximation is based on a homogeneous and thick elementary cell : It is, in fact, limited to slightly non homogeneous, non beerian media.

None of the previous models can be applied to strongly non homogeneous media. The aim of this paper is to develop an original radiation transfer model for strongly non homogeneous and anisotropic porous media. It is only based on the radiative statistical distribution functions and generalises, under an integral formulation, the GRTE of Ref.(Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010). The physical model, in which the emission is treated from the radiation reciprocity principle, is introduced in Sec. II and applied to a slab in Sec. III. The statistical numerical method is then developed and validated in Sec. IV. Finally, results for a slab of a packed bed of spherical particles are given in Sec. V.

4.2 Physical Model

The study deals with a statistically non homogeneous and anisotropic porous medium with a gray opaque solid phase and a transparent fluid phase of refractive index equal to unity. Consequently, radiation propagation is straight. The wall reflection law at pore scale is assumed diffuse.
As developed in the introduction, an extinction cumulative distribution function $G_{ext}(M, \mathbf{u}, v)$, a scattering cumulative probability $P_{sc}(M, \mathbf{u}, v)$ and a general scattering phase function $p(\mathbf{u}, \mathbf{u}')$ completely characterizes the effective homogenised propagation phase. As the solid phase is opaque $G_{ext}(M, \mathbf{u}, v)$ is independent of the wall radiative properties (Tancrez and Taine 2004). As the real medium is statistically anisotropic, the radiative statistical functions depend on any direction unit vector $\mathbf{u}$ and, as the medium is also statistically nonhomogeneous, they also depend on any initial point M of abscissa s ; $v = s' - s$ is the distance between the initial point and a current point M' of

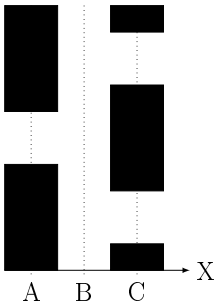


Figure 4.1 – *Illustration of a non-beerian porous medium, constituted of a solid opaque phase (in black) and a transparent fluid phase (in white). The medium is highly heterogeneous along the x-axis.*

abscissa s' in the direction $\mathbf{u}$. The transmissivity from M to M' in the direction $\mathbf{u}$ is then simply $[1 - G_{ext}(M, \mathbf{u}, M')]$.
Under the assumption of diffuse gray opaque real interfaces, of absorptivity α, the scattering cumulative probability $P_{sc}(M, \mathbf{u}, M')$ is rigorously equal to $(1-\alpha)\, G_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$: Indeed, $(1-\alpha)$ is also the gray and uniform albedo of the homogenized propagation phase. Absorption properties are also characterised by an absorption cumulative probability $P_a(M, \mathbf{u}, M')$, equal in the general case to $G_{ext}(M, \mathbf{u}, M') - P_{sc}(M, \mathbf{u}, M')$ and in the present case to $\alpha\, G_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$.

For homogeneous and isotropic media, if a point M' belongs to the path MM" the transmissivity in the direction $\mathbf{u}$ from M to M" is the product of the transmissivities from M to M' and from M' to M", *i.e.*

$$1 - G_{ext}(M, \mathbf{u}, M'') = \left[1 - G_{ext}(M, \mathbf{u}, M')\right] \left[1 - G_{ext}(M', \mathbf{u}, M'')\right] \quad (4.1)$$

It is then easy to show that $1 - G_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$ is equal to $\exp(-\beta v)$: The medium is beerian and the extinction is characterised by an extinction coefficient β.

This property is generally not true for statistically non homogeneous media. In the simple case shown in Fig.(1) the cumulative distribution function of extinction along the x-axis, of unit vector $\mathbf{x}$, associated to the fluid phase satisfies $1 - G_{ext}(x_A, \mathbf{x}, x_B) = 1$ and $1 - G_{ext}(x_B, \mathbf{x}, x_C) = \Pi(x_C)$, where $\Pi(x_C)$ is the presence probability of the fluid phase in the plane x_C. But, as $1 - G_{ext}(x_A, \mathbf{x}, x_C) = 0$, the medium is non beerian. The consequence of such statistical dependence is that a local extinction probability can not be defined, *i.e.* the extinction coefficient has no physical meaning. Such a behaviour is also generally encountered for statistically anisotropic media (Bellet, Chalopin, Fichot, Iacona, and Taine 2009), (Chahlafi, Bellet, Fichot, and Taine 2012).
As extinction and absorption coefficients have no physical meaning for a considered statistically non homogeneous medium, the characterization of emission

properties of this medium is a real challenge. As developed in the introduction, this difficulty has been solved in the case of statistically anisotropic but homogeneous media, at the generally considered limit of an optically thick medium. This approach is not valid for a strongly non homogeneous medium, i.e. such as the porosity varies at a scale for which the medium is not optically thick. The key point of the present model is to rigorously express the emission by a volume element of the homogenized phase, by using the radiation reciprocity principle (Greffet and Nieto-Vesperinas 1998), at less in the case of a diffuse reflexion law.

4.2.1 Reciprocity property of the extinction cumulative distribution function

The method developed in this paper is based on energy exchanges between surface elements $\mathrm{d}S_i$ and $\mathrm{d}S_j$ centered in M_i and M_j within the homogenised medium, each of them characterised by a presence probability of the fluid phase, Π_i or Π_j. Let us show that $G_{ext}(M_i, \mathbf{u_{ij}}, M_j)$ verifies a reciprocity equation.

The surfaces $\mathrm{d}\Sigma_i = \Pi_i\, dS_i$ and $\mathrm{d}\Sigma_j = \Pi_j\, dS_j$ are then parts of $\mathrm{d}S_i$ and $\mathrm{d}S_j$ belonging to the homogenised propagation fluid phase. As $G_{ext}(M_i, \mathbf{u_{ij}}, M_j)$ only depends on quantities related to the fluid, the surface elements $\mathrm{d}\Sigma_i$ and $\mathrm{d}\Sigma_j$ are arbitrary assumed to be black bodies, at the same temperature T. Under this assumption, the flux emitted by $\mathrm{d}S_i$ and absorbed by $\mathrm{d}S_j$ is then

$$d\Phi_{ij}^{ea} \;=\; \Pi_i dS_i\, I^{\circ}(T)(\mathbf{u_{ij}}.\mathbf{n_i})\frac{dS_j(-\mathbf{u_{ij}}.\mathbf{n_j})}{r_{ij}^2}\left[1 - G_{ext}(M_i, \mathbf{u_{ij}}, M_j)\right], \qquad (4.2)$$

where $\mathbf{n_i}$ and $\mathbf{n_j}$ are unit vectors normal to $\mathrm{d}S_i$ and $\mathrm{d}S_j$, $\mathbf{u_{ij}}$ the unit vector from M_i to M_j and r_{ij} the distance between M_i and M_j as shown in Fig.4.2. In these isothermal conditions, no power is exchanged between $\mathrm{d}S_i$ and $\mathrm{d}S_j$, i.e. $\mathrm{d}\Phi_{ij}^{ea} = d\Phi_{ji}^{ea}$. This property, independent of the radiative properties of $\mathrm{d}\Sigma_i$ and $\mathrm{d}\Sigma_j$, leads to the reciprocity equation, original to our knowledge,

$$\Pi_i\left[1 - G_{ext}(M_i, \mathbf{u_{ij}}, M_j]\right) = \Pi_j\left[1 - G_{ext}(M_j, \mathbf{u_{ji}}, M_i]\right). \qquad (4.3)$$

Indeed, if $[1 - G_{ext}(M_i, \mathbf{u_{ij}}, M_j])$ is the transmissivity from $\mathrm{d}\Sigma_i$ to $\mathrm{d}\Sigma_j$ in the direction $\mathbf{u_{ij}}$, $\Pi_i\left[1 - G_{ext}(M_i, \mathbf{u_{ij}}, M_j]\right)$ represents the transmissivity from $\mathrm{d}S_i$ to $\mathrm{d}S_j$. This property is satisfied in any kind of homogenised propagation phases.

4.2.2 Correlated emission by a cell of a nonhomogeneous medium

The developed original method deals with emitting, absorbing and scattering statistically nonhomogeneous media. In a first step, only emitting and absorbing media will be considered. Indeed, the emission by a cell is determined in a

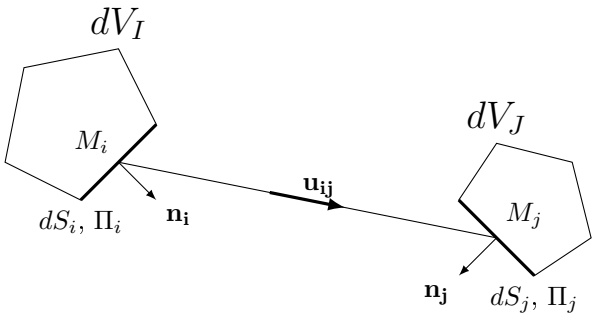


FIGURE 4.2 – *Illustration of two elementary cells*

purely absorbing medium. To account for scattering events, such a model can be implemented in a Statistical Monte Carlo transfer method, by considering successive extinction (absorption or scattering) phenomena, as developed in the following section.

Let us consider a surface element $\mathrm{d}S_i$, that is only in a first step a black body, and a volume element V_J of this medium, assumed at uniform temperatures T_I and T_J respectively. The boundaries of the cell J are the surface elements $\mathrm{d}S_j$, as shown in Fig. 4.2. The surfaces $\mathrm{d}\Sigma_i = \Pi_i\,\mathrm{d}S_i$ and $\mathrm{d}\Sigma_j = \Pi_j\,\mathrm{d}S_j$ are, as previously, the parts of $\mathrm{d}S_i$ and dS_j belonging to the homogenised propagation phase. All opaque and diffuse interfaces within V_J are characterised by an uniform absorptivity α_J : The albedo of the homogenised propagation phase within J is then $1-\alpha_J$.

The key point of the model is to express the flux emitted by J and *directly* incident on the real element $\mathrm{d}\Sigma_i$, by using the radiation reciprocity principle, i.e. by expressing the flux emitted by $\mathrm{d}\Sigma_i$, first considered as a black body, *directly* transmitted to J and absorbed by J. As previously highlighted, the effects of scattering between $\mathrm{d}\Sigma_i$ and J and within J are not accounted for at this stage.

The power emitted by $\mathrm{d}S_i$ *in the only direction* $\mathbf{u_{ij}}$, and *directly* incident on any boundary element $\mathrm{d}S_j$ of J is given by Eq. 4.2. Indeed, the flux incident on a real surface is equal to the flux absorbed by this surface, if it is assumed black. Note that any unit vector $\mathbf{n_j}$ is directed outward the J cell. With this convention, the sum of the fluxes emitted by dS_i and *directly* incident on all boundary elements $\mathrm{d}S_j$ is in fact the flux $\mathrm{d}\Phi_{iJ}^{e,ext}$ that is emitted by $\mathrm{d}S_i$ and *directly* extinguished in the J cell, *i.e.* without accounting for scattering between $\mathrm{d}S_i$ and J and multiple scattering within J

$$\mathrm{d}\Phi_{iJ}^{e,ext} = \Pi_i \mathrm{d}S_i\, I^\circ(T_I) \oint_{S_J} (\mathbf{u_{ij}}.\mathbf{n_i})[1-G_{ext}(M_i,\mathbf{u_{ij}},M_j)]\frac{\mathrm{d}S_j(-\mathbf{u_{ij}}.\mathbf{n_j})}{r_{ij}^2}. \quad (4.4)$$

In the J^{th} cell, absorption is only due to the diffuse gray interfaces of absorptivity α_J. The power $\mathrm{d}\Phi_{iJ}^{e,a}$ emitted by the black surface element $\mathrm{d}\Sigma_i$ and *directly*

absorbed by J simply writes :

$$\mathrm{d}\Phi_{iJ}^{e,a} = \alpha_J I^\circ(T_I)\Pi_i \mathrm{d}S_i \oint_{S_J} (\mathbf{u_{ij}}.\mathbf{n_i})[1-G_{ext}(M_i,\mathbf{u_{ij}},M_j)]\frac{\mathrm{d}S_j(-\mathbf{u_{ij}}.\mathbf{n_j})}{r_{ij}^2}. \quad (4.5)$$

The radiation reciprocity principle (Greffet and Nieto-Vesperinas 1998) states that, in any emitting, absorbing and scattering medium, the power $\mathrm{d}\Phi_{m,n}^{e,a}$ emitted by any isothermal volume or surface element m of temperature T_m and and absorbed by any other volume or surface element n of temperature T_n is linked to the power $\mathrm{d}\Phi_{n,m}^{e,a}$ emitted by n and absorbed by m by the simple equation :

$$\frac{\mathrm{d}\Phi_{m,n}^{e,a}}{\mathrm{d}\Phi_{n,m}^{e,a}} = \frac{I^\circ(T_m)}{I^\circ(T_n)}. \quad (4.6)$$

It allows the power emitted by the J cell and *directly* absorbed by the black surface $\mathrm{d}\Sigma_i$, in fact *incident at the point* M_i *in the elementary solid angle* $\mathrm{d}\Omega_{ji} = \frac{\mathrm{d}S_i(\mathbf{u_{ij}}.\mathbf{n_i})}{r_{ij}^2}$, to be expressed. By using Eq.4.3, the result writes

$$\mathrm{d}\Phi_{J\,M_i}^{e,inc} = \alpha_J I^\circ(T_J) \oint_{S_J} \Pi_j[1-G_{ext}(M_j,\mathbf{u_{ji}},M_i)](\mathbf{n_j}.\mathbf{u_{ji}})\mathrm{d}\Omega_{ji}(M_j)\mathrm{d}S_j. \quad (4.7)$$

In Eq.4.7, $\mathbf{u_{ji}}$ and $\mathrm{d}\Omega_{ji}$ simply are the current unit vector and elementary solid angle associated with the current point M_i seen from M_j, current boundary point of J . This equation is the key result of our model and allows emission by a volume element J correlated to transmission to any current point M_i of a statistically non homogeneous medium to be expressed from the known radiative statistical functions. This result is remarkably simple due to the assumption of diffuse reflection by opaque walls. The *direct* incident flux can be interpreted as the sum of the fluxes that would be directly emitted by all the gray boundary elements $\mathrm{d}S_j$, of uniform emissivity α_J, through a medium characterised by a transmissivity field $1 - G_{ext}(M_j, \mathbf{u_{ji}}, M_i)$.
Equation 4.7 accounts for the correlation effect between emission and transmission of radiation within a statistically non homogeneous medium. It can be applied to an emitting, absorbing and scattering medium if the determination is limited to the first extinction phenomenon, by absorption or scattering.

4.2.3 Absorption and scattering

The general developed model deals with emitting, absorbing and scattering statistically strongly non homogeneous porous media and accounts for multiple scattering events. It is limited to media with a transparent phase and an opaque and gray one characterised by a diffuse reflection law. In this particular case, the albedo $1 - \alpha_J$ is statistically independent of the cumulated distribution

function of extinction, *i.e.* the ray extinguished at the point M_J can be either absorbed or scattered with respectively the probabilities α_J and $1-\alpha_J$ without any correlation with the probability of extinction. In addition, the phase function is also independent of the other radiative properties of the homogenised phase.

The scattering source term is then not correlated to the previous emission, transmission and extinction phenomena. The scattered power is exactly the power that is extinguished by scattering, at the considered point (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010). Moreover, the scattering source term in a given direction is the sum of all contributions that are issued from all initial directions in 4π st : All these contributions are not correlated.
Absorption and scattering can therefore be easily accounted for in a stochastic method. From the point M'_j where extinction by scattering occurs, the method is continued up to a final absorption event, after possible multiple scattering events.

4.2.4 General scattering phase function

The scattering phase function is directly determined by the Monte Carlo approach. For a statistically strongly non homogeneous porous medium, it depends not only on the incidence direction $\mathbf{u_i}$ and the scattering direction $\mathbf{u_{sc}}$, but also on the spatial coordinate $\mathbf{r_I}$ of the center of the scattering volume V_I. It is defined by (Tancrez and Taine 2004)

$$\frac{1}{4\pi}p_I(\mathbf{u_i},\mathbf{u_{sc}},\mathbf{r_I})\mathrm{d}\Omega_{sc} = \frac{\displaystyle\int_{V_I,\ \mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I}).\mathbf{u_i}\leq 0,\ \mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I}).\mathbf{u_{sc}}\geq 0} (\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I})\cdot\mathbf{u_{sc}})\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_{sc}}{\displaystyle\int_{4\pi}\int_{V_I,\ \mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I}).\mathbf{u_i}\leq 0,\ \mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I}).\mathbf{u_{sc}}\geq 0} (\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I})\cdot\mathbf{u_{sc}})\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_{sc}} \tag{4.8}$$

where $\mathrm{d}\Omega_{sc}$ is the elementary solid angle associated with the scattering direction $\mathbf{u_{sc}}$ and $\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})$ the normal unit vector of a current impact point M_i of a ray ; $\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})$ depends on both the incidence direction $\mathbf{u_i}$ and the position vector $\mathbf{r}$ of M_i in the real medium. In fact, the normals are also statistically characterised by the distribution function $F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I})$, assumed uniform in any cell I

$$\frac{1}{4\pi}F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I})\mathrm{d}\Omega_n = \frac{\displaystyle\int_{V_I,\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I}).\mathbf{u_i}\leq 0}\delta(\mathbf{n}-\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I}))\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_n}{\displaystyle\int_{4\pi}\int_{V_I,\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I}).\mathbf{u_i}\leq 0}\delta(\mathbf{n}-\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I}))\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_n} \tag{4.9}$$

where $\mathrm{d}\Omega_n$ is the elementary solid angle associated with the normal unit vector $\mathbf{n}$. Similarly for diffuse reflexion, the scattering directions $\mathbf{u_{sc}}$ are statistically

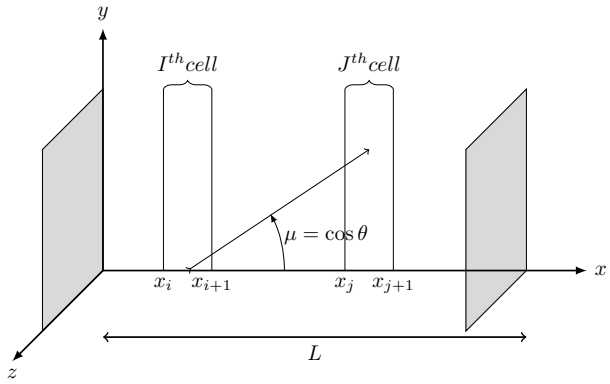


FIGURE 4.3 – *1D slab bounded by two gray opaque walls and divided in N_C cells along the x-axis.*

characterised for a given normal $\mathbf{n}$ by the distribution function :

$$\begin{aligned} F_{\mathbf{u_{sc}}}(\mathbf{n})\mathrm{d}\Omega_{sc} &= 0 \text{ for } \mathbf{u_{sc}}.\mathbf{n} \leq 0 \\ &= \mathbf{u_{sc}}.\mathbf{n}\frac{\mathrm{d}\Omega_{sc}}{\pi} \text{ for } \mathbf{u_{sc}}.\mathbf{n} \geq 0 \end{aligned} \tag{4.10}$$

In the homogenised medium, any information about the real impact points and their exact normal unit vectors is lost. Nevertheless, an expression of the phase function can be obtained for any cell I, by a sum over the normal unit vector distribution function instead a sum over $\mathbf{r}$, *i.e.*

$$\frac{1}{4\pi}p_I(\mathbf{u_i}, \mathbf{u_{sc}}, \mathbf{r_I})d\Omega_{sc} = \frac{1}{4\pi}\int_{4\pi} F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i}, \mathbf{r_I})F_{\mathbf{u_{sc}}}(\mathbf{n})\mathrm{d}\Omega_n\mathrm{d}\Omega_{sc} \tag{4.11}$$

Since the distribution functions $F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i}, \mathbf{r_I})$ and $F_{\mathbf{u_{sc}}}(\mathbf{n})$ are statistically independent, the phase function can be implicitly built in a Monte Carlo method by generation of the two variables $\mathbf{n}$ and $\mathbf{u_{sc}}$.

4.3 Implementation of the physical model for a slab

The previous model is applied to a porous medium that is a statistically strongly nonhomogeneous in the direction x, but statistically homogeneous in the directions y and z : Its porosity $\Pi(x)$ strongly varies along x, at a scale smaller than its optical thickness, but is independent of y and z. In these conditions, the cumulative distribution function associated with the homogenised transparent fluid phase simply writes $G_{ext}(x, \mu, x')$, where μ is the cosine of direction $\mathbf{u}$ ($\mu = \mathbf{u}.\mathbf{x}$) and $x' = x + \mu s$. For instance, a slab of non overlapping opaque spheres enclosed between two walls normal to x presents these properties.
The slab is divided in N_C cells I, of volume $\mathrm{d}V_I$, bounded by two arbitrary large parallel planes, of abscissa x_i and x_{i+1}, as shown in Fig.4.3. In addition, the absorptivity α_I of the opaque interfaces is assumed uniform within any cell I.

4.3.1 Emission correlated to transmission

For this configuration, the flux which is emitted by a cell J, volume element V_J of arbitrary large area S and in the range $[x_j, x_{j+1}]$, and is *directly* incident on the point M_k of abscissa x_k in the elementary solid angle $\mathrm{d}\Omega$ around the direction $\mathbf{u}$ is simply given by

$$\begin{aligned} &\mathrm{d}\Phi^{e,inc}_{J\,k}(\mu) = \alpha_J I^\circ(T_J)\, S\, \mu \mathrm{d}\mu\, \mathrm{d}\varphi \\ &\{\Pi_{j+1}[1 - G_{ext}(x_{j+1}, \mu, x_k)] - \Pi_j[1 - G_{ext}(x_j, \mu, x_k)]\} \end{aligned} \tag{4.12}$$

where φ is the azimuth around the axis x, such as : $\mathrm{d}\Omega = d\mu\, d\varphi$. Consequently, the flux emitted by V_J at the only abscissa x_{j+1} writes :

$$\mathrm{d}\Phi^{e}_{J}(\mu) = \alpha_J I^\circ(T_J)\, S\, \{\Pi_{j+1} - \Pi_j[1 - G_{ext}(x_j, \mu, x_{j+1})]\}\, \mu. \tag{4.13}$$

As seen in Eq. 4.12, the flux emitted by V_J is strongly correlated to the transmissivity from x_{j+1} to x_k

$$\tau(x_{j+1}, \mu, x_k) = 1 - G_{ext}(x_{j+1}, \mu, x_k), \tag{4.14}$$

and a correlation factor $f_{J,k}(\mu)$ is introduced such as the flux emitted by V_J and transmitted to the abscissa x_k also writes

$$\mathrm{d}\Phi^{e,inc}_{J\,k}(\mu) = d\Phi^{e}_{J}(\mu)\; f_{J,k}(\mu)\; \tau(x_{j+1}, \mu, x_k)\; \mathrm{d}\mu\, \mathrm{d}\varphi. \tag{4.15}$$

In these conditions, $\mathrm{d}\Phi^{*e}_{J}(\mathbf{u})$, the flux emitted by V_J and correlated to the transmissivity from x_{j+1} to x_k, writes :

$$\mathrm{d}\Phi^{*e}_{J}(\mu) = d\Phi^{e}_{J}(\mu) f_{J,k}(\mu). \tag{4.16}$$

Alternately, a correlated transmissivity from x_{j+1} to x_k $\tau^{*}_{j+1\,k}(\mu)$, correlated to the flux emitted by V_J at x_{j+1}, writes

$$\tau^{*}(x_{j+1}, \mu, x_k) = \tau(x_{j+1}, \mu, x_k) f_{J,k}(\mu) \tag{4.17}$$

The correlation factor can be accounted for in either the correlated emitted flux or the transmissivity. For numerical purpose, the first formulation has been chosen, *i.e* $\mathrm{d}\Phi^{*e}_{J}(\mu)$.

4.3.2 Statistical approach of the transfer

The flux which is emitted by a cell J, volume element V_J, in the elementary solid angle $\mathrm{d}\Omega$ around the direction $\mathbf{u}(\mu, \varphi)$, and is *directly* extinguished around the point M_k of abscissa x_k is given by the variation of the flux emitted by the cell J and directly incident around the point M_k, *i.e*

$$\mathrm{d}\Phi^{e,ext}_{J\,k}(\mu) = -\mathrm{d}\Phi^{*e}_{J}(\mu)\, \mathrm{d}_{x_k/\mu}\tau(x_{j+1}, \mu, x_k/\mu)\, \mathrm{d}\mu\, \mathrm{d}\varphi \tag{4.18}$$

The quantities μ, φ and τ, that depends in fact on x_k/μ, are statistically independent, and their distribution functions are respectively : $f_1(\mu) = 1/2$, $f_2(\varphi) = 1/2\pi$ and $f_3(\tau) = 1$. Consequently, Equation 4.18 writes, in terms of distribution functions

$$\mathrm{d}\Phi_{Jk}^{e,ext}(\mu) = -4\pi \mathrm{d}\Phi_J^{*e}(\mu) f_1(\mu) f_2(\varphi) f_3(\tau) \mathrm{d}_{x_k/\mu}\tau(x_{j+1}, \mu, x_k/\mu)\mathrm{d}\mu\mathrm{d}\varphi \quad (4.19)$$

As the model is expressed in terms of cumulated distribution functions, it is easily implemented in a statistical Monte Carlo calculation. The Monte Carlo approximation consists in estimating the power emitted by the J^{th} cell and extinguished (absorbed or scattered) by the K^{th} one by averaging the contributions of a huge number of realisations of optical paths (see Appendix A).
As the albedo $1 - \alpha_J$ of the medium is uniform under the assumption of a diffuse reflection law on a gray wall, each optical path is characterised by : (1) An initial direction $\mathbf{u}(\mu, \varphi)$; (2) The value of the transmissivity at the extinction point $\tau(x_{j+1}, \mu, x_k/\mu)$ which determines the distance of extinction $s = x_k/\mu$; (3) The probability of absorption or scattering at each extinction point ; (4) The direction of scattering if scattering occurs. The determination of this direction generally depends on joined distribution functions of the incidence and scattering directions. The case of a slab of a packed bed is detailed in the next subsection.
The generation of an optical path will therefore requires the generation of a set of these variables from the appropriate distribution functions.
If $\mathcal{N}_J$ optical paths are generated from the cell J, in all directions $\mathbf{u}$, only the emitted power quanta of $\mathcal{N}_{JK}$ paths are finally absorbed in the cell K, after possible multiple scattering events : Each path gives rise to the non zero contribution $4\pi \mathrm{d}\Phi_J^{*e}(\mu)$ where 4π is the factor of normalization of the distribution functions as introduced in Eq. (4.19). The total power emitted by the cell J and absorbed by the cell K is then simply approximated by

$$\mathcal{P}_{JK}^{ea} = \frac{1}{\mathcal{N}_J} \sum_{\mathcal{N}_{JK}} 4\pi d\Phi_J^{*e}(\mathbf{u}) \quad (4.20)$$

The radiative power applied to a cell J is then

$$\mathcal{P}_J^R = \sum_K \mathcal{P}_{KJ}^{ea} - \mathcal{P}_{JK}^{ea}, \quad (4.21)$$

where the sum over K includes J. The possible reflection events at the system walls are classically treated similarly to scattering events.
The use of the radiation reciprocity principle

$$\frac{\mathcal{P}_{KJ}^{ea}}{\sigma T_K^4} = \frac{\mathcal{P}_{JK}^{ea}}{\sigma T_J^4} \quad (4.22)$$

allows both the validity of the numerical implementation to be checked and the computing time to be shortened for a given accuracy. The standard deviation

of $\mathcal{P}^{e\,a}_{J\,K}$ decreases classically as $1/\sqrt{\mathcal{N}_J}$ at the statistical limit of large path numbers. Moreover, when the system thermophysical properties do not vary with temperature, it is interesting to normalize the correlated emitted power $d\Phi^{*e}_J(\mathbf{u})$ by σT_J^4.

4.3.3 Implementation of the phase function for a slab of a packed bed

In Section IID, the phase function has been expressed as a function of the distribution functions of the normal unit vectors $F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i}, \mathbf{r_I})$ and the scattering directions $F_{\mathbf{u_{sc}}}(\mathbf{n})$. In the general case, the incidence and scattering directions $\mathbf{u_i}$ and $\mathbf{u_{sc}}$ and the normal unit vector $\mathbf{n}$ are respectively characterised, in the porous medium axes, by (μ_i, φ_i), (μ_{sc}, φ_{sc}), and (μ_n, φ_n), where $\mu_m = \mathbf{u_m}.\mathbf{x}$ and φ_m (with $m = i, sc, n$) is an azimuthal angle.
In a slab of non-overlapping opaque spheres, enclosed between two walls normal to the x-axis, the following simplifications occur, due to the spherical symmetry of the particles and the statistical symmetry of the medium around the x-axis : (1) μ_n and φ_n are statistically independent ; (2) The distribution function of φ_n is uniform in $[0; 2\pi]$; (3) $F_{\mu_n}(\mathbf{u_i}, \mathbf{r_I})$, the distribution function of μ_n is independent of φ_i. Consequently, $F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i}, \mathbf{r_I})$, that can be statistically determined by a Monte Carlo method, writes

$$F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i}, \mathbf{r_I}) d\Omega_n = F_{\mu_n}(\mu_i, \mathbf{r_I}) \mathrm{d}\mu_n \frac{1}{2\pi} \mathrm{d}\varphi_n. \tag{4.23}$$

In addition, in the case of diffuse reflection, the distribution function of the scattering direction $\mathbf{u_{sc}}$ is classically given by

$$F_{\mathbf{u_{sc}}}(\mathbf{n}) d\Omega_{sc} = 2\mu^*_{sc} \mathrm{d}\mu^*_{sc} \frac{1}{2\pi} \mathrm{d}\varphi^*_{sc} \tag{4.24}$$

with $\mu^*_{sc} = \mathbf{n}.\mathbf{u_{sc}} \geq 0$ and $\cos(\varphi^*_{sc}) = \left(\frac{\mathbf{n} \wedge \mathbf{u_i}}{\|\mathbf{n} \wedge \mathbf{u_i}\|} \right) .\mathbf{u_{sc}}$.
The phase function can thus be built by successive generations of μ_n, φ_n, μ^*_{sc} and φ^*_{sc} with appropriate distribution functions.

4.3.4 Particular case of a Beerian homogeneous slab

In the particular case of a statistically homogeneous and isotropic medium of porosity Π, the homogenized propagation phase is Beerian and characterised by an extinction coefficient β and an absorption coefficient $\kappa = \alpha\beta$. A Beerian cumulative distribution function is then noted $g_{ext}(s)$ and only depends on the distance s between the two considered points (Tancrez and Taine 2004). In this case useful simplifications are

$$\tau(s) = 1 - g_{ext}(s) = \exp(-\beta s), \tag{4.25}$$

and for : $dx_J = x_{j+1} - x_j << 1$

$$1 - g_{ext}(dx_J/\mu) = \beta dx_J/\mu. \tag{4.26}$$

Using the statistical independence of the transmissivities given by Eq. (1), the power emitted by the cell J and directly incident on the point M_k according to Eq.(4.12) simply becomes

$$\mathrm{d}\Phi^{e,inc}_{Jk}(\mu) = d\Phi^e_J(\mu)\tau(x_{j+1},\mu,x_k)\mathrm{d}\mu\,\mathrm{d}\varphi \tag{4.27}$$

with

$$d\Phi^e_J(\mu)\mathrm{d}\mu\,\mathrm{d}\varphi = \Pi\kappa I^\circ(T_J)dV_J\mathrm{d}\mu\,\mathrm{d}\varphi. \tag{4.28}$$

The correlation factor $f_{J,k}(\mu)$ is then equal to unity.
In addition, in a statistically homogeneous and isotropic medium, the distribution function of the normal unit vectors is (Tancrez and Taine 2004)

$$\begin{aligned} F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I})\mathrm{d}\Omega_n &= 0 \text{ for } \mathbf{u_i}.\mathbf{n} \geq 0 \\ &= -\mathbf{u_i}.\mathbf{n}\frac{\mathrm{d}\Omega_n}{\pi} \text{ for } \mathbf{u_i}.\mathbf{n} \leq 0 \end{aligned} \tag{4.29}$$

which leads to

$$p(\cos(\theta_s)) = \frac{8}{3\pi}\left(\sin(\theta_s) - \theta_s\cos(\theta_s)\right) \tag{4.30}$$

where $\cos(\theta_s) = \mathbf{u_i}.\mathbf{u_{sc}}$

4.4 Numerical Method for a slab of packed bed

4.4.1 Monte Carlo algorithm

At this step, radiative fluxes are statistically characterised by : 1) The cumulative distribution function $G_{ext}(x_j,\mu,x_k) = 1 - \tau(x_j,\mu,x_k)$; 2) The two distribution functions associated with μ and φ ; 3) For each scattering event, the distribution function of the normal unit vectors $F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i},\mathbf{r_I})$, the distribution function of the scattering direction $F_{\mathbf{u_{sc}}}(\mathbf{n})$. Moreover, the quantities μ, φ, μ_n, φ_n, μ_{sc}, φ_{sc}, x_k/μ and x_k/μ_{sc} are statistically independent. All the associated cumulative distribution functions are the key quantities of a Monte Carlo simulation, that is the most efficient method for a scattering medium.
A huge number of realisations of optical paths is used to estimate $\mathcal{P}^{ea}_{JK}$, the power emitted by the cell J and absorbed by the cell K. All random numbers are generated with the Mersenne Twister algorithm (Matsumoto and Nishimura 1998).
For each cell J, three random numbers (r_1, r_2, r_3) are generated according to the distribution functions $f_1(\mu) = 1/2$, $f_2(\varphi) = 1/2\pi$ and $f_3(\tau) = 1$. The initial direction $\mathbf{u_i}$ is given by r_1 and r_2, whereas r_3 allows precise extinction points

x_k/μ to be determined by solving $G_{ext}(x_{j+1}, \mu, x_k) = r_3 . \, \mathrm{d}\Phi^e_J(\mu)$, power emitted by the cell J and the correlation factor $f_{J,k}(\mu)$ are then calculated according to the previous section. After a huge number of shots, emission, transmission and extinction by absorption or scattering are then statistically correlated ; It is a specific property of statistically non homogeneous media.
Another random shot r_4 in the range $[0, 1]$ allows absorption or scattering to be discriminated. Two cases occur :
1) $r_4 < \alpha_K$: All the correlated power $d\Phi^{*e}_J(\mu)$ of the path, initially emitted by J in the direction (μ, φ), is then absorbed at the point x_k of K. $\mathcal{P}^{e\,a}_{J\,K}$, the whole power emitted by the cell J and absorbed by the cell K, is then incremented.
2) $r_4 > \alpha_K$: All the correlated power $\mathrm{d}\Phi^{*e}_J(\mu)$ of the path, initially emitted by J in the direction (μ, φ), is then scattered at the point x_k. Shots of two new random number r_5 and r_6 allow the normal unit vector to be determined from the cumulative distribution functions associated with $F_{\mu_n}(\mu, \mathbf{r_I})$ and $F_{\varphi_n} = 1/(2\pi)$. Finally, shots of two other numbers r_7 and r_8, from the cumulative distribution function associated with $F_{\mu^*_{sc}} = 2\mu^*_{sc}$ and $F_{\varphi^*_{sc}} = \frac{1}{2\pi}$ allow the scattering directions in the local frame $(\mu^*_{sc}, \varphi^*_{sc})$ and in the global frame (μ_{sc}, φ_{sc}) to be also obtained. As discussed in Subsection 4.2.3, a scattered flux at the point x_k in a direction (μ_{sc}, φ_{sc}) is not correlated with the incident one in the direction (μ, φ).
As the emitted power $\mathrm{d}\Phi^{*e}_J(\mathbf{u})$ is normalized by $\pi I^\circ(T_J)$, the normalized matrix of $\mathcal{P}^{e\,a}_{J\,K}$, stochastically determined by the previous calculation, is independent of the temperature profile in the slab. The radiation reciprocity principle has to be checked ; It also allows the convergence to be accelerated. The radiative power P^R_J in any volume element is then deduced, for a given temperature profile, as the difference between the absorbed power P^a_J and the emitted power P^e_J. The temperature profile complying with the energy balance equation and the boundaries conditions is finally calculated from an iterative algorithm.

4.4.2 Validation of the numerical approach

For the validation of the numerical approach of Section III presented in the previous section, two reference cases are used :(1) In an emitting, absorbing and non-scattering semitransparent medium bounded by two gray opaque walls of emissivities $\varepsilon_{1\nu}$ and $\varepsilon_{2\nu}$ and temperature T_1 and T_2, analytical expressions of the mono-dimensional radiative power field are available in the bibliography (Taine, Enguehard, and Iacona 2014), (Modest 2003). (2) In an emitting, absorbing and scattering semitransparent media bounded by two gray opaque walls, such as the medium between the walls is optically thick and a Fourier law can be used according to Ref. (Gomart and Taine 2011), for small temperature gradients. This validation has been carried out in a homogeneous medium characterised by an exponential cumulative distribution function of extinction $g_{ext}(M, \mathbf{u}, s) = 1 - exp(-\beta s)$ and a uniform porosity $\Pi = 1$, by using the general expression of the power emitted $\mathrm{d}\Phi^{*e}_J(\mu)$.

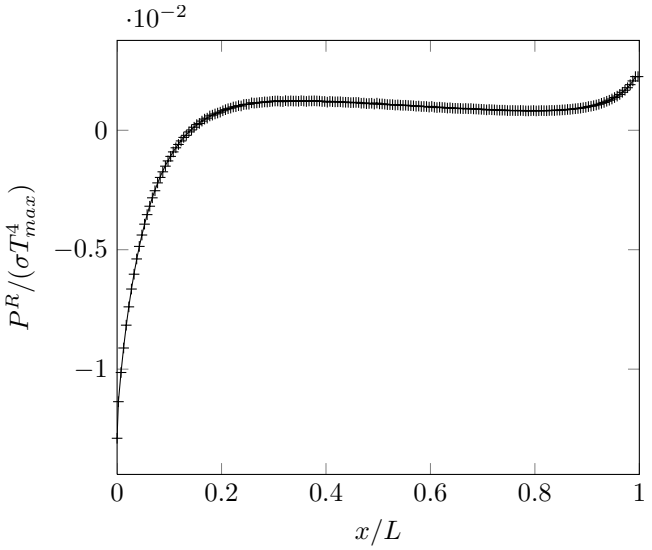


Figure 4.4 – *Normalised radiative power within a slab of absorbing coefficient κ and thickness L ; $\kappa L = 10$, $\varepsilon_{w1} = \varepsilon_{w2} = 0.6$, $\omega = 0$; Lineary decreasing temperature profile between $T(x = 0) = T_{max}$ and $T(x = L) = 0.5\,T_{max}$; $dx = 5.10^{-3}L$. Calculation from the Monte Carlo approach (+) with $\mathcal{N} = 10^6$ realizations per cell ; analytical (solid line).*

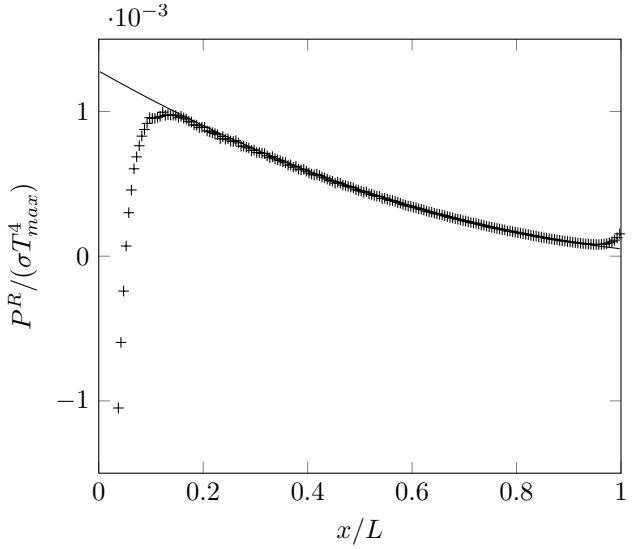


Figure 4.5 – *Normalised radiative power within a slab of absorbing coefficient κ and thickness L ; $\kappa L = 40$, $\varepsilon_{w1} = \varepsilon_{w2} = 0.8$, $\omega = 0.2$; Linearly decreasing temperature profile between $T(x = 0) = T_{max}$ and $T(x = L) = 0.2\,T_{max}$; $dx = 5.10^{-3}L$. Calculation from the Monte Carlo approach (+) with $\mathcal{N} = 5.10^6$ realizations per cell ; Fourier law (solid line)*

Various cases have been tested with various temperature profiles, absorption and scattering coefficients and walls emissivities. For all cases, the radiative power calculated with the Monte Carlo method presented in Sec. IV.A P^R_{MC} is in agreement with radiative power calculated from the reference models P^R_{ref}. For 1.10^6 realizations per cell, a typical error $|P^R_{MC} - P^R_{ref}|/P^R_{ref}$ of 0.4% is obtained for a standard deviation $\sigma(P^R_{MC})/P^R_{MC}$ of 0.8% in a non-scattering media, (Fig.(4.4))and an error of 0.8% for a standard deviation of 1.5% in a scattering media (Fig.4.5)) in the limit of validity of the Fourier law.

4.5 Application to a strongly non-homogeneous packed bed

The models of Sections II and III and the numerical approach of Section IV is applied to a packed bed of spherical particles. The solid phase is assumed to be insulated and the fluid phase void.
The porous medium is divided in N_C cells ($n = 1, ..., N_C$) and two other cells ($n = 0$ and $n = N_C + 1$) represent the walls. All the values of the radiative power (in W) $\mathcal{P}_R(n)$ are calculated according to Eq. 21. $\mathcal{P}_R(0)$ and $\mathcal{P}_R(N_C+1)$ are, in fact, the radiative fluxes at the boundaries, and $T(0)$ and $T(N_C + 1)$ the wall temperatures.
The radiative properties of the homogenized phase associated to this porous medium are characterised in Ref. (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2013). Strong porosity gradients appear in vicinity of the walls ; Consequently the quantitative validity criterion of Beer law defined by Zeghondy et al. (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006a) is not verified for a distance to the wall smaller than six sphere diameters.
The reciprocity property of the extinction cumulative distribution function G_{ext} established in Sec. 2 has been checked. Fig.(4.6) shows an example of a mapping of $\ln\left[\Pi(x)\left(1 - G_{ext}(x, \mathbf{u}, x')\right)\right]$ for $\mu = \mathbf{u}.\mathbf{x} = \pm 1$, which is symmetric according to Eq.(4.3).

4.5.1 Radiative power exchanged in non-homogeneous media

The matrix of the normalized exchanged power $\mathcal{P}^{e\,a}_{I\,J}$ is calculated by the Monte Carlo approach of Section IV for a given set of radiative properties ε_w, ω, $G_{ext}(x, \mathbf{u_{ij}}, x')$. The cell size d$x$ and the number of realizations of optical paths per cell $\mathcal{N}$ have to be optimized. The results are independent of the cell size for : d$x \leq 5.10^{-2} D$. For instance, Fig. (4.7) represents the matrix $\mathcal{P}^{e\,a}_{I\,J}$ for a purely absorbing porous medium bounded by black opaque walls with $L = 10D$. The matrix is symmetric with respect to the two diagonals. The first symmetry is due to the reciprocity principle given by Eq. (4.22) ; The second one to the configuration symmetry in $x = L/2$.
The sum $\mathcal{P}^{*e}_I(\mu)$ of all fluxes emitted by a cell V_I in a direction μ, which account

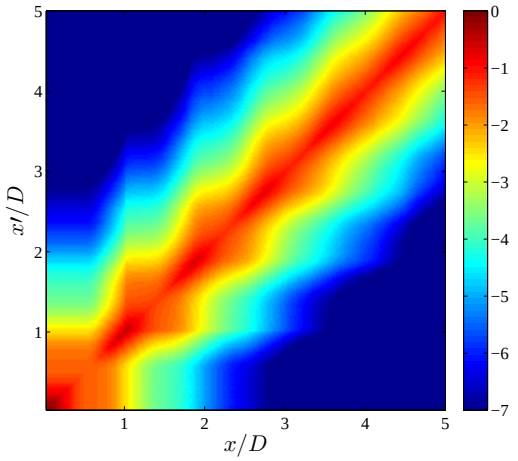


Figure 4.6 – $\ln\left[\Pi(x)\left(1-G_{ext}(x,\mathbf{u},x')\right)\right]$ *vs* x/D *or* x'/D *in the range [0,5] for the specific directions* $\mathbf{u}=\pm\mathbf{x}$. *The upper left and bottom right triangles respectively correspond to* $\ln\left[\Pi(x)\left(1-G_{ext}(x,\mathbf{x},x')\right)\right]$ *and* $\ln\left[\Pi(x')\left(1-G_{ext}(x',-\mathbf{x},x)\right)\right]$.

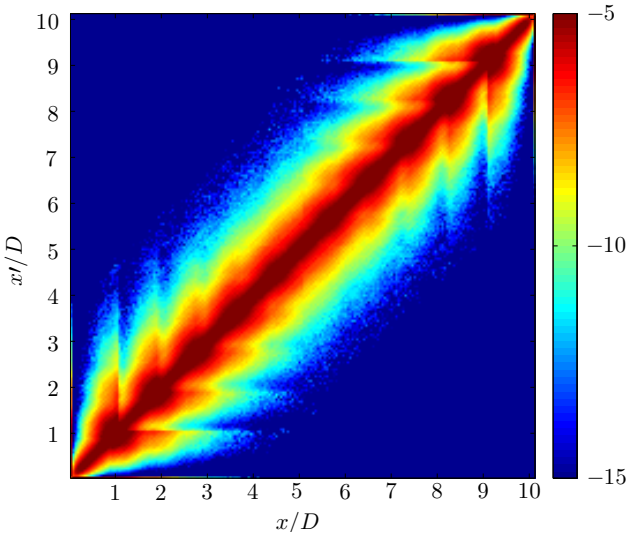


Figure 4.7 – *Typical example of* $\ln\left(\mathcal{P}^{e\,a}_{I\,J}\right)$ *matrix;* $\mathcal{N}=5.10^5$ *realizations per cell;* $N_C=200$, $L=10D$, $\omega=0$ *and* $\varepsilon_w=1$.

for the correlation factor between the cell of emission and the cell of absorption, is compared in Fig. 8 with the flux outgoing of the same cell V_I in the direction μ at the only abscissa x_{i+1},*i.e* $\mathrm{d}\Phi^e_J(\mu)$ given by Eq. 4.13, without accounting for the correlation factor. $\mathcal{P}^{*e}_I(\mu)$ is determined as

$$\mathcal{P}^{*e}_I(\mu)=\sum_{J\neq I}\mathcal{P}^{e\,a}_{I\,J}(\mu) \tag{4.31}$$

As shown in Fig.(4.8), the present model does not compromise the energy

conservation within the system.

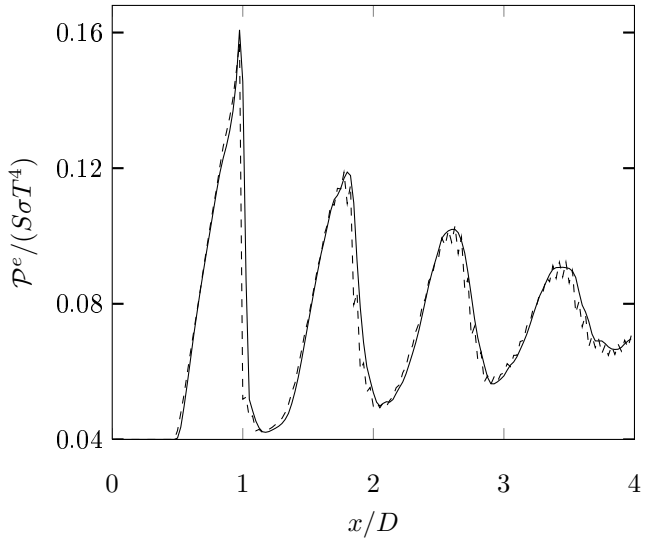


FIGURE 4.8 – *Comparison between* $\mathcal{P}_I^{*e}(\mu)/\sigma T_I^4$ *given by Eq.(4.31) (solid line) and* $\mathrm{d}\Phi_J^e(\mu=1)/\sigma T_I^4$*, given by Eq.(4.13) (dashed line) :* $\mathrm{d}x = 25.10^{-3}D$*,* $\omega = 0$*,* $\varepsilon_w = 1$*.*

In addition, the factor of correlation $f_{J,k}(\mu)$ has been determined from G_{ext}, according to Eq.(4.15) and is shown in Fig.(4.9). As expected, $f_{J,k}(\mu)$ is close to 1 in the bulk (near $x_{j+1} = 5D$), where the medium is homogeneous and isotropic and consequently almost beerian. On the contrary, $f_{J,k}(\mu)$ deviates to lower or higher values near the walls (near $x_{j+1} = D$).

4.5.2 Validation of temperature fields in purely absorbing non-homogeneous media in steady state

In this case, the temperature fields are iteratively determined by assuming a radiative steady state, *i.e.*

$$\mathcal{P}_R(i) = 0 \qquad i = 1, ..., N_C \tag{4.32}$$

with the boundary conditions

$$\mathcal{P}_R(0) = S\varphi_w(0), \qquad T(N_C + 1) = T_0, \tag{4.33}$$

with $\varphi_w(0)$ the uniform flux imposed at the wall $x = 0$ of surface S.
Obviously, the energy conservation within the medium leads, by accounting for Eq.(4.21) to : $\mathcal{P}_R(N_C + 1) = -\mathcal{P}_R(0)$.
Temperature fields are shown in the academic case of a purely emitting and absorbing media bounded by black walls for different wall flux values in Fig. (4.10) for the conditions of Kaviany et al. (Kaviany 1995). Kaviany et al. have modeled this simple system by using a radiative conductivity.

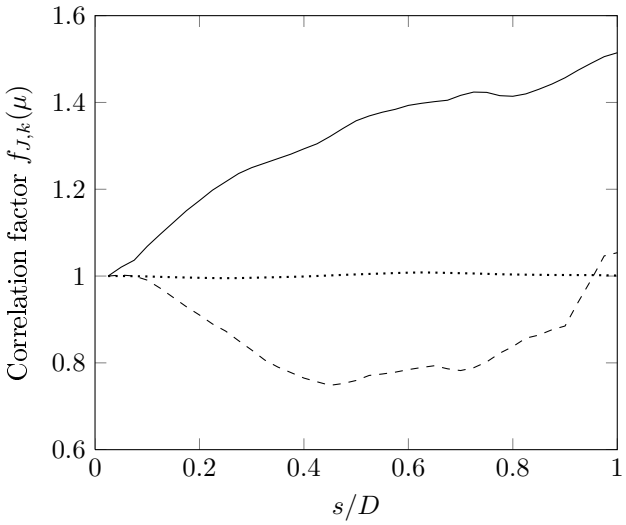


Figure 4.9 – *Factor of correlation $f_{J,k}(\mu)$ between the cell J in the range $[x_{j+1} - \mathrm{d}x, x_{j+1}]$ and the plane k of abcissa $x_k = (x_{j+1} + \mu s)$ with $\mathrm{d}x = 2.5\ 10^{-2} D$; $x_{j+1} = D$, $\mu = -1$ (solid curve) ; $x_{j+1} = D$, $\mu = -0.5$ (dashed curve) ; $x_{j+1} = 5D$, $\mu = 0.05$ (dotted curve).*

As shown in Fig. (4.10), this approach clearly does not work in the vicinity of the wall of which the temperature is not imposed. It works better and better when the distance to this wall increases. The medium then becomes statistically homogeneous and isotropic, *i.e.* beerian.
The temperature fields are physically not monotonous : Temperature oscillations occur in the vicinity of $x = D$ and $x = 9D$, due to the organization of the particles close to the walls as shown, for instance, in Fig 4.11, where Σ_2 is directly heated by the wall whereas Σ_1 is heated by both Σ_2 and the bulk of the porous medium. If the wall is hotter than the bulk, the temperature of Σ_2 is larger than the one of Σ_1 and reciprocally.
The previous temperature profiles have been pragmatically fitted, in the bulk of the medium by an equivalent effective radiative conductivity of the type : $\lambda^F = \chi D \sigma T^3$, based on the idea that an effective absorption coefficient is proportional to $1/D$. The result is : $\chi = 0.76 \pm 0.02$. This value agrees with the value issued from the correlation given by Kaviany et al. (Kaviany 1995) : $\lambda^F = 4 F D \sigma T^3$ where F is a radiative exchanged factor introduced by the authors to account for the effect of the conductivity within the packed bed of spherical diffuse particles. Without any conduction, the proposed correlation gives : $\chi = 4\,F = 0.74$.
In conclusion, when the radiative Fourier law is valid, the two models agree, but temperature variations are not correctly predicted by a radiative Fourier law in a wall vicinity. Note that a typical value of λ^F is 6.9 $WK^{-1}m^{-1}$ for $D = 20mm$ and $T = 2000K$.

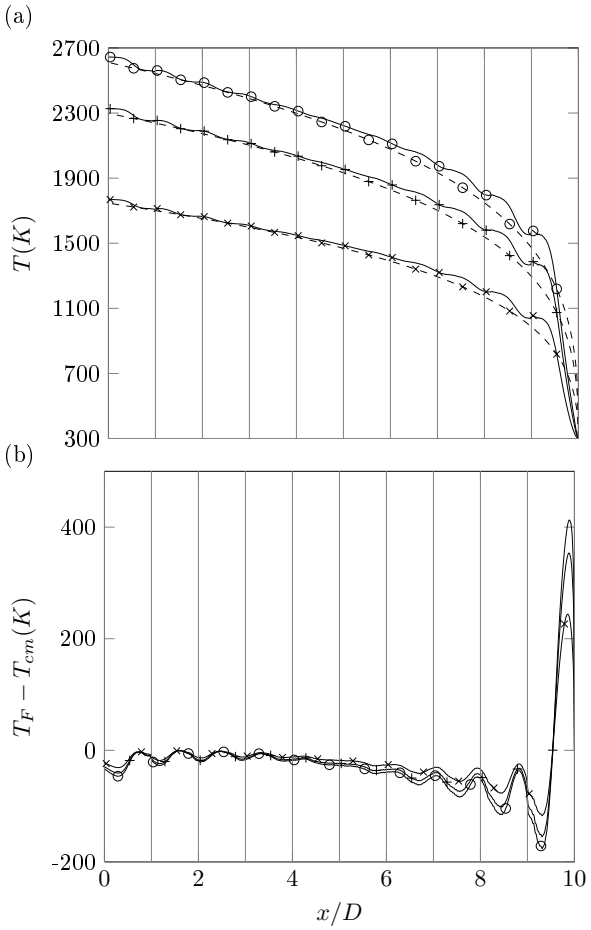


FIGURE 4.10 – *(a) Temperature profiles in radiative steady state within a purely absorbing medium bounded by black walls : $\varphi_w = 10kWm^{-2}$ (×), $\varphi_w = 30kWm^{-2}$ (+), and $\varphi_w = 50kWm^{-2}$ (○) ; Results from the complete model T_{cm} (solid lines), and corresponding fitted profiles with an effective radiative conductivity T_F, (dashed lines) ; $T_0 = 300K$. (b) Residuals of the regression.*

Nevertheless, the case of a purely absorbing porous medium is of weak practical interest. Indeed, porous media are generally characterised by strong backward scattering effects.

4.5.3 Scattering and absorbing non homogeneous packed beds

The phase function of the considered strongly non homogeneous packed bed is determined from the distribution functions of the unit vectors normal to the solid walls $F_{\mu_n}(\mu_i, \mathbf{r_I})$, as explained in Section 2. Typical examples are shown in Fig. 4.12. As expected, the functions $F_{\mu_n}(\mu_i, \mathbf{r_I})$ are independent of the ray incident directions μ_i at the plane boundary of the porous medium (*i.e.* for $x = 0$ and $\mu_i = 1$ and $\mu_i = 0.5$ in the figure), where all surface elements have

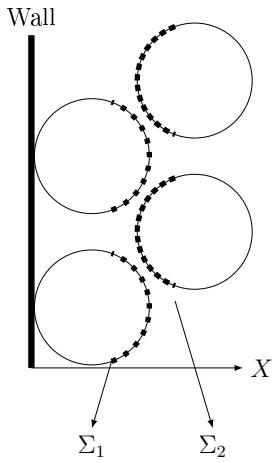


Figure 4.11 – *Example of particles configuration in the vicinity of a wall.*

the same normal unit vector. On the contrary, in the bulk, all normal unit vectors are represented and $F_{\mu_n}(\mu_i, \mathbf{r_I})$ depends on the incident directions μ_i.

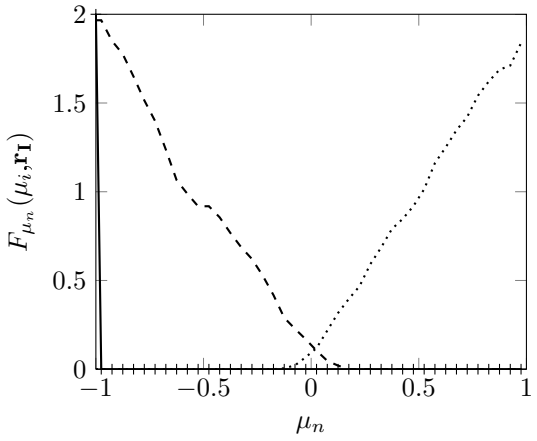


Figure 4.12 – *Distribution of the normal for $x_i = 0$, $\mu_i = 1$ (++) ; $x_i = 0$, $\mu_i = 0.5$ (solid line) ; $x_i = 5D$, $\mu_i = 1$ (dashed line) ; $x_i = 5D$, $\mu_i = -1$ (dotted line).*

Temperature profiles, in the case of a radiative steady state, have been determined for scattering, absorbing and emitting media by the same model as previously (Equations 4.32 and 4.33).
For the considered backscattering case, the apparent extinction (characterised by $\kappa + (1-g)\sigma$ in a beerian medium) is increased. Indeed, the flux is classically inversely proportional to the apparent extinction (Taine, Enguehard, and Iacona 2014). As a result, when the flux is imposed the temperature variation increases as shown in Fig. 4.13, when ω increases.
Note that in Fig.4.13 the temperature T_0 corresponds to the room tempera-

ture and the flux φ_w is typical of an industrial processes. In absence of energy consumption or convection transfer within the medium, it results in very important temperature gradients. Nevertheless, this arbitrary choice has no influence on the results, the relative effect being similar with lower fluxes and lower temperatures.

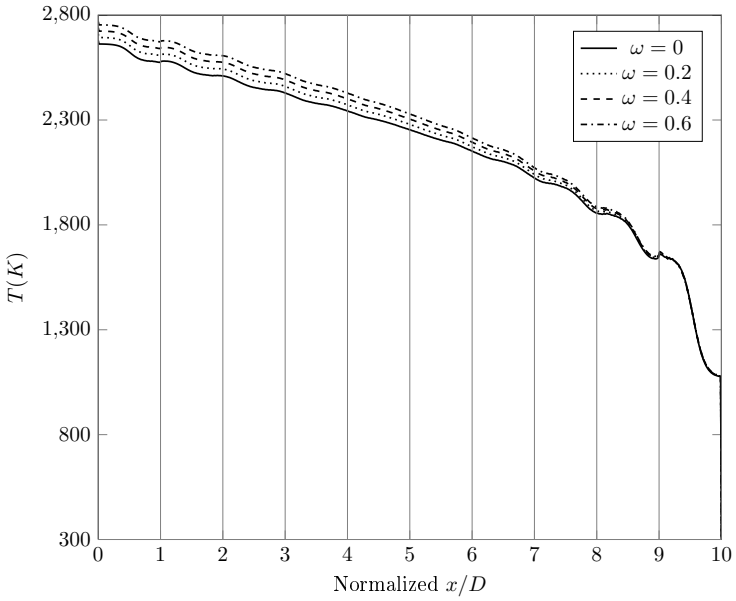


FIGURE 4.13 – *Temperature profiles in a scattering and absorbing medium bounded by walls ($\varepsilon_w = 0.4$) issued from the Monte Carlo approach for $\varphi_w = 50kWm^{-2}$ for various albedo ω .*

4.5.4 Limitations of the usual models

In any kind of medium, at the optically thin limit a coefficient of extinction can be determined as

$$\beta_{OT}(M,\mathbf{u}) = \left(\frac{\partial G_{ext}(M,\mathbf{u},s)}{\partial s}\right)_{s\to 0} \tag{4.34}$$

In non beerian medium, this coefficient has no physical meaning out of this limit. On the contrary, in beerian media this equation gives the real extinction coefficient.

One of the models presented in the followings is based on a fictive beerian medium characterised by the extinction coefficient given by Eq.(4.34) in the case of a strongly nonhomogeneous nonbeerian medium. This model is pragmatical : *The fictive medium can be non physical*, since the associated exponential cumulated distribution of extinction $g_{ext}(M,\mathbf{u},s)$:

$$g_{ext}(M(s_0),\mathbf{u},s) = 1 - \exp\left(\int_{s_0}^{s_0+s} \beta_{OT}(M(s'),\mathbf{u})\mathrm{d}s'\right) \tag{4.35}$$

generally does not verify the reciprocity principle of Eq.(4.3).
In this section, pragmatical approximate models based on the Fourier law or on the extinction coefficient at the optically thin limit applied to this fictive beerian medium are compared to the complete models of Sections II to IV, considered as reference.

4.5.4.1 Limitations of the Fourier law

The temperature profile has first been computed by assuming a Fourier law, based on nonhomogeneous isotropic radiative conductivities. A local radiative conductivity has been determined according to Ref. (Taine, Enguehard, and Iacona 2014), (Gomart and Taine 2011) by using an average isotropic extinction coefficient at the optically thin limit $\beta_{OT}(M)$:

$$\beta^{OT}(M) = \frac{1}{4\pi}\int_{4\pi} \beta_{OT}(M,\mathbf{u})\mathrm{d}\Omega \tag{4.36}$$

and an average asymmetry factor g, estimated in the case of a diffuse reflexion law by (Howell 1998) :

$$g = \frac{1}{2}\int \frac{8}{3\pi}\left(\sqrt{1-\mu_S^2} - \cos^{-1}(\mu_S)\mu_S\right)\mu_S \mathrm{d}\mu_S = -0.444 \tag{4.37}$$

A comparison between temperature profiles T_F and T_{cm}, issued from the Fourier model and complete model calculations respectively, is shown in Fig. 4.14. The very close agreement in the bulk between T_F and T_{cm} was expected for such a porous medium. Indeed, Gomart and Taine have introduced a validity criterion of the Fourier law (Gomart and Taine 2011)

$$\frac{1}{T}\frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}x} < \zeta(\varepsilon_F)\,\kappa^{eff}(\omega,g) \tag{4.38}$$

where ζ is a function of ε_F, the relative precision criterion on P^R, $\kappa^{eff}(\omega,g) = C(\omega,g)\kappa$ an effective absorption coefficient : ζ and $C(\omega,g)$ are tabulated in Ref. (Gomart and Taine 2011). For instance, $\omega = 0.4$ and $g = -0.444$ lead to : $C(\omega,g) = 1.51$. $\zeta = 0.033$ or $\zeta = 0.1$ for a relative precision of 1% or 10% respectively.
When ε_F, the relative precision criterion on P^R, is equal to 1%, the Fourier law is not valid for $x/D > 6.5$ according to Fig.4.14(c). This prediction goes along with the results obtained Fig.4.14(b). In addition, the error is very important, larger than 10%, for $x/D > 7.5$. For a practical application where radiation is coupled to convection, an accurate knowledge of the temperatures is needed at the boundaries. The use of the radiative Fourier law is then not valid.

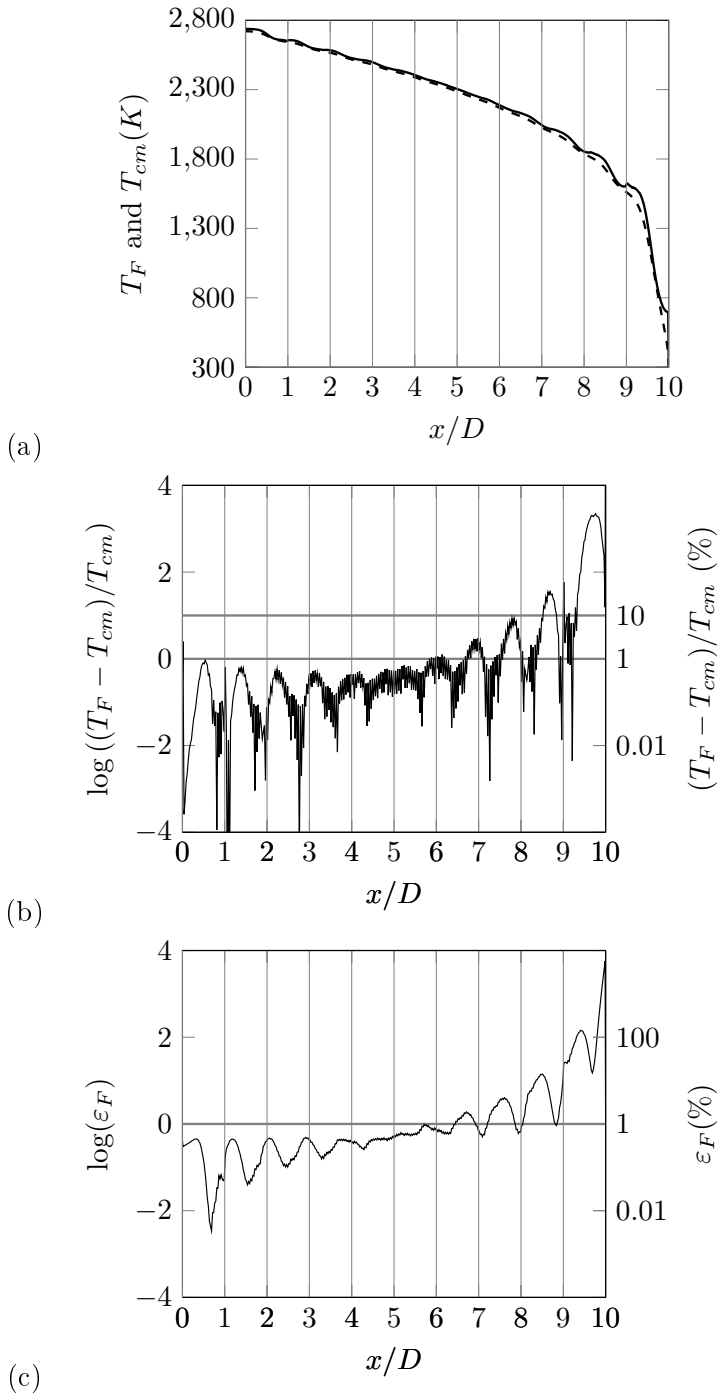


Figure 4.14 – *(a) Comparison of the temperature profiles issued from a Fourier law (T_F, red curve) and Monte Carlo calculations (T_{cm}, blue curve) in a scattering and absorbing medium bounded by grey walls. (b) Logarithm of the relative discrepancy on the temperatures (c) Logarithm of the validity criterion of the Fourier law* $\log(\varepsilon_F)$. *The Fourier law is valid with a precision of* $(T_F - T_{cm})/T_{cm} < 1\%$ *if* $\varepsilon_F < 1$. $\varepsilon_w = 0.8$ *;* $\omega = 0.4$ *;* $\varphi_w = 50kWm^{-2}$, $T_0 = 300K$.

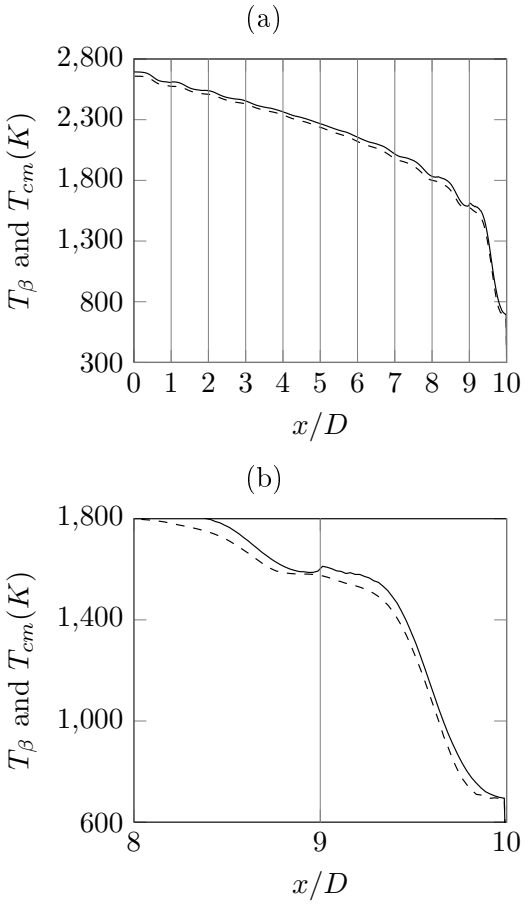


Figure 4.15 – *(a) Comparison of the temperature profiles from the pragmatical model (T_β, dashed curve) and complete model (T_{cm}, solid curve) for a scattering and absorbing medium bounded by walls. (b) Zoom on the overheating region ;* $\varepsilon_w = 0.8$ *;* $\omega = 0.4$ *;* $\phi_w = 50 kW m^{-2}$, $T_0 = 300K$.

4.5.4.2 Limitations of the model based on exponential extinction

We consider now the pragmatical model based on Equations (4.34) and (4.35). As a consequence of the exponential distribution function of extinction, the correlation factor is equal to unity and the emitted power by optically thin cell writes $\mathcal{P}^e_I(\mathbf{u}) = 4\Pi_I \beta^{OT}(I,\mathbf{u})\sigma T_I^4 \mathrm{d}V_I$. In addition, absorption and scattering are statistically independent.

After calculation of the real $G_{ext}(M,\mathbf{u},s)$ and phase functions and the determination of the extinction coefficients at the optically thin limit $\beta^{OT}(I,\mathbf{u})$, the radiative transfer can be solved by a Monte Carlo method for non-homogeneous and anisotropic media, similar to the approach of Gomart (Gomart and Taine 2011).

The temperature profiles computed by the β_{OT}-based model T_β has been com-

pared to those issued from the reference model presented in the previous sections T_{cm}, and the results are shown in Fig. 4.15. A good agreement is found : The β_{OT}-based model correctly accounts for the non-homogeneity in the medium. However, due to beerian assumption, it is not able to describe local overheating associated to the near wall organization, resulting in an error larger than 2%. Indeed, only the reference non-Beerian model accounts for the local configuration of such a strongly statistically non-homogeneous medium, unlike models based on the Beer law.
Note that this β_{OT}-based model is still complex because it requires the complete characterization of the packed bed and the determination of all the extinction coefficients from the G_{ext} functions. Moreover, this pragmatical model must also account for the medium non-homogeneity and anisotropy.

4.6 Conclusion

An original radiation transfer model, dedicated to statistically non homogeneous porous media with a transparent phase and an opaque one, which do not follow Beer's law, has been developed and validated. The reflection law at local scale has been assumed diffuse. The model is only based on radiative statistical functions of extinction and scattering and a general phase function, which completely characterise the radiation properties of the medium. First, a reciprocity property of the cumulative distribution function of extinction connecting two points of the medium in a given direction and depending on the porosity has been proved. The key point of the model is to rigorously express the emission source term from the radiation reciprocity principle : This approach generalises for strongly non homogeneous porous media, under integral formulation, the Generalised Radiative Transfer Equation (GRTE) of Taine et al (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010). The model has been applied to the strongly non homogeneous case of a slab of a packed bed of spherical particles, by using a statistical Monte Carlo method. It allows results of the bibliography in the academic case of purely absorbing media to be accurately found. Moreover, in the regions in which the porous medium becomes statistically homogeneous and isotropic, *i.e.* beerian, the results of the new model agree with classical results, in particular with those a radiative Fourier law for an optically thick region, far from the porous medium boundaries. Realistic cases of scattering, absorbing and emitting porous media have been finally treated. The model also accurately accounts for local configurations resulting in non-monotonous temperature profiles.

Chapitre 5

Radiative transport model for axi-symmetrical strongly non homogeneous micro-structured scattering media

Sommaire

5.1 Introduction 114
5.2 Considered axi-symmetrical packed bed 115
5.3 Radiative transfer model for non homogeneous media 117
5.3.1 Absorption and scattering 119
5.3.2 Phase function 119
5.3.3 Power exchanged and optical path 120
5.4 Numerical Approach 121
5.4.1 Monte Carlo algorithm 121
5.4.2 Balance Equation within a Reactive Medium 122
5.4.3 Validation of the numerical approach 123
5.5 Results and Discussion 124
5.6 Application du modèle au réacteur tubulaire de vapo-reformage 124

Abstract

The paper is based on a recent general model (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2015) for radiation transfer in strongly non homogeneous media, that is directly based on only radiative statistical distribution functions, as absorption ad scattering coefficients have no physics meaning in these conditions; Emission is then treated from the radiation reciprocity principle. This model has then been detailed in the academic cases of slabs of statistically strongly nonhomogeneous packed beds of spherical particles. It is here extended to the more realistic configuration of a reactive porous medium within a tubular reactor. The radiative power exchanged within the reactive medium is computed from a Monte Carlo method. The temperature profiles are presented : They are non-monotonous, due to the local organization of the particles near the wall, *i.e.* due to the strong porosity of the medium.

5.1 Introduction

Micro-structured porous media are today used in more and more applications, such as reactors in catalytic combustion, insulation materials, solar absorbers, etc. Whereas investigations and design of materials were before based on experiments, the cost of numerical simulation makes it today a very advantageous approach. In all these applications, high temperatures are involved and radiative transfer can be predominant. Many heat and mass transfer models have been developed for the determination of the temperature field in porous media in the last decades (Kaviany 1995). Most of the radiation models are based on homogenization, *i.e* by replacing the phase of a porous medium with an equivalent continuous one, characterized by effective properties to be determined. In a radiative transfer model, the equivalent phase is commonly assumed beerian, *i.e.* extinction within the phase is exponential. With this assumption, various approaches have been proposed to determine the radiative properties of the homogenized phase (Baillis and Sacadura 2000). In highly ordered porous media, this hypothesis is however rarely valid (Chahlafi, Bellet, Fichot, and Taine 2012). Lipinski et al. have proposed to use an approach similar to the Volume Averaging Method of Whitaker and Quintard for radiation transfer in non beerian media (see, for instance, Ref.(Lipiński, Petrasch, and Haussener 2010)). An alternative statistical approach had previously been proposed by Tancrez and Taine to exhaustively characterize a priori non beerian media (Tancrez and Taine 2004) with the following radiative statistical functions :

(1) A cumulative distribution function of extinction $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$: It is the probability for a ray issued from the point M in the direction $\mathbf{u}$ in the equivalent continuous phase to be extinguished in the range $[0, s]$.
(2) A cumulative probability of absorption (or scattering) $P_a(M, \mathbf{u}, s)$ (or $P_{sc}(M, \mathbf{u}, s)$).
(3) A general phase function $p(\mathbf{u_i}, \mathbf{u_{sc}})$.

If the Beer law is valid, the extinction coefficient β_ν of the homogenized phase is then obtained from G_{ext} by the Radiative Distribution Function Identification method (RDFI) (Zeghondy, Iacona, and Taine 2006a) (Haussener, Lipinski, Petrasch, Wyss, and Steinfeld 2009). A validity criterion of the Beer law is then verified. If the Beer law is not valid, the extinction coefficient has no more physical meaning. The classical Radiative Transfer Equation (RTE), implicitly based on the Beer law can not be used in a general case.
For statically anisotropic and homogeneous media of this type, a differential Generalized Radiative Transfer Equation (GRTE) has been developed (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010). In this approach, generalized extinction and scattering coefficients, only functions of the radiative statistical functions, are introduced at the limit of a locally optically thick medium. They have been, for instance, used for determining a radiative the conductivity tensor, for modelling a nuclear reactor core in the conditions of a severe accident (Chahlafi, Bellet, Fichot, and Taine 2012).
A recent integral formulation of this Generalized Radiative Transfer Equation (GRTE) (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2015) allows statistically non homogeneous and anisotropic media to be modelled. This original approach is only based the radiative statistical functions : Indeed, the emission source terms have been expressed only from the reciprocity principle. The model has been applied to the academic case of a slab of packed spherical particles.
In the present study,a similar model is applied to an industrial case : A packed tubular reactor, *i.e* an axi-symmetrical configuration.
The tubular reactor is first shortly presented. Then the radiative model is applied to this axi-symmetrical medium in the second section, and numerical methods are presented in the third section. Finally, radiative fluxes and temperature profiles are computed : As catalytic reactions take place within the packed bed, radiative transfer is coupled to reactive source terms.

5.2 Considered axi-symmetrical packed bed

The system is a numerically generated packed bed of spherical particles of diameter D with an opaque solid phase and a transparent fluid one in a cylindrical enclosure as presented in Fig.(5.1). The following assumptions are used : (1) The morphology of the porous medium is known at a given spatial resolution δ ; (2) The radiative properties of the solid phase are grey and diffuse and known at a spatial resolution smaller than δ ; (3) As the radiation wavelengths are smaller than the typical pore size, the classical optics laws are valid.
Due to the axi-symmetry, the problem is one-dimensional : The medium is considered as statistically homogeneous along both the z-revolution axis and the θ angle, as shown in Fig.(5.2). As the medium is statistically nonhomogeneous and anisotropic along a radius r, all the radiative functions G_{ext}, P_a and P_{sc} depend on the initial point M of abscissa r, on the propagation direction $\mathbf{u}(\mu, \varphi)$

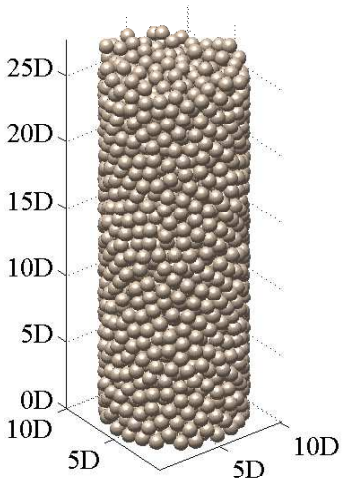


FIGURE 5.1 – *Numerically generated packed bed.*

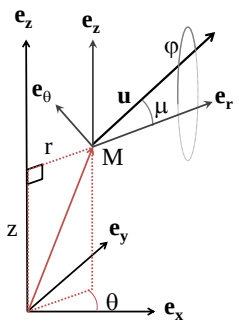


FIGURE 5.2 – *Spatial and angular coordinates. The vector* $\mathbf{u}$ *and angles* (μ, φ) *are defined in the rotating frame* $(M, \mathbf{e_r}, \mathbf{e}_\theta, \mathbf{e_z})$.

and on the propagation distance s between the initial and final points M and M' such as $\mathbf{MM'} = s\mathbf{u}$.
An example of strong radial variations of the porosity of this medium is shown in the Fig.(5.3).
In the particular case of media with a transparent propagation phase and a grey diffuse opaque one, $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ (also expressed as $G_{ext}(M, \mathbf{u}, M')$) depends on the morphology of the porous media only. $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ is determined by the Monte Carlo method presented in Ref.(Tancrez and Taine 2004). In addition, the albedo ω_J is independent of $G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ and $\omega_J = 1 - \alpha_J$ where α_J is the absorptivity of the grey opaque phase considered uniform in the cell J. As a consequence,

$$P_a(M_I, \mathbf{u}, M_J) = (1 - \omega_J) G_{ext}(M_I, \mathbf{u}, M_J) \quad (5.1)$$

$$P_{sc}(M_I, \mathbf{u}, M_J) = \omega_J G_{ext}(M_I, \mathbf{u}, M_J) \quad (5.2)$$

where ω_J is the albedo at the extinction point M_J.
It has been recently proven that in any porous media, the cumulated distribu-

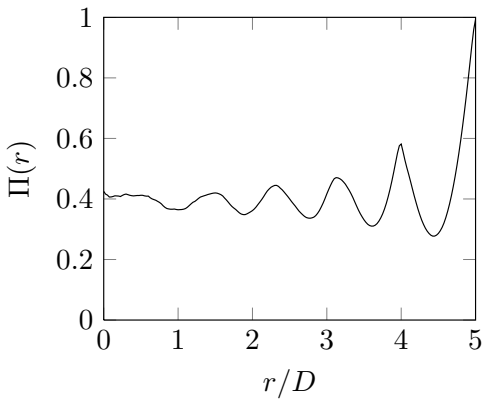


FIGURE 5.3 – *Radial variation of the local porosity* $\Pi(r)$ *within the packed bed.*

tion function of extinction is related to the porosity by the reciprocity relation (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2015) :

$$\Pi(M_I)\,(1 - G_{ext}(M_I, \mathbf{u}, M_J)) = \Pi(M_J)\,(1 - G_{ext}(M_J, -\mathbf{u}, M_I)) \qquad (5.3)$$

The cumulative distribution functions of extinction, the local porosity and the phase functions are computed by the stochastic Monte Carlo method of Ref.(Tancrez and Taine 2004). It has been found that the Beer law is practically valid only for $r < 2D$. For $r > 2D$, in particular for radiative transfer normal to the wall ($\mu = -1$), extinction coefficients do not have any physical meaning : A complete non-beerian model is required for the radiative transfer within this strongly non homogeneous medium.

5.3 Radiative transfer model for non homogeneous media

The model of Ref. (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2015) is applied to the axisymmetrical strongly non homogeneous considered medium. It allows the emission source term by a volume element to be expressed as a function of the radiative statistical functions and accounts for the correlation between emission and transmission due to the non-validity of the Beer law. The key equation of this model expresses the flux emitted by a cell I, volume element V_I of arbitrary large height H and in the range $[r_i; r_{i+1}]$, which is directly incident on the surface element $\mathrm{d}S_j$ centered in M_j and of radius r_j, as shown in Fig. (5.4)

$$\mathrm{d}\Phi_{Ij}^{e,inc} = \alpha_I I_\nu^\circ(T_I) \oint_{S_I} \Pi_i(1 - G_{ext}(i, \mathbf{u_{ij}}, j)) \frac{(\mathbf{n_i}.\mathbf{u_{ij}})\mathrm{d}S_i(\mathbf{n_j}.\mathbf{u_{ji}})\mathrm{d}S_j}{r_{ij}^2} \qquad (5.4)$$

Note that in Eq(5.4) the whole surface S_I of the element I is constituted by two cylindrical surfaces of radii r_i and r_{i+1} and all the vectors are defined in

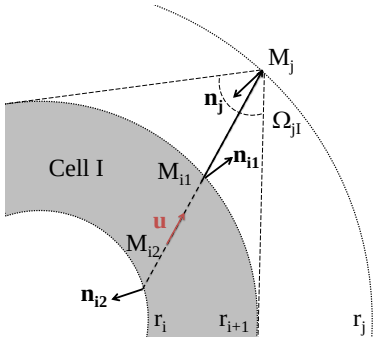


Figure 5.4 – *Illustration of two surface elements on the I cell boundary for the propagation direction* $\mathbf{u}$.

the rotating frame.
In Eq.(5.4), for a given direction $\mathbf{u} = \mathbf{u_{ij}} = -\mathbf{u_{ji}}$, with each surface element $\mathrm{d}S_{i_1}$ of a boundary of the cell I, centered in M_{i_1}, such as $\mathbf{n_{i_1}}.\mathbf{u} > 0$, is associated a unique surface element $\mathrm{d}S_{i_2}$ of the same cell I, centered in M_{i_2} such as $\mathbf{n_{i_2}}.\mathbf{u} < 0$, as shown in Fig(5.4).
By accounting for Eq.(5.3), Equation (5.4) becomes

$$\mathrm{d}\Phi_{Ij}^{e,inc} = \alpha_I I_\nu^\circ(T_I)\Pi_j \mathrm{d}S_j \int_{\Omega_{jI}} \left(G_{ext}(M_j, \mathbf{u_{ji}}, M_{i_2}) - G_{ext}(M_j, \mathbf{u_{ji}}, M_{i_1})\right) \mathbf{n_j}.\mathbf{u_{ji}} \mathrm{d}\Omega_{ji} \tag{5.5}$$

where $\mathrm{d}\Omega_{ji}$ is defined by

$$\mathrm{d}\Omega_{ji} = \frac{(\mathbf{n_i}.\mathbf{u_{ij}})\mathrm{d}S_i}{r_{ij}^2} \tag{5.6}$$

and Ω_{jI} is the solid angle between the whole cell I and the surface element $\mathrm{d}S_j$, as shown in Fig.(5.4). From Clausius theorem

$$\mathbf{n_j}.\mathbf{u_{ji}} \mathrm{d}S_j \mathrm{d}\Omega_{ji} = \mathbf{n_{i_1}}.\mathbf{u_{ij}} \mathrm{d}S_{i_1} \mathrm{d}\Omega \tag{5.7}$$

and Eq.(5.5), the flux which is emitted by a cell I and directly incident on the point M_j in the elementary solid angle $d\Omega$ around the only direction $\mathbf{u}$ writes

$$\begin{aligned} \mathrm{d}\Phi_{Ij}^{e,inc}(\mathbf{u}) \quad = \quad & [G_{ext}(M_j, -\mathbf{u}, M_{i_2}) - G_{ext}(M_j, -\mathbf{u}, M_{i_1}] \\ & \alpha_I I_\nu^\circ(T_I)\Pi_j \left(\mathbf{n_{i_1}}.\mathbf{u}\right) \mathrm{d}S_{i_1} \mathrm{d}\Omega \end{aligned} \tag{5.8}$$

where $\mathrm{d}S_{i_1}$ is equal to $H\, r_{i_1} \mathrm{d}\theta$. In this approach, which accounts for a strong correlation between emission and transmission, there is no introduction of an absorption coefficient.
A correlation factor between emission and transmission is introduced such as (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2015)

$$\mathrm{d}\Phi_{Ij}^{e,inc}(\mathbf{u}) = \mathrm{d}\Phi_I^e(\mathbf{u}) f_{I,j}(\mathbf{u}) \tau(M_{i_1}, \mathbf{u}, M_j) d\Omega \tag{5.9}$$

where $\mathrm{d}\Phi_I^e(\mathbf{u})$ is the flux emitted by I at the only abscissa M_{i_1} (see Fig.(5.4)) and $\tau(M_{i_1}, \mathbf{u}, M_j)$ is the transmissivity from M_{i_1} to M_j equal to $1-G_{ext}(M_{i_1}, \mathbf{u}, M_j)$. In the case of beerian media, $f_{I,j}(\mathbf{u})$ is equal to unity whereas it takes lower or higher values in non beerian media (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2015). In these conditions, the flux emitted by I in the direction $\mathbf{u}$ and correlated to the transmissivity from M_{i_1} to M_j on the whole area $2\pi H r_{i_1}$ writes

$$\begin{aligned} \mathrm{d}\Phi_I^{e*}(\mathbf{u}) &= \mathrm{d}\Phi_I^e(\mathbf{u}) f_{I,j}(\mathbf{u}) \qquad (5.10) \\ &= \frac{(G_{ext}(M_j, -\mathbf{u}, M_{i_2}) - G_{ext}(M_j, -\mathbf{u}, M_{i_1}))}{1 - G_{ext}(M_{i_2}, \mathbf{u}, M_j)} \alpha_I I_\nu^\circ(T_I) \Pi_j \left(\mathbf{n_{i_1}}.\mathbf{u}\right) H 2\pi r_{i_1} \end{aligned}$$

Note that the vector $\mathbf{u}$ being defined in the rotating frame defined in Fig.(5.2), the scalar $(\mathbf{n_{i_1}}.\mathbf{u})$ is conserved when cumulated on the whole area $H2\pi r_{i_1}$.

5.3.1 Absorption and scattering

Extinction, absorption and scattering are respectively characterized by the cumulated distribution function of extinction G_{ext} and the cumulated probability of absorption P_a or of scattering P_{sc}, respectively equal to $\alpha_J G_{ext}$ and $(1-\alpha_J)G_{ext}$ in our conditions. Each ray emitted in M in the direction $\mathbf{u}$ is extinguished with a probability $d_s G_{ext}(M, \mathbf{u}, s)$ in the range $[s, s+\mathrm{d}s]$. It can be either absorbed or scattered with the probability $1-\omega_J$ or ω_J respectively. This probability of absorption $1-\omega_J$ and scattering ω_J is decorrelated of the previous transmission.
As a consequence, the fluxes emitted by the cell I in the only direction $\mathbf{u}$ and directly absorbed or scattered around the point M_j in the volume element comprise between M_j, such as $(\mathbf{M_i M_j}) = s\mathbf{u}$, and M_j', such as $(\mathbf{M_i M_j'}) = (s+\mathrm{d}s)\mathbf{u}$, are respectively :

$$d\Phi_{Ij}^{e,a}(\mathbf{u}) = (1-\omega_J)\Phi_I^{e*}(\mathbf{u}) d_s G_{ext}(M, \mathbf{u}, s) d\Omega \qquad (5.11)$$

$$d\Phi_{Ij}^{e,sc}(\mathbf{u}) = \omega_J \Phi_I^{e*}(\mathbf{u}) d_s G_{ext}(M, \mathbf{u}, s) d\Omega \qquad (5.12)$$

where M_j and M_j' belong to the cell J of albedo ω_J.

5.3.2 Phase function

In many cases, such as statistically homogeneous porous media, the phase function $p_I(\mathbf{r_I}, \mathbf{u_{inc}}, \mathbf{u_{sc}})$ can be simply express as a function of the scattering angle $\mu_s = \mathbf{u_{inc}}.\mathbf{u_{sc}}$. In non-homogeneous packed beds of spherical particles, this simplification is not valid.
In the case of a diffuse reflexion law, the phase function can always be expressed as a function of the distribution functions of the normals $F_{\mathbf{n}}(\mathbf{r_I}, \mathbf{u_{inc}})$ and the distribution functions of the scattered directions $F_{\mathbf{u_{sc}}}(\mathbf{r_I}, \mathbf{n})$. This decomposition is advantageous in the case of highly symmetrical media such as a slab of spherical particles where the distribution functions $F_{\mathbf{n}}(\mathbf{r_I}, \mathbf{u_{inc}})$ and $F_{\mathbf{u_{sc}}}(\mathbf{r_I}, \mathbf{n})$ have simple expressions.
In the general case, no simplifications can be made and the general phase func-

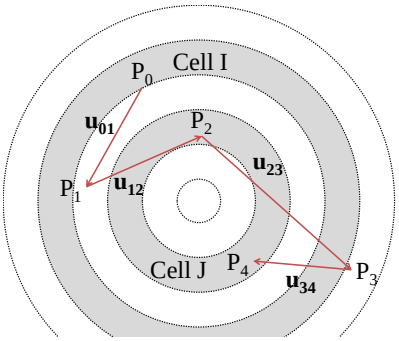


FIGURE 5.5 – *Optical path with scattering*

tion $p_I(\mathbf{r_I}, \mathbf{u_{inc}}, \mathbf{u_{sc}})$ is used. For a ray incident in the direction $\mathbf{u_{inc}}$ and scattered by the volume element centered around $\mathbf{r_I}$, $p_I(\mathbf{r_I}, \mathbf{u_{inc}}, \mathbf{u_{sc}})$ represents the distribution function of the scattered direction $\mathbf{u_{sc}}$, *i.e.*

$$\frac{1}{4\pi}\int_{\Omega_r} p_I(\mathbf{r_I}, \mathbf{u_{inc}}, \mathbf{u_{sc}})\mathrm{d}\Omega_{sc} = 1 \tag{5.13}$$

where $\mathrm{d}\Omega_{sc} = \mathrm{d}\mu_{sc}\mathrm{d}\phi_{sc}$
μ_{sc} and ϕ_{sc} are a priori correlated. The marginal distribution function of μ_{sc} is defined as

$$p_I(\mu_{sc}|\mathbf{r_I}, \mathbf{u_{inc}}) = \frac{1}{2\pi}\int_{2\pi} p_I(\mathbf{r_I}, \mathbf{u_{inc}}, \mathbf{u_{sc}})d\phi_{sc} \tag{5.14}$$

The conditional distribution function of ϕ_{sc} is defined as the distribution function of ϕ_{sc} for a given value of μ_{sc}.
The phase function writes

$$p_I(\mathbf{r_I}, \mathbf{u_{inc}}, \mathbf{u_{sc}}) = p(\mu_{sc}|\mathbf{r_I}, \mathbf{u_{inc}})p(\phi_{sc}|\mathbf{r_I}, \mathbf{u_{inc}}, \mu_{sc}) \tag{5.15}$$

This decomposition of the phase function into two statistically independent distribution functions is needed for numerical purpose.

5.3.3 Power exchanged and optical path

We consider a given optical path between a cell I and a cell J. In an emitting, absorbing and scattering medium, this ray emitted in I undergoes multiple scattering before absorption in the cell J : The q successive scattering points are called $P_1, P_2, ...P_q$, and the $q+1$ successive propagation directions between P_i and P_{i+1} $\mathbf{u_{i\,i+1}}$ as seen in Fig.(5.5) (P_0 correspond to the emission point in the cell I and P_{q+1} to the absorption point in the cell J).
According to Eq.(5.12) and the decorrelation due to the phase function, the flux emitted in the cell I in the direction $\mathbf{u_{01}}$ and scattered in P_1 in the direction $\mathbf{u_{12}}$ is

$$d\Phi_{IP_1}^{e,sc} = \Phi_I^{e*}(\mathbf{u_{01}})d\Omega_{01}d_sG_{ext}(P_0,\mathbf{u_{01}},s_{01})\omega_1 \\ p(\mu_{12}|\mathbf{r_1},\mathbf{u_{01}})p(\phi_{12}|\mathbf{r_1},\mathbf{u_{01}},\mu_{12})\frac{d\Omega_{12}}{4\pi} \quad (5.16)$$

Similarly, the flux emitted in the cell I transmitted *through the only optical path* $P_1, P_2, ...P_q$ and absorbed in the cell J is

$$\left(\Phi_{IJ}^{e,a}\right)_{OP} = \Phi_I^{e*}(\mathbf{u_{01}})d\Omega_{01}\prod_{i=1}^{q}\Bigg[d_sG_{ext}(P_{i-1},\mathbf{u_{i-1\ i}},s_{i-1\ i})\omega_i \\ p(\mu_{i\ i+1}|\mathbf{r_i},\mathbf{u_{i-1\ i}})p(\phi_{i\ i+1}|\mathbf{r_i},\mathbf{u_{i-1\ i}},\mu_{i\ i+1})\frac{d\Omega_{i\ i+1}}{4\pi}\Bigg] \\ d_sG_{ext}(P_q,\mathbf{u_{q\ q+1}},s_{q\ q+1})(1-\omega_J) \quad (5.17)$$

A complete statistical approach of the radiative transfer leading to a rigorous expression of the total flux emitted in the cell I and absorbed in the cell J has been developed in Ref.(Zarrouati, Enguehard, and Taine 2015). This integral can then be computed by a Monte Carlo method. Nevertheless, the total flux emitted in the cell I and absorbed in the cell J can also be understood as the sum of the flux $\left(\Phi_{IJ}^{e,a}\right)_{OP}$ on all possible optical paths between I and J.

5.4 Numerical Approach

5.4.1 Monte Carlo algorithm

The axi-symmetrical packed bed is divided in N_C cells of volume dV_I, assumed of uniform temperature. Each cell I is in the space between two cylinders of radius r_i and r_{i+1} and of arbitrary large height H. The surface cell $N_C + 1$ represents the wall.
The total power exchanged $\mathcal{P}_{IJ}^{ea}$ between the two cells I and J is computed by summing the contribution of all possible paths given by Eq.(5.17). The Monte Carlo method of Ref.(Zarrouati, Enguehard, and Taine 2015) is used for computing the total power exchanged between the two cells $\mathcal{P}_{IJ}^{ea}$.
Note that $\Phi_I^{e*}(\mathbf{u_0})$ is normalized by $H\pi I_\nu^\circ(T_I)$ such as the normalized matrix $\overline{\mathcal{P}_{IJ}^{ea}}$ equal to $\mathcal{P}_{IJ}^{ea}/H\pi I_\nu^\circ(T_I)$ is independent of the temperature profile. In addition, according to the reciprocity principle (Greffet and Nieto-Vesperinas 1998),

$$\frac{\mathcal{P}_{IJ}^{ea}}{I_\nu^\circ(T_I)} = \frac{\mathcal{P}_{JI}^{ea}}{I_\nu^\circ(T_J)} \quad (5.18)$$

The normalized matrix $\overline{\mathcal{P}_{IJ}^{ea}}$ is then symmetrical at the limit of large number of realizations. In practice, this symmetry is used to accelerate the convergence.

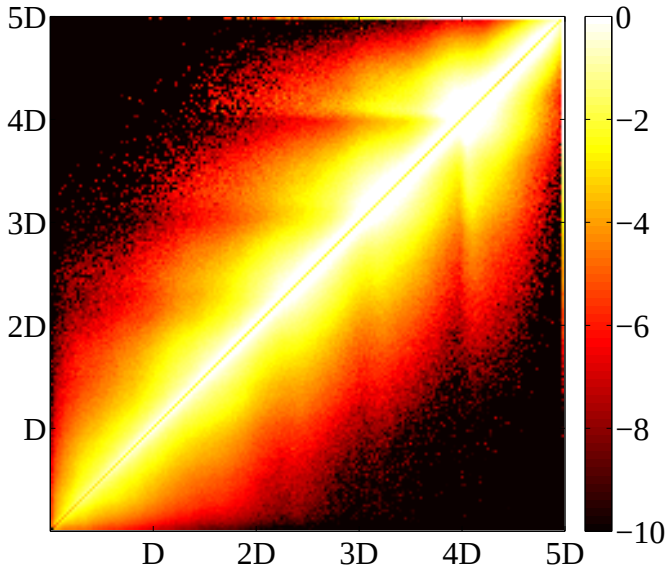


FIGURE 5.6 – $\log_{10}(\mathcal{P}_{ea})$ *for a purely absorbing and emitting medium in a black cylindrical enclosure;* $N_C = 200$, $R_t = 5D$, $\varepsilon_w = 1$ *and* $\omega = 0$.

5.4.2 Balance Equation within a Reactive Medium

For grey media, the radiative power in the cell I is calculated for a given temperature profile as

$$P^R(I) = H\sigma \sum_J \overline{\mathcal{P}^{ea}_{IJ}}(T_J^4 - T_I^4) \tag{5.19}$$

where σ is the Stefan-Boltzmann constant and the sum over J includes I.
In Eq.(5.19) $P^R(N_C + 1)$ is in fact the radiative flux at the boundary Φ^R_w and $T(N_C + 1)$ is the wall temperature.
The reactive medium is assumed in steady state with a uniform power consumption per unit volum $\chi < 0$. The energy balance equation writes

$$\chi \mathrm{d}V_I + P^R(I) = 0 \tag{5.20}$$

with the wall boundary conditions :

$$T(N_C + 1) = T_0 \tag{5.21}$$

where T_0 is a uniform temperature and

$$\frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}r}(r = 0) = 0 \tag{5.22}$$

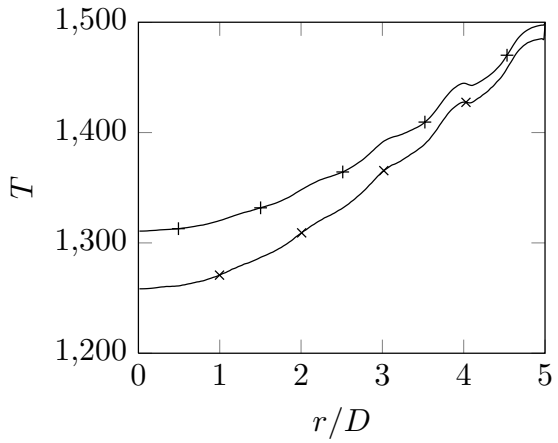


FIGURE 5.7 – *Temperature profiles within a purely absorbing medium ($\omega = 0$, $\varepsilon = 1$: +) and within a scattering and absorbing medium ($\omega = 0.6$, $\varepsilon = 0.6$: ×) ; $T_0 = 1500$, and $\chi = 4/DkWm^{-3}$ (or $\Phi/2\pi R_t H = 10kWm^{-2}$), $N_C = 200$, $R_t = 5D$*

associated with the system axi-symmetry.
Moreover, a global energy balance of the system in steady state leads to

$$\Phi_w^R = -\sum_{I=1}^{N_C} \chi \mathrm{d}V_I \tag{5.23}$$

where Φ_w^R is the wall flux.

5.4.3 Validation of the numerical approach

Two types of test cases have been used for the validation of the numerical model :

(1) In emitting, absorbing, non-scattering gray cylindrical semitransparent media with arbitrary temperature distribution, an exact solution of the Radiative Transfer Equation (RTE) has been given by Azad and Modest (Modest 2003) ;

(2) In emitting, absorbing, scattering gray cylindrical semitransparent media, no analytical solution of the RTE exists but the radiative flux can be approached by a Fourier law if the distance to the wall is optically thick and for small temperature gradient.

Various cases have been treated with a good agreement between the numerical results and the reference models. Henyey-Greenstein scattering phase function is used with various asymmetry factors g in case of scattering media.

5.5 Results and Discussion

The previous model is applied to the packed bed of spherical particles presented in the previous section. Note that only radiative transfer is considered. The matrix $\mathcal{P}_{ea}$ is determined by the Monte Carlo algorithm presented in Ref.(Zarrouati, Enguehard, and Taine 2015).
An example of the normalized matrix $\mathcal{P}_{ea}$ is shown in Fig.(5.6) : the matrix is symmetric according to the reciprocity principle Eq.(5.18).
Temperature profile are finally iteratively calculated according to Eq.(5.20). Some examples are shown in Fig.(5.7) for purely absorbing or scattering porous media. Temperature oscillations in the vicinity of the wall are due to the organization of the particles induced by the wall. In the case of a purely absorbing medium, the temperature profile is physically non-monotonous : the local overheating in $r = 4D$ is due to characteristic of a non beerian midium ; it can be described only by the complete model presented in this work (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2015). This effect is attenuated in the case of scattering. In addition, backscattering lower the radiative transfer : it results in higher temperature gradient within the media.
The complete methodology presented in this paper is applicable to any type of porous media characterized by diffuse interfaces, and in particular to strongly nonhomogeneous and anisotropic a priori non beerian porous media. For any type of enclosure or morphology of the porous media, the model enables the accurate prediction of the radiative field. This radiative field can then be easily coupled with other heat transfer modes and reactive source terms for prediction of temperature profiles. The simulation cost is very low : the Monte Carlo calculation presented in this paper can be performed within less than an hour (low precision calculation are available within barely one minute).

5.6 Application du modèle au réacteur tubulaire de vapo-reformage

L'empilement C a été complètement caractérisé dans la deuxième partie. Pour le calcul des champs de température, les matrices des puissances émises et absorbées P_{ea} sont d'abord calculées pour différentes conditions : un exemple est présenté figure (5.8). Comme précédemment, la symétrie de ces matrices découle du principe de réciprocité.
De plus, on observe deux zones où les puissances échangées sont assez importantes. Ces deux zones correspondent aux puissances émises (ou absorbées) par les volumes élémentaires situés aux distances à la paroi de D et H (respectivement le diamètre et la hauteur des cylindres de l'empilement), et absorbées (ou émises) par les volumes élémentaires situés au cœur du milieu. Cela signifie que pour ces volumes élémentaires, les échanges radiatifs se font principalement avec le cœur du milieu. Cela est cohérent avec les résultats obtenus dans

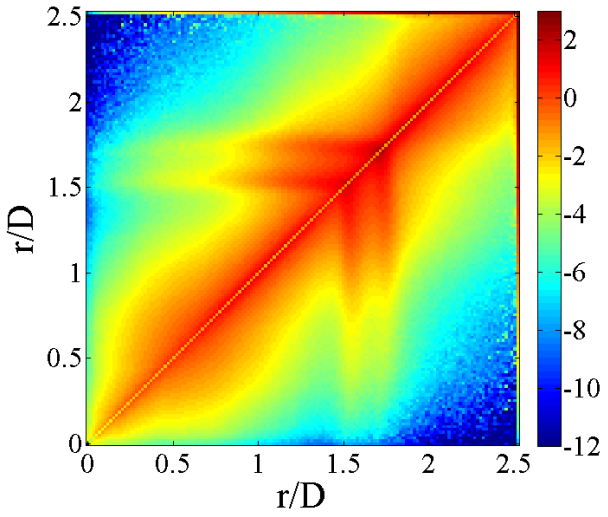


Figure 5.8 – *$log_{10}(P_{ea})$ pour un milieu purement absorbant dans l'empilement C.*

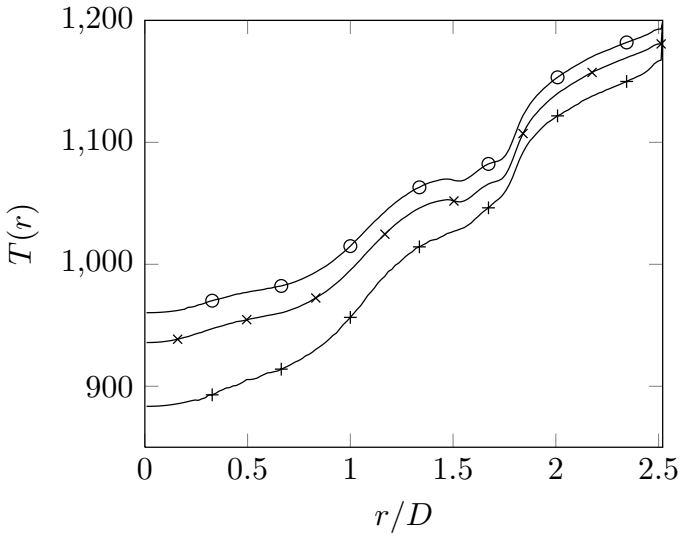


Figure 5.9 – *Profils de température dans l'empilement C pour $\epsilon_w = 1$, $\alpha = 1$: $\circ$; $\epsilon_w = 0.7$, $\alpha = 1$: $\times$; $\epsilon_w = 0.6$, $\alpha = 0.4$: $+$ pour $T_w = 1200K$ et $\varphi_w^R = 10kWm^{-2}$.*

la deuxième partie où on a vu que les cylindres adoptent une orientation préférentielle en proche paroi, induisant une grande aire spécifique orientée vers le cœur du milieu poreux.
D'autre part, en moyenne on s'attend à avoir des températures plus élevées en proche paroi où un flux est imposé que dans le cœur du milieu poreux. Les volumes élémentaires situés aux distances D et H de la paroi devraient donc se refroidir en émettant un flux radiatif vers le cœur du milieu plus important que le flux radiatif qu'ils reçoivent en provenance du cœur du milieu. Autrement dit, on s'attend à observer un refroidissement local accru autour de ces volumes élémentaires.
Quelques exemples de profils de température sont présentés sur la figure (5.9) dans le cas d'une température aux parois imposée à $1200K$. Une puissance volumique uniforme et négative, rendant compte de l'absorption de chaleur nécessaire aux réactions chimiques, est imposée au sein du tube. Cette puissance thermique volumique se traduit par un flux surfacique de 10 kWm^{-2} aux parois. On constate bien une diminution forte de la température en $R_{tube} - r = D$ et $R_{tube} - r = H$ (avec R_{tube} le rayon du tube), tout de suite suivie d'un réchauffement local : de tels effets sont semblables à ceux observés dans les empilements A et B et sont caractéristiques d'un milieu non Beerien. Ces effets s'atténuent fortement dans des milieux très diffusants.

Conclusion

Dans cette partie, un modèle de transfert radiatif pour des milieux fortement hétérogènes anisotropes et non Beeriens a été présenté dans le chapitre 4. Ce modèle repose uniquement sur les propriétés radiatives généralisées (fonctions de distribution cumulée d'extinction, albédos, et fonctions de phase) et morphologiques (profils de porosité) introduites et calculées dans la partie 2. La GRTE a été étendue à un milieu hétérogène en proche paroi. La principale difficulté résidait dans l'expression des termes sources d'émission. L'application du principe de réciprocité a permis d'exprimer la puissance émise par un volume élémentaire corrélée à la transmission. Un facteur de corrélation a été introduit : celui-ci vaut 1 dans des milieux Beeriens, mais peut prendre des valeurs plus ou moins importantes dans des milieux non Beeriens.
Le modèle a tout d'abord été appliqué au cas simple de l'empilement A, et comparé à d'autres modèles de transfert radiatif. Les résultats donnés par la GRTE sont en très bon accord avec ceux donnés par d'autres modèles au cœur du milieu où l'empilement est statistiquement homogène et isotrope. Le modèle basé sur la GRTE est cependant le seul à prédire correctement des échauffements ou refroidissements locaux induits par la configuration de l'empilement en proche paroi.
Le cas de l'empilement B a ensuite été traité en détail dans le chapitre 5 : dans cette nouvelle configuration, les volumes élémentaires sont de forme tubulaire. Les expressions des termes sources d'émission par ces volumes élémentaires ont été explicitées. De plus, les profils de température ont été calculés en présence d'un milieu réactif. Le transfert radiatif dans l'empilement C (empilement de particules cylindriques dans un tube, représentatif des réacteurs de vapo-reformage de Air Liquide) a donc été traité en appliquant directement les méthodes numériques développées dans le chapitre 5.
Cette dernière application permet de conclure cette thèse en atteignant les objectifs fixés, à savoir la caractérisation des propriétés radiatives et la modélisation du transfert radiatif dans des milieux poreux homogénéisés pour les applications de vaporeformage de méthane d'Air Liquide. Un seul exemple de réacteur a été traité ici, mais la chaîne de calcul développée dans cette thèse peut être appliquée sur une multitude de milieux poreux, permettant la comparaison et le design de nouvelles particules catalytiques, à condition de rester dans le cadre de l'optique géométrique. Les morphologies pourront être obtenues soit à

partir de milieux poreux générés numériquement, soit à partir de tomographies d'empilements réels. La méthode est ensuite toujours similaire : caractérisation de l'empilement, puis calcul des matrices des puissances radiatives échangées. Cette méthode a l'avantage d'être très générale (elle resterait tout-à-fait valable dans le cas d'un empilement Beerien), et d'être peu coûteuse en temps de calcul. En effet, l'étape la plus longue est l'étape de caractérisation qui n'est réalisée qu'une seule fois par empilement. Puis la matrice des puissances radiatives échangées P_{ea} est calculée indépendamment des champs de température pour un ensemble de propriétés radiatives données (absorptivité de l'interface fluide / solide et émissivité des parois). Seule cette matrice P_{ea} est ensuite nécessaire pour le calcul des champs de température : elle peut être intégrée dans un système d'équations comprenant entre autres un bilan d'énergie dans le réacteur intégrant les transferts radiatifs, les transferts convectifs, et les réactions chimiques ainsi que des conditions aux limites permettant le couplage avec la chambre de combustion.

Conclusion Générale

Les milieux poreux sont utilisés dans de nombreuses applications industrielles à hautes températures et le rayonnement y joue un rôle primordial. C'est le cas en particulier du procédé de vapo-reformage de méthane utilisé par Air Liquide. Étant donnée la complexité des simulations numériques de transfert radiatif à l'échelle des pores, des modèles des transfert basés sur des approches d'homogénéisation des milieux poreux sont à privilégier. Ces modèles doivent cependant être capables de prendre en compte la complexité des milieux poreux étudiés, c'est-à-dire leur forte hétérogénéité, leur anisotropie, mais aussi une éventuelle non-validité de la loi de Beer dans la phase homogénéisée équivalente au milieu poreux.

Dans une première partie, nous avons présenté la plupart des modèles de transfert radiatif utilisés avant ce travail à partir de la très générale équation de Boltzmann. La GRTE (Generalized Radiative Transfer Equation) a tout d'abord été introduite, après avoir défini les fonctions radiatives statistiques (fonction de distribution cumulée d'extinction, probabilités cumulées d'absorption et de diffusion, et fonction de phase). La GRTE est assez générale mais il faut cependant noter qu'elle est restreinte aux milieux où l'optique géométrique est valide, c'est-à-dire à des milieux où la taille des pores est grande devant la longueur d'onde du rayonnement. De plus, elle a été explicitée ici dans le cadre de milieux homogène à l'échelle locale. Dans certains cas (milieux homogènes faiblement anisotrope et optiquement épais), la GRTE dégénère en l'équation de transfert radiatif (RTE) classique. On peut alors définir des coefficients d'extinction, d'absorption et de diffusion généralisés applicables à un milieu Beerien qui caractérisent respectivement la probabilité d'extinction, d'absorption et de diffusion par un volume élémentaire. La RTE elle-même peut être approximée par une loi de diffusion (loi de Fourier) à condition que le critère de validité de la loi de Fourier introduit par Gomart et Taine (Gomart and Taine 2011) soit vérifié.

Dans la deuxième partie, nous avons d'abord présenté les méthodes numériques utilisées dans ce travail de thèse : d'une part les méthodes de génération numérique de milieux poreux (empilements de particules de forme arbitraire dans des contenants de forme aussi arbitraire), et d'autre part une généralisation des méthodes de caractérisation statistique des propriétés radiatives de la phase homogénéisée équivalente au milieu poreux fortement hétérogène. Ces méthodes

ont ensuite été appliquées pour engendrer trois empilements et les caractériser complètement : il s'agit d'un empilement de sphères entre deux plans parallèles infinis, d'un empilement de sphères dans un tube, et d'un empilement de cylindres dans un tube. Ce dernier cas représente la finalité de ce travail car il est représentatif des empilements de particules catalytiques que l'on trouve dans les réacteurs tubulaires de vapo-reformage de méthane d'Air Liquide. On a montré que les phases homogénéisées de ces trois empilements sont non seulement non Beeriennes et anisotropes à proximité des parois mais sont également fortement hétérogènes. Il est donc impossible d'y définir des coefficients radiatifs et d'y appliquer un des modèles de transfert radiatif classiques, *i.e.* une RTE ou une loi de Fourier. Seule la GRTE peut modéliser le transfert radiatif dans ces trois milieux, à condition d'être en mesure de représenter l'émission par un milieu localement fortement hétérogène.

La GRTE a été introduite par Taine et al. (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010) (Taine and Iacona 2012) pour des milieux non Beeriens homogènes et généralement faiblement anisotrope loin des parois. Elle a été dans ce travail étendue à des milieux fortement hétérogènes notamment à proximité des parois grâce à l'expression des termes sources d'émission. Une méthode basée sur le principe de réciprocité a été développée : elle permet d'exprimer le terme source d'émission corrélé à la transmission par le biais d'un facteur de corrélation. Ce facteur vaut 1 dans des milieux Beeriens, et peut varier autour de 1 dans des milieux non Beeriens.

Une méthode numérique (méthode de Monte Carlo) a aussi été développée pour résoudre la GRTE. Une première phase d'application et de validation de la procédure de résolution de la GRTE par Monte Carlo a été réalisée sur un empilement de sphères entre deux plans parallèles infinis. Après cette étape de validation, les résultats obtenus par la GRTE ont été comparés avec d'autres résultats issus de modèles pragmatiques. L'accord est très bon loin des parois où l'empilement étudié est isotrope, homogène et Beerien. En revanche, la GRTE est la seule à pouvoir prédire des profils de température non monotones à proximité des parois. Ces échauffements ou refroidissements locaux sont pourtant bien réels et sont induits par l'organisation des particules à proximité de la paroi.

Le modèle a ensuite été appliqué à un empilement de sphères dans un tube. Dans cette nouvelle configuration, les volumes élémentaires sont de forme tubulaire, et les termes sources par de tels volumes ont été explicités. Les matrices des puissances échangées ont été déterminées afin de calculer les profils de température au sein du milieu poreux en présence de réactions chimiques endothermiques. Ce milieu poreux est très représentatif des empilements présents dans les réacteurs tubulaires de vapo-reformage de méthane d'Air Liquide. L'application du modèle à un cas encore plus représentatif (particules de forme cylindrique dans un tube) a enfin été présentée.

Si le modèle développé dans ce travail peut être appliqué à une multitude de milieux poreux, il faut cependant rappeler qu'il est valide moyennant les

hypothèses suivantes :
- La taille des pores est grande devant la longueur d'onde : les lois de l'optique géométrique sont donc valides ;
- La morphologie du milieu étudié est connue avec une résolution spatiale δ et les propriétés radiatives de chaque phase sont connues avec une résolution spatiale plus petite que δ ;
- La loi de reflexion aux interfaces est isotrope.

Par contre, si le milieu présente au moins une dimension infinie (hétérogénéités à une ou deux dimensions), les calculs de transferts radiatifs n'ont d'autre limitation spatiale que celle de la définition du milieu.

Par la suite, ce modèle de transfert radiatif sera intégré au delà de cette thèse dans un modèle plus global de simulation des réacteurs de vapo-reformage développés par Air Liquide. Ce modèle permet le calcul des champs de température et de pression en 2D (directions radiale et axiale) dans le réacteur, et couple transfert radiatif, transfert convectif et réactions chimiques. Ce modèle de réacteur est lui-même intégré dans un modèle plus complexe qui permet le couplage avec la chambre de combustion. Les développements récents et à venir sur ces modèles permettront sans nul doute d'avoir accès à des outils complets et faciles d'utilisation qui permettront d'évaluer rapidement les performances des procédés de vapo-réformage développés par Air Liquide.

Annexe A

Détermination statistique des fonctions de phase et fonctions de distribution des angles de diffusion

A.1 Détermination de la fonction de phase par une approche statistique

Dans notre approche statistique, la fonction de phase est définie en fonction des fonctions de distribution des différents angles intervenant. Dans le cas d'une réflexion isotrope, la fonction de phase générale est définie par :

$$\frac{1}{4\pi}p(\mathbf{u_i},\mathbf{u_r})\mathrm{d}\Omega_r = \frac{\displaystyle\int_{V_I,\,\mathbf{u_i}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\leq 0,\,\mathbf{u_r}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\geq 0} \mathbf{u_r}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_r}{\displaystyle\int_{4\pi}\int_{V_I,\,\mathbf{u_i}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\leq 0,\,\mathbf{u_r}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\geq 0} \mathbf{u_r}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_r} \quad \text{(A.1)}$$

On définit la fonction de distribution des normales :

$$\frac{1}{4\pi}F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\mathrm{d}\Omega_n = \frac{\displaystyle\int_{V_I,\,\mathbf{u_i}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\leq 0} \delta(\mathbf{n}-\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r}))\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_n}{\displaystyle\int_{4\pi}\int_{V_I,\,\mathbf{u_i}.\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\leq 0} \delta(\mathbf{n}-\mathbf{n}(\mathbf{u_i},\mathbf{r}))\mathrm{d}\mathbf{r}\mathrm{d}\Omega_n} \quad \text{(A.2)}$$

et la fonction de distribution des directions réfléchies pour une réflexion isotrope :

$$\begin{aligned} F_{\mathbf{u_r}}(\mathbf{n})\mathrm{d}\Omega_r &= \mathbf{u_r}.\mathbf{n}\mathrm{d}\Omega_r \text{ si } \mathbf{u_r}.\mathbf{n} \geq 0 \\ &= 0 \text{ sinon} \end{aligned} \quad \text{(A.3)}$$

Cela permet d'exprimer la fonction de phase générale (toujours dans le cas d'une réflexion isotrope) en fonction des fonctions de distribution des directions des

normales et des directions des rayons diffusés :

$$\frac{1}{4\pi}p(\mathbf{u_i},\mathbf{u_r})\mathrm{d}\Omega_r = \frac{\displaystyle\int_{4\pi} F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})F_{\mathbf{u_r}}(\mathbf{n})\mathrm{d}\Omega_n\mathrm{d}\Omega_r}{\displaystyle\int_{4\pi}\int_{4\pi} F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})F_{\mathbf{u_r}}(\mathbf{n})\mathrm{d}\Omega_n\mathrm{d}\Omega_r} \tag{A.4}$$

Dans le cas d'un milieu homogène et isotrope, il a été montré théoriquement que (Tancrez and Taine 2004)

$$\begin{aligned} F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i})\mathrm{d}\Omega_n &= -\mathbf{u_i}.\mathbf{n}\mathrm{d}\Omega_n \text{ si } \mathbf{u_i}.\mathbf{n} \leq 0 \\ &= 0 \text{ sinon} \end{aligned} \tag{A.5}$$

On définit un repère local $(\mathbf{x},\mathbf{y},\mathbf{z})$ tel que :

$$\mathbf{u_i} = \begin{pmatrix}1\\0\\0\end{pmatrix} \ , \ \mathbf{u_r} = \begin{pmatrix}\cos(\theta_s)\\\sin(\theta_s)\\0\end{pmatrix} \text{ et } \frac{\mathbf{u_i}\wedge\mathbf{u_r}}{\parallel \mathbf{u_i}\wedge\mathbf{u_r} \parallel} = \mathbf{z} \tag{A.6}$$

Dans ce repère,

$$\mathbf{n} = \begin{pmatrix}\sin(\theta_n)\cos(\varphi_n)\\\sin(\theta_n)\sin(\varphi_n)\\\cos(\theta_n)\end{pmatrix} \tag{A.7}$$

avec $\theta_n \in [0,\pi]$ et $\varphi_n \in [0,2\pi]$.

Les conditions $\mathbf{u_i}.\mathbf{n} \leq 0$ et $\mathbf{u_r}.\mathbf{n} \geq 0$ se traduisent respectivement par :
- $\varphi_n \in [\pi/2, 3\pi/2]$
- $\varphi_n \in [-\pi/2+\theta_s, \pi/2+\theta_s]$

Par conséquent, pour $\theta_s \in [0,\pi]$, $\varphi_n \in [\varphi_{min},\varphi_{max}]$ avec $\varphi_{min} = \pi/2$ et $\varphi_{max} = \pi/2+\theta_s$. La fonction de phase s'écrit alors :

$$\frac{1}{4\pi}p(\mathbf{u_i},\mathbf{u_r})\mathrm{d}\Omega_r = \frac{\displaystyle\int_{\theta_n=0}^{\pi}\int_{\varphi_n=\varphi_{min}}^{\varphi_{max}} (-\mathbf{u_i}.\mathbf{n})(\mathbf{u_r}.\mathbf{n})\sin(\theta_n)\mathrm{d}\theta_n\mathrm{d}\varphi_n\mathrm{d}\Omega_r}{\displaystyle\int_{4\pi}\int_{\theta_n=0}^{\pi}\int_{\varphi_n=\varphi_{min}}^{\varphi_{max}} (-\mathbf{u_i}.\mathbf{n})(\mathbf{u_r}.\mathbf{n})\sin(\theta_n)\mathrm{d}\theta_n\mathrm{d}\varphi_n\mathrm{d}\Omega_r} \tag{A.8}$$

Pour $\theta_s \in [0,\pi]$ on arrive à :

$$\frac{1}{4\pi}p(\mathbf{u_i},\mathbf{u_r})\mathrm{d}\Omega_r = K(-A\cos(\theta_s) - B\sin(\theta_s))C\mathrm{d}\Omega_r \tag{A.9}$$

avec

$$A = \int_{\varphi_n=\pi/2}^{\pi/2+\theta_s}\cos^2(\varphi_n)\mathrm{d}\varphi_n = \frac{\theta_s}{2} - \frac{\sin(2\theta_s)}{4} \tag{A.10}$$

$$B = \int_{\varphi_n=\pi/2}^{\pi/2+\theta_s}\cos(\varphi_n)\sin(\varphi_n)\mathrm{d}\varphi_n = \frac{\cos(2\theta_s)-1}{4} \tag{A.11}$$

$$C = \int_{\theta_n=0}^{\pi}\sin^3(\theta_n)\mathrm{d}\theta_n = 4/3 \tag{A.12}$$

et K une constante de normalisation.
On trouve donc :

$$p(\theta_s) = K\left[\sin(\theta_s) - \theta_s\cos(\theta_s)\right] \tag{A.13}$$

La constante K est obtenue par normalisation :

$$\frac{1}{4\pi}\int_{4\pi} p(\theta_s)\mathrm{d}\Omega_s = 1 \tag{A.14}$$

soit

$$p(\theta_s) = \frac{8}{3\pi}\left[\sin(\theta_s) - \theta_s\cos(\theta_s)\right] \tag{A.15}$$

Il faut bien noter que ce résultat est identique à celui démontré par Modest (Modest 2003) dans le cas d'une unique grande sphère diffusante.

A.2 Fonction de distribution des angles de diffusion

Une démonstration analytique du résultat (3.12) peut se faire de façon analogue à la démonstration précédente, et réécrivant la fonction de distribution des angles de diffusion sous la forme

$$\frac{1}{4\pi}f(\mathbf{u_i}.\mathbf{u_r})\mathrm{d}\Omega_r = \frac{\displaystyle\int_{4\pi\ \mathbf{u_r}.\mathbf{n}\geq 0} F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\mathrm{d}\Omega_n\mathrm{d}\Omega_r}{\displaystyle\int_{4\pi\ \mathbf{u_r}.\mathbf{n}\geq 0}\int_{4\pi} F_{\mathbf{n}}(\mathbf{u_i},\mathbf{r})\mathrm{d}\Omega_n\mathrm{d}\Omega_r} \tag{A.16}$$

soit pour un milieu homogène :

$$\frac{1}{4\pi}f(\mathbf{u_i}.\mathbf{u_r})\mathrm{d}\Omega_r = \frac{\displaystyle\int_{\theta_n=0}^{\pi}\int_{\varphi_n=\varphi_{min}}^{\varphi_{max}} \sin(\theta_n)\cos(\varphi_n)\mathrm{d}\theta_n\sin(\theta_n)\mathrm{d}\varphi_n\mathrm{d}\Omega_r}{\displaystyle\int_{4\pi}\int_{\theta_n=0}^{\pi}\int_{\varphi_n=\varphi_{min}}^{\varphi_{max}} \sin(\theta_n)\cos(\varphi_n)\mathrm{d}\theta_n\sin(\theta_n)\mathrm{d}\varphi_n\mathrm{d}\Omega_r} \tag{A.17}$$

Pour $\theta_s \in [0,\pi]$:

$$f(\mathbf{u_i}.\mathbf{u_r})\mathrm{d}\Omega_r = K\int_{\theta_n=0}^{\pi}\sin(\theta_n)^2\mathrm{d}\theta_n\int_{\varphi_n=\pi/2}^{\pi/2+\theta_s}\cos(\varphi_n)\mathrm{d}\varphi_n \tag{A.18}$$

$$\mathrm{d}\Omega_r = K(1-\mu_s) \tag{A.19}$$

avec la constante de normalisation K telle que :

$$\frac{1}{2}\int_{-1}^{1} f(\mu_s)\mathrm{d}\mu_s = 1 \tag{A.20}$$

On trouve ainsi :

$$f(\mu_s) = 1 - \mu_s \tag{A.21}$$

Notons toutefois que cette fonction de distribution ne peut être utilisée dans les équations de transfert radiatif, ni dans la dérivation d'une conductivité radiative.

Annexe B

Calcul du gradient de porosité

Soit un milieu composé de deux phases α et β, et une fonction $\Phi(\mathbf{r})$ définie dans la phase α. On définit la moyenne volumique de Φ par :

$$< \Phi(\mathbf{r}) >= \frac{1}{V} \int_V \Phi(\mathbf{r}) H(\mathbf{r}) \mathrm{d}\mathbf{r} \tag{B.1}$$

où $H(\mathbf{r})$ est la fonction Heaviside repérant la phase α :

$$H(\mathbf{r}) = 1 \text{ si } \mathbf{r} \in \alpha \tag{B.2}$$

$$= 0 \text{ si } \mathbf{r} \notin \alpha \tag{B.3}$$

Il a été montré que (Gray and Lee 1977) (Howes and Whitaker 1985) :

$$< \nabla\Phi >= \nabla < \Phi > + \frac{1}{V} \int_{A_{\alpha\beta}} \Phi(\mathbf{r}) \mathbf{n}_{\alpha\beta} \mathrm{d}A_{\alpha\beta} \tag{B.4}$$

où $A_{\alpha\beta}$ est l'interface séparant la phase α de la phase β et $\mathbf{n}_{\alpha\beta}$ est le vecteur unitaire normal à cette interface dirigé vers la phase β.
En appliquant l'équation B.4 à la fonction $\Phi = 1$ définie dans la phase fluide α (la phase β étant une phase solide), on obtient

$$0 = \nabla < \Phi > + \frac{1}{V} \int_{A_{\alpha\beta}} \mathbf{n}_{\alpha\beta} \mathrm{d}A_{\alpha\beta} \tag{B.5}$$

On remarque de plus que

$$< \Phi > = \frac{1}{V} \int_{V_\alpha} 1 \mathrm{d}\mathbf{r} \tag{B.6}$$

$$= \frac{V_\alpha}{V} \tag{B.7}$$

$$= \Pi \tag{B.8}$$

On en déduit donc le résultat suivant, en remplaçant les notations α et β respectivement par f (phase fluide) et s (phase solide) :

$$\nabla\Pi = -\frac{1}{V} \int_{A_{fs}} \mathbf{n_{fs}} \mathrm{d}A_{fs} \tag{B.9}$$

Annexe C

Terme source d'émission : une autre approche

Une expression des termes sources d'émission dans des milieux non Beeriens a été proposée dans la Ref. (Zarrouati, Enguehard, and Taine 2013). La suite de cette annexe est un extrait de cette référence.
Dans des conditions d'équilibre thermique idéal à la température T, il a été prouvé que des coefficients généralisés d'extinction $B(\mathbf{u})$, d'absorption $K(\mathbf{u})$ et de diffusion $\Sigma(\mathbf{u})$ peuvent toujours être définis dans un milieu statistiquement homogène, même si celui-ci est non Beerien (Taine, Bellet, Leroy, and Iacona 2010), (Taine and Iacona 2012).
Dans ces conditions d'équilibre thermique idéal, le terme source d'émission par un élément de volume du milieu poreux statistiquement homogène, de porosité Π, est simplement donné par Chahlafi et al. (Chahlafi, Bellet, Fichot, and Taine 2012) :

$$S_{e\nu}(\mathbf{u}) = \alpha_\nu \Pi B(\mathbf{u}) n_{eff}^2(\mathbf{u}) I_\nu^\circ(T) \tag{C.1}$$

Mais un milieu est généralement à l'équilibre thermodynamique local (ETL) : un volume élémentaire arbitrairement petit dV_1 d'un milieu statistiquement hétérogène est, durant une durée arbitrairement courte, infiniment proche d'un état d'équilibre caractérisé par la température locale T. Pour ce milieu à l'ETL à la température T, $B(\mathbf{u})$, $K(\mathbf{u})$ et $\Sigma(\mathbf{u})$ n'ont généralement pas de sens. Cependant, l'émission par un volume élémentaire arbitrairement petit dV_1 est seulement une propriété locale de la matière et ne diffère donc pas de l'émission par un volume identique dV_2 qui serait entouré par le même milieu infini statistiquement homogène que dV_1 à l'équilibre thermique à la température T. On considère en effet que dans les deux cas, l'émission ne dépend pas du milieu voisin. Par conséquent, le terme source d'émission par un volume élémentaire dV_1 d'un milieu statistiquement hétérogène de porosité $\Pi(M)$ s'écrit simplement à l'ETL en généralisant l'équation C.1 :

$$S_{e\nu}(M, \mathbf{u}) = \alpha_\nu \Pi(M) B(M, \mathbf{u}) n_{eff}^2(M, \mathbf{u}) I_\nu^\circ(T(M)) \tag{C.2}$$

même si $B(M,\mathbf{u})$ et $K(M,\mathbf{u}) = \alpha_\nu B(M,\mathbf{u})$ ne peuvent pas être considérés comme des coefficients d'extinction et d'absorption : ils n'ont de sens que dans le milieu infini isotherme et statistiquement homogène caractérisé par les mêmes propriétés morphologiques que dV_1.
Comme le terme d'émission est défini à la limite optiquement mince et ne dépend que des propriétés de la matière dans dV_1 à l'ETL, le produit $B(M,\mathbf{u})n^2_{eff}(M,\mathbf{u})$ peut être exprimé par identification du flux émis par le volume élémentaire dV_1 de la phase équivalente homogénéisée avec le flux émis par l'interface réelle, d'aire dS, contenue dans le même volume, c'est-à-dire :

$$\alpha_\nu \Pi(M) B(M,\mathbf{u}) n^2_{eff}(M,\mathbf{u}) I^\circ_\nu(T) 4\pi dV_1 d\nu = \alpha_\nu I^\circ_\nu(T) \pi dS d\nu \tag{C.3}$$

et ainsi

$$\Pi(M) B(M,\mathbf{u}) n^2_{eff}(M,\mathbf{u}) = A(M)/4 \tag{C.4}$$

où $A(M)$ est l'aire de l'interface par unité de volume du milieu poreux. Ce modèle a été proposé par Bellet et al. (Bellet, Chalopin, Fichot, Iacona, and Taine 2009) et Chahlafi et al. (Chahlafi, Bellet, Fichot, and Taine 2012) pour des milieux statistiquement homogènes et a été validé numériquement.
On en déduit l'expression des termes sources d'émission :

$$S_{e\nu}(M,\mathbf{u}) = \alpha_\nu I^\circ_\nu(T) A(M)/4 \tag{C.5}$$

Il faut bien noter que ces termes sources d'émission sont valables à deux conditions :
(1) Les volumes élémentaires sont optiquement minces ;
(2) Les volumes élémentaires sont statistiquement homogènes.

Références

Abramowitz, M. and I. Stegun (1970). *Handbook of mathematical functions* (9th ed.). Dover Publishing Inc. New York. *(p. 28)*

Argento, C. and D. Bouvard (1996). A ray tracing method for evaluating the radiative heat transfer in porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer 39*(15), 3175–3180. *(p. 6, 88)*

Baillis, D., M. Arduini-Schuster, and J. F. Sacadura (2002). Identification of spectral radiative properties of polyurethane foam from hemispherical and bi-directional transmittance and reflectance measurements. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 73*(2–5), 297–306. *(p. 6, 88)*

Baillis, D. and J. F. Sacadura (2000). Thermal radiation properties of dispersed media : theoretical prediction and experimental characterization. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 67*(5), 327–363. *(p. 5, 87, 114)*

Bellet, F., E. Chalopin, F. Fichot, E. Iacona, and J. Taine (2009). RDFI determination of anisotropic and scattering dependent radiative conductivity tensors in porous media : Application to rod bundles. *International Journal of Heat and Mass Transfer 52*(5-6), 1544–1551. *(p. 22, 25, 26, 90, 140)*

Caulkin, R., I. Ahmad, M. Fairweather, X. Jia, and R. Williams (2009). Digital predictions of complex cylinder packed columns. *(p. 39, 40)*

Caulkin, R., M. Fairweather, X. Jia, A. Ahmad, and R. Williams (2008). Application of a Digital Packing Algorithm to Cylindrical Pellet-Packed Beds. In *18th European Symposium on Computer Aided Process Engineering*. *(p. 39)*

Caulkin, R., X. Jia, R. Williams, and M. Fairweather (2005). Numerical case studies of packed columns using DigiPac. In *7th World Congress of Chemical Engineering incorporating the 5th European Congress of Chemical Engineering*, Glasgow, pp. 265. *(p. 39)*

Chahlafi, M. (2011). *Modélisation du rayonnement thermique dans un cœur de réacteur nucléaire dégradé en présence de vapeur et de gouttes d'eau*. Ph. D. thesis. *(p. 3, 89)*

Chahlafi, M., F. Bellet, F. Fichot, and J. Taine (2012). Radiative transfer wi-

thin non Beerian porous media with semitransparent and opaque phases in non equilibrium : Application to reflooding of a nuclear reactor. *International Journal of Heat and Mass Transfer 55*(13-14), 3666–3676. *(p. 7, 8, 82, 89, 90, 114, 115, 139, 140)*

Chandrasekharl, S. (1950). *Radiative Transfer*. Oxford : Clarendon Press. *(p. 29)*

Consalvi, J., B. Porterie, and J. Loraud (2002). A formal averaging procedure for radiation heat transfer in particulate media. *International Journal of Heat and Mass Transfer 45*(13), 2755–2768. *(p. 7, 88)*

Coquard, R. and D. Baillis (2004). Radiative Characteristics of Opaque Spherical Particles Beds : A New Method of Prediction. *Journal of Thermophysics and Heat Transfer 18*(2), 178–186. *(p. 6)*

Coquard, R., D. Baillis, and J. Randrianalisoa (2011). Homogeneous phase and multi-phase approaches for modeling radiative transfer in foams. *International Journal of Thermal Sciences 50*(9), 1648–1663. *(p. 4)*

Coquard, R., B. Rousseau, P. Echegut, D. Baillis, H. Gomart, and E. Iacona (2012). Investigations of the radiative properties of Al–NiP foams using tomographic images and stereoscopic micrographs. *International Journal of Heat and Mass Transfer 55*, 1606–1619. *(p. 3, 4, 5, 6)*

Dixon, A. (1988). Correlations for wall and particle shape effects on fixed bed bulk voidage . *The Canadian Journal of Chemical Engineering 66*(5), 705–708. *(p. 43)*

du Toit, C. (2008). Radial variation in porosity in annular packed beds. *Nuclear Engineering and Design 238*(11), 3073–3079. *(p. 44)*

Fiveland, W. A. (1984). Discrete-Ordinates Solutions of the Radiative Transport Equation for Rectangular Enclosures. *Journal of Heat Transfer 106*(4), 699–706. *(p. 29)*

Gomart, H. and J. Taine (2011). Validity criterion of the radiative Fourier law for an absorbing and scattering medium. *Physical Review E 83*(2), 1–8. *(p. 26, 89, 100, 109, 111, 129)*

Gray, W. and P. Lee (1977). On the theorems for local volume averaging of multiphase systems. *International Journal of Multiphase Flow 3*(4), 333 – 340. *(p. 83, 137)*

Greffet, J.-J. and M. Nieto-Vesperinas (1998, Oct). Field theory for generalized bidirectional reflectivity : derivation of helmholtz's reciprocity principle and kirchhoff's law. *Journal of the Optical Society of America A 15*(10), 2735–2744. *(p. 91, 93, 121)*

Gusarov, A. (2008). Homogenization of radiation transfer in two-phase media with irregular phase boundaries. *Physical Review B 77*(14), 144201. *(p. 88)*

Gusarov, A. (2013). The multiphase radiation transfer model for two-phase layered systems. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 116*(null), 156–168. *(p. 88)*

Haussener, S., P. Coray, W. Lipinski, P. Wyss, and A. Steinfeld (2010). Tomography-Based Heat and Mass Transfer Characterization of Reticulate Porous Ceramics for High-Temperature Processing. *Journal of Heat Transfer 132*(2), 023305. *(p. 7)*

Haussener, S., W. Lipinski, J. Petrasch, P. Wyss, and A. Steinfeld (2009). Tomographic Characterization of a Semitransparent-Particle Packed Bed and Determination of its Thermal Radiative Properties. *J. Heat Transfer 131*(7), 072701. *(p. 3, 7, 115)*

Haussener, S., W. Lipinski, P. Wyss, and A. Steinfeld (2010). Tomography-Based Analysis of Radiative Transfer in Reacting Packed Beds Undergoing a Solid-Gas Thermochemical Transformation. *Journal of Heat Transfer 132*(6), 061201. *(p. 3, 7)*

Hendricks, T. J. and J. R. Howell (1996). Absorption/scattering coefficients and scattering phase functions in reticulated porous ceramics. *Journal of Heat Transfer 118*(1), 79–87. *(p. 6, 87)*

Hottel, H. and A. Sarofim (1972). *Radiative Transfer*. N.Y. : Mc Graw-Hill. *(p. 29)*

Howell, J. R. (1998). The Monte Carlo Method in Radiative Heat Transfer. *Journal of Heat Transfer 120*(August), 547–560. *(p. 109)*

Howes, F. A. and S. Whitaker (1985). The spatial averaging theorem revisited. *Chemical Engineering Science 40*, 1387–1392. *(p. 83, 137)*

Jia, X., M. Gan, R. Williams, and D. Rhodes (2007). Validation of a digital packing algorithm in predicting powder packing densities. *Powder Technology 174*(1-2), 10–13. *(p. 39, 42)*

Jia, X. and R. Williams (2001). A packing algorithm for particles of arbitrary shapes. *Powder technology 120*(3), 175–186. *(p. 38, 39)*

Kamiuto, K. (1990). Correlated radiative transfer in packed-sphere systems. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 43*(1), 39–43. *(p. 88)*

Kaviany, M. (1995). *Principles of heat transfer in porous media*, Volume 27 of *Mechanical engineering series*. Springer. *(p. 87, 104, 105, 114)*

Lipiński, W., D. Keene, S. Haussener, and J. Petrasch (2010). Continuum radiative heat transfer modeling in media consisting of optically distinct components in the limit of geometrical optics. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 111*(16), 2474–2480. *(p. 7)*

Lipiński, W., J. Petrasch, and S. Haussener (2010). Application of the spatial averaging theorem to radiative heat transfer in two-phase media. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 111*(1), 253–258. *(p. 7, 88, 114)*

Lockwood, F. and N. Shah (1981). A new radiation solution method for incorporation in general combustion prediction procedures. *Symposium (International) on Combustion 18*(1), 1405 – 1414. Eighteenth Symposium (International) on Combustion. *(p. 29)*

Loretz, M., R. Coquard, D. Baillis, and E. Maire (2008). Metallic foams : Radiative properties/comparison between different models. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 109*(1), 16–27. *(p. 4, 6, 88)*

Matsumoto, M. and T. Nishimura (1998). Mersenne twister : a 623-dimensionally equidistributed uniform pseudo-random number generator. *ACM Transactions on Modeling and Computer Simulation 8*(1), 3–30. *(p. 99)*

Modest, M. F. (2003). Radiative heat transfer. In M. F. Modest (Ed.), *Radiative Heat Transfer (Second Edition)* (Second Edition ed.)., pp. 361 – 412. Burlington : Academic Press. *(p. 28, 76, 100, 123, 135)*

Petrasch, J., S. Haussener, and W. Lipiński (2011). Discrete vs. continuum-scale simulation of radiative transfer in semitransparent two-phase media. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 112*(9), 1450–1459. *(p. 7, 88)*

Petrasch, J., P. Wyss, and A. Steinfeld (2007). Tomography-based Monte Carlo determination of radiative properties of reticulate porous ceramics. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 105*(2), 180–197. *(p. 3, 7)*

Randrianalisoa, J. and D. Baillis (2010). Radiative properties of densely packed spheres in semitransparent media : A new geometric optics approach. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 111*(10), 1372–1388. *(p. 6)*

Rousseau, B., A. Canizares, D. D. S. Meneses, G. Matzen, P. Echegut, M. D. Michiel, and J.-F. Thovert (2007). Direct simulation of the high temperature optical behaviour of a porous medium based on a CT image. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects 300*(1–2), 162 – 168. *(p. 3)*

Rousseau, B., M. D. Michiel, A. Canizares, D. D. S. Meneses, P. Echegut, and J. F. Thovert (2007). Temperature effect (300–1500 K) on the infrared photon transport inside an X-ray microtomographic reconstructed porous silica glass . *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 104*(2), 257 – 265. *(p. 3)*

Siegel, R. and J. Howell (1992). *Termal radiation heat transfer* (3rd ed.). Taylor and Francis, Washington, DC. *(p. 29)*

Singh, B. and M. Kaviany (1991). Independent theory versus direct simulation of radiation heat transfer in packed beds. *International Journal of Heat and Mass Transfer 34*(11), 2869–2882. *(p. 5, 88)*

Singh, B. and M. Kaviany (1992). Modelling radiative heat transfer in packed beds. *International Journal of Heat and Mass Transfer 35*(6), 1397–1405. *(p. 5, 88)*

Singh, B. and M. Kaviany (1994). Effect of solid conductivity on radiative heat transfer in packed beds. *International Journal of Heat and Mass*

Transfer 37(16), 2579–2582. *(p. 5)*

Soufiani, A. and J. Taine (1993). Spectrally Correlated Radiative Transfer in Real 3D Axisymmetrical Systems. In *Proceedings of the Sixth International Symposium on Transport Phenomena in Thermal Engineering*, pp. 186–191. *(p. 29)*

Taine, J., F. Bellet, V. Leroy, and E. Iacona (2010). Generalized radiative transfer equation for porous medium upscaling : Application to the radiative Fourier law. *Internaltional Journal of Heat and Mass Transfer 53*(19-20), 4071–4081. *(p. 7, 13, 22, 23, 26, 89, 94, 112, 115, 130, 139)*

Taine, J., F. Enguehard, and E. Iacona (2014). *Transferts Thermiques* (Fifth Edition ed.). Dunod. *(p. 18, 27, 81, 100, 107, 109)*

Taine, J. and E. Iacona (2012). Upscaling Statistical Methodology for Radiative Transfer in Porous Media : New Trends. *Journal of Heat Transfer 134*(3), 031012. *(p. 7, 89, 130, 139)*

Tancrez, M. and J. Taine (2004). Direct identification of absorption and scattering coefficients and phase function of a porous medium by a Monte Carlo technique. *Internaltional Journal of Heat and Mass Transfer 47*(2), 373–383. *(p. 6, 16, 23, 24, 63, 76, 81, 88, 89, 94, 98, 99, 114, 116, 117, 134)*

Tesse, L., F. Dupoirieux, B. Zamuner, and J. Taine (2002). Radiative transfer in real gases using reciprocal and forward monte carlo methods and a correlated-k approach. *International Journal of Heat and Mass Transfer 45*(13), 2797–2814. *(p. 32)*

Theuerkauf, J., P. Witt, and D. Schwesig (2006). Analysis of particle porosity distribution in fixed beds using the discrete element method. *Powder Technology 165*(2), 92–99. *(p. 44)*

Tien, C. and B. Drolen (1987). Thermal radiation in particulate media with dependent and independent scattering. In *Annual review of numerical fluid mechanics and heat transfer*, Volume 1. Hemisphere Publishing Corp. *(p. 5)*

Torquato, S. and B. Lu (1993). Chord-length distribution function for two-phase random media. *Physical Review E 47*(4), 2950–2953. *(p. 63)*

Zarrouati, M., F. Enguehard, and J. Taine (2013). Statistical characterization of near-wall radiative properties of a statistically non-homogeneous and anisotropic porous medium. *International Journal of Heat and Mass Transfer 67*(0), 776 – 783. *(p. 51, 88, 89, 102, 139)*

Zarrouati, M., F. Enguehard, and J. Taine (2015). Radiative transfer model within strongly non homogeneous porous media : Application to a slab of packed particles. *Phys. Rev. E*. *(p. 114, 115, 117, 118, 119, 121, 124)*

Zeghondy, B., E. Iacona, and J. Taine (2006a). Determination of the anisotropic radiative properties of a porous material by radiative distribution function identification (RDFI). *Internaltional Journal of Heat and Mass Transfer 49*(17-18), 2810–2819. *(p. 7, 23, 24, 82, 88, 102, 115)*

Zeghondy, B., E. Iacona, and J. Taine (2006b). Experimental and RDFI calculated radiative properties of a mullite foam. *Internaltional Journal of Heat and Mass Transfer 49*(19-20), 3702–3707. *(p. 7, 23, 24, 74, 82)*