



Thèse de Doctorat

Simon GUÉVELOU

Mémoire présenté en vue de l'obtention du **grade de Docteur de l'Université de Nantes** sous le label de l'Université Nantes Angers Le Mans

École doctorale : SPIGA

Discipline : Sciences Pour l'Ingénieur Spécialité : Énergétique, Thermique, Combustion Unité de recherche : Laboratoire de Thermocinétique de Nantes, UMR CNRS 6607

Soutenue le 11 Décembre 2015

Caractérisation des propriétés thermo-radiatives de mousses à structure numériquement contrôlée : vers le design d'absorbeurs solaires

JURY

Rapporteurs :	Laurent PILON, Professeur, University of C Marc PRAT, Directeur de Recherche, University	California, Los Angeles ersité de Toulouse
Examinateurs :	Gilles FLAMANT, Directeur de Recherche Pascal BOULET, Professeur, Université de Lingai LUO, Directeur de Recherche, Univ	, Université de Perpignan Via Domitia Lorraine ersité de Nantes
Invité :	Jean-Pierre GUÉDON, Professeur, Univers	sité de Nantes
Directeur de Thèse :	Benoit ROUSSEAU, Chargé de Recherche	e CNRS, Université de Nantes
Co-directeur de Thèse :	Jérôme VICENTE, Maitre de Conférence, A	Aix-Marseille Université
Co-encadrant de Thèse :	Gilberto DOMINGUES, Maitre de Conféren	nce, Université de Nantes

« Jamais le soleil ne voit l'ombre. »

Léonard de Vinci

Remerciements

Une thèse est un travail autant collectif qu'individuel. Je tiens donc, par ces quelques lignes, à remercier l'ensemble des personnes ayant rendu possibles ces travaux.

Mes premiers remerciements s'adressent aux membres du jury : je remercie Marc Prat et Laurent Pilon pour avoir accepté d'être rapporteurs de ces travaux ; je remercie également Gilles Flamant, Pascal Boulet, Lingai Luo et Jean-Pierre Guédon dont l'association a constitué un jury inter-disciplinaire permettant des échanges fructueux.

Je tiens ensuite à exprimer toute ma gratitude envers les personnes ayant encadré mes travaux. Merci à Benoit Rousseau pour m'avoir donné l'opportunité de réaliser cette thèse, et qui a su ensuite diriger et nourrir constamment ces travaux. Sa confiance a été précieuse et m'a permis de me confronter rapidement à la communauté nationale et internationale. Merci à Jérôme Vicente, dont la disponibilité a été totale durant les quelques séjours que j'ai effectué à l'IUSTI de Marseille. Après m'avoir transmis le virus de la programmation orientée objet, son aide constante, malgré la distance, a permis nombre de développements numériques qui auraient été sans cela impossibles. Je remercie également Gilberto Domingues, dont la rigueur scientifique a été d'un grand secours, d'autant plus dans le cadre pluri-disciplinaire de cette thèse. Je remercie Cyril Caliot, coordinateur de l'ANR SEED OPTISOL, pour son aide et ses conseils avisés.

Je remercie l'ensemble de l'équipe du Laboratoire de Thermocinétique de Nantes (direction, permanents, doctorants, personnels techniques et administratifs...) qui ont fait de cette thèse un séjour agréable au sein du laboratoire. Si je ne peux évidemment pas citer tout le monde, je peux toutefois délivrer quelques mentions spéciales : à Fabien, David et Yann Favennec, numériciens du transfert radiatif; à Mael et Maxime, pour toutes les "Surprises du chef", "Louis XVI" et autres "Maïtés", ils sauront de quoi je parle; à Jalal, Donia, Baptiste, et tous ceux dont l'énumération serait ici trop longue...

Aucun de ces travaux n'aurait vu le jour sans le concours de la communauté des logiciels libres/développeurs de tous poils dont je remercie l'ensemble des contributeurs.

Je tiens à remercier mes parents qui m'ont donné les possibilités de réaliser un cursus menant à cette thèse de doctorat. Merci à mes grands parents, à mes frères et à mes amis pour leur soutien et leur intérêt tout au long de cette thèse.

Je remercie enfin Justine, qui a su me supporter (dans tous les sens du terme) quotidiennement, aussi bien dans les moments de doutes que dans la dernière ligne droite. Une grande part de ces travaux te revient incontestablement.

Table des matières

Та	ble d	les matières	iii
No	omen	aclature	v
In	trod	uction générale	1
	0.1	Références	4
1	Éne	rgie solaire concentrée	5
	1.1	Contexte énergétique	6
	1.2	Centrales solaires thermodynamiques à concentration	11
	1.3	Les différentes technologies de récepteurs solaires pour les centrales à tour	17
	1.4	Les mousses de carbure de silicium (SiC)	23
	1.5	Conclusions	32
	1.6	Références	34
2	Car	actérisation des propriétés texturales des mousses à cellules ouvertes	39
	2.1	Généralités sur les mousses	40
	2.2	Procédé de fabrication de la mousse de référence en SiC	42
	2.3	Acquisition d'images volumiques par μ -tomographie par rayons X	42
	2.4	Définition et caractérisation des propriétés texturales de la mousse	44
	2.5	Conclusions	54
	2.6	Références	56
3	Car	actérisation des propriétés radiatives d'un matériau cellulaire	57
	3.1	Rayonnement thermique	58
	3.2	Propriétés optiques de la phase solide (<i>n</i> et <i>k</i>)	66
	3.3	Caractérisation de la réflectance normale-hémisphérique R _{NH} et de la trans-	
		mittance normale-hémisphérique T_{NH}	69
	3.4	Équation du transfert radiatif (ETR) et propriétés radiatives homogénéisées	
		$(\beta, \alpha, \sigma, \Phi)$	72
	3.5	État de l'art des méthodes de prédiction des propriétés radiatives	76
	3.6	Conclusions	85
	3.7	Références	87
4	Mét	hodes numériques de prédiction des propriétés radiatives développées	93
	4.1	Techniques de lancer de rayons (ray tracing)	94
	4.2	Calcul de l'absorptance normale A_N via un algorithme de lancer de rayons	
		par méthode de Monte Carlo (MCRT)	97
	4.3	Analyse statistique du transport de rayons	103

	4.4	Méthode d'identification des propriétés radiatives homogénéisées à partir des fonctions de distribution radiatives (RDEI)	106	
	4.5	Conclusions	112	
	4.6	Références	114	
5	Gén	ération numérique de mousses	117	
	5.1	Choix de la méthode	118	
	5.2	Méthode de génération	120	
	5.3	Application de la méthode de génération aux mousses de SiC et validation .	129	
	5.4	Conclusions	132	
	5.5	Références	134	
6	Opt	imisation des propriétés radiatives des absorbeurs solaires volumétriques	137	
	6.1	Etude de la validité des méthodes d'identification directes du coefficient	100	
	6.2	d'extinction	139	
	0.2 6.3	Étude des liens entre propriétés texturales et radiatives	142	
	6.4	Paramètres texturaux retenus pour une performance thermique de l'absor-	150	
	0.1	beur optimale	180	
	6.5	Conclusions	185	
	6.6	Références	187	
Co	onclu	sions générales et perspectives	189	
	6.7	Références	192	
Δ	Ran	nel des notions de base d'électromagnétisme	т	
1	A.1	Références	III	
B	Ider	ntification des propriétés optiques intrinsèques du carbure de silicium	V	
	B.1	References	IX	
C	Pro	priétés texturales de l'ensemble du jeu de mousses	XI	
Liste des figures XVII				
Li	Liste des tableaux XXV			

Nomenclature

AN	Absorptance normale spectrale [-]	iii
C _m	Connectivité inter-cellules movenne [-]	39
EIB	Émittance (domaine infrarouge) $[W.m^{-2}]$	18
L^0_λ	Luminance spectrale du corps noir $[W.\mu m^{-1}.m^{-2}.sr^{-1}]$	61
L_{λ}	Luminance spectrale [W. μ m ⁻¹ .m ⁻² .sr ⁻¹]	60
L	Luminance [W.m ⁻² .sr ⁻¹]	60
Р	Flux d'énergie radiative [$W.\mu m^{-1}$]	60
R _{NH}	Réflectance normale-hémisphérique spectrale [-]	iii
S _s	Surface spécifique [m ² .m ⁻³]	19
T_{NH}	Transmittance normale-hémisphérique spec- trale [-]	iii
Т	Température [K],[°C]	12
Ω	Angle solide [sr]	60
Φ	Fonction de phase de diffusion $[sr^{-1}]$	iii
α	Coefficient d'absorption [cm ⁻¹]	iii
β	Coefficient d'extinction [cm ⁻¹]	26
η	Efficacité thermique [-]	12
λ	Longueur d'onde [µm]	59
ω_d	Albédo de diffusion [-]	73
$ ho_\lambda''$	BRDF spectrale $[sr^{-1}]$	64
ρ_λ^\cap	Réflectivité directionnelle-hémisphérique spectrale [-]	58
ρ_{λ}	Réflectivité spectrale directionnelle [-]	67
ρ_m	Réflectivité locale moyenne[-]	181
σ_{SB}	Constante de Stefan-Boltzmann [W.m ⁻² .K ⁻⁴]	19
σ	Coefficient de diffusion [cm ⁻¹]	iii
$ au_{\lambda}^{\prime\prime}$	BTDF spectrale [sr ⁻¹]	64
τ^{\cap}_{λ}	Transmissivité directionnelle-hémisphérique spectrale [-]	58
n	Normale à la surface [-]	59
r	Vecteur position [-]	59
u	Vecteur direction $(\theta, \phi)[-]$	59
Θ_i	Angle d'incidence [-]	67

ñ	Indice de réfraction complexe [-]				
φ	Flux de chaleur surfacique [W.m ⁻²]				
a_{T}^{\cap}	Absorptivité totale hémisphérique [-]				
a_{λ}	Absorptivité spectrale directionnelle [-]				
<i>c</i> ₀	Vitesse de la lumière dans le vide [m.s ⁻¹]				
С	Vitesse de la lumière dans un milieu quel-				
	conque [m.s ⁻¹]				
d_b	Diamètre moyen de brin [µm]	53			
d_{nom}	Diamètre nominal (ou moyen) de cellule [µm]				
e_{T}^{\cap}	Émissivité totale hémisphérique [-]				
e_{λ}	Émissivité spectrale directionnelle [-]				
e_{IR}	Émissivité (domaine infrarouge) [-]				
h	Coefficient d'échange par convection $[W.m^{-2}.K^{-1}]$	28			
k	Indice d'absorption [-]	iii			
n	Indice de réfraction [-]	iii			
р	Porosité [-]	24			
S	Abscisse [m]	26			

Introduction générale

La production d'énergie primaire mondiale, après une hausse de 3,1 % par an en moyenne lors des dix dernières années, a dépassé les 13300 Mtep¹ en 2013 [BP, 2015; International Energy Agency, 2014]. Cette forte augmentation est principalement due à la croissance de la population et à l'industrialisation des pays en voie de développement. La baisse de la croissance économique dans ces pays entraîne un ralentissement de cette hausse. Néanmoins, l'augmentation générale du niveau de vie fait que, d'ici à 2035, une hausse de la consommation d'énergie primaire mondiale de plus de 35 % est tout de même attendue.

Cependant, l'essentiel cette production est aujourd'hui assurée par des sources non renouvelables dont l'utilisation dégrade l'environnement, et dont les réserves s'épuisent rapidement. Dans ce contexte, le développement des modes de production d'électricité à partir d'énergies renouvelables, et plus particulièrement à partir de l'énergie solaire, la plus abondante et disponible d'entre elles, apparait crucial. Parmi les technologies existantes, les centrales solaires à concentration (Concentrated Solar Power, CSP), et plus particulièrement les centrales à tour, semblent être les plus adaptées à la production d'électricité à grande échelle. Dans ces centrales, le rayonnement solaire est collecté sur une grande surface par des miroirs puis concentré sur un récepteur situé au sommet d'une tour. Au sein de ce récepteur, le rayonnement solaire est converti en chaleur fournie à un fluide de travail afin de produire de l'électricité.

Néanmoins, le coût élevé de l'électricité obtenue à partir de ce type de centrales constitue un frein pour leur développement à l'échelle industrielle. Dès lors, de nombreux efforts de recherche et de développement sont nécessaires pour augmenter la compétitivité des centrales à tour. L'un des challenges essentiels consiste à fournir en sortie du récepteur sur lequel le rayonnement solaire est concentré un fluide de travail à très haute température (> 1000 °C) afin d'initier des cycles thermodynamiques combinés de rendements supérieurs. Pour répondre à cet objectif, les mousses céramiques réfractaires utilisées en tant qu'absorbeurs volumétriques figurent parmi les matériaux les plus prometteurs.

L'ANR SEED OPTISOL, qui finance ce travail de thèse, s'inscrit dans cette dynamique de développement en se proposant de mettre au point des absorbeurs solaires à partir de mousses céramiques hautement poreuses. L'objectif de cette thèse est, via un partenariat entre le LTN² et le laboratoire IUSTI³, d'aider les élaborateurs de ces mousses (labora-

^{1.} Le tep (tonne d'équivalent pétrole) est une unité de mesure de l'énergie définie en section 1.1.1.

^{2.} Laboratoire de Thermocinétique de Nantes, UMR CNRS 6607, Nantes, France.

^{3.} Institut Universitaire des Systèmes Thermiques Industriels, UMR CNRS 7343, Marseille, France.

toire CIRIMAT⁴, société SICAT⁵) à concevoir des matériaux dont les propriétés radiatives sont optimisées, à partir des spécifications établies par le laboratoire PROMES⁶. L'optimisation des propriétés radiatives des mousses passe par la compréhension de leurs liens avec la texture⁷ des mousses. Cependant, l'étude expérimentale fine de ces liens est compromise par le procédé de fabrication, qui ne permet pas l'obtention de jeu de mousses dont les textures sont variées et maîtrisées.

Ce travail de thèse vise donc à développer une approche numérique impliquant plusieurs outils :

- des outils de caractérisation des propriétés texturales,
- des outils de caractérisation des propriétés radiatives,
- une méthode de génération numérique de matériaux synthétiques.

La mise en parallèle de ces outils permettra la fonctionnalisation des propriétés radiatives des mousses. Ainsi, il sera possible de guider les élaborateurs vers des textures de mousses favorisant les performances thermiques des absorbeurs. Ce manuscrit suivra par conséquent le plan suivant :

Le premier chapitre visera, après avoir donné quelques éléments sur le contexte énergétique mondial, à souligner le potentiel de la ressource solaire. Ensuite, les différentes technologies de type CSP existantes seront décrites. Le potentiel des centrales à tour, et plus particulièrement celui des récepteurs mettant en œuvre des absorbeurs volumétriques en mousses céramiques sera mis en évidence. L'échantillon de mousse en carbure de silicium (SiC) qui servira de référence tout au long de cette thèse sera décrit. Enfin, nous décrirons les connaissances actuelles concernant l'influence des propriétés radiatives et des propriétés texturales des mousses sur les performances thermiques des absorbeurs solaires volumétriques.

Le second chapitre, via la caractérisation de l'échantillon de mousse de référence, permettra de définir l'ensemble des propriétés texturales des mousses qui nous intéressent. Nous verrons que cette caractérisation nécessite l'obtention de la reconstruction numérique de l'échantillon réel, réalisée par le logiciel iMorph, à partir des images obtenues par μ -tomographie par rayons X de l'échantillon. Ensuite, les méthodes numériques permettant le calcul des propriétés texturales mises en oeuvre par le logiciel iMorph seront décrites.

L'introduction des propriétés thermo-radiatives qui seront utilisées dans ce manuscrit sera faite au troisième chapitre. Nous présenterons premièrement les grandeurs caractérisant le rayonnement d'un point de vue énergétique. Celles-ci permettront de définir les propriétés thermo-optiques d'un matériau réel, faisant ainsi le lien avec les propriétés optiques intrinsèques du matériau. Dans le cas du SiC, nous verrons que l'état de surface des brins au sein de la mousse nécessite l'identification de propriétés optiques effectives. Les propriétés radiatives que nous pouvons mesurer expérimentalement, ainsi que le spectromètre permettant de les acquérir seront également présentées. Enfin, la description

^{4.} Centre Inter-universitaire de Recherche et d'Ingénierie des Matériaux, UMR CNRS 5085, Toulouse, France.

^{5.} SICAT catalysts, Willstätt plant, Industriestraße 1, 77731, Allemagne.

^{6.} Laboratoire de Procédés, Matériaux et Énergie Solaire, UPR CNRS 8521, Odeillo, France.

^{7.} Le sens que revêt le terme de texture dans ce manuscrit sera précisément défini en section 1.3.2.b.

théorique du transport radiatif au sein d'un milieu homogène semi-transparent permettra, via l'établissement de l'Équation du Transfert Radiatif (ETR) qui le décrit, d'introduire les propriétés radiatives volumétriques homogénéisées. La résolution de l'ETR permet le calcul de la contribution du transfert radiatif au sein des bilans de masse et de chaleur permettant d'évaluer les performances thermiques des absorbeurs volumétriques. La deuxième partie de ce chapitre sera donc consacrée à une étude bibliographique des méthodes permettant l'obtention des propriétés radiatives homogénéisées, dont la connaissance est nécessaire pour la résolution de l'ETR. Les conclusions de cette étude bibliographique nous permettrons ensuite d'orienter et de justifier nos choix concernant les méthodes numériques développées au cours de cette thèse.

Le quatrième chapitre développera les méthodes numériques permettant la prédiction des propriétés radiatives à partir de la représentation numérique du matériau. Ces méthodes seront implémentées en tant que plugin dans iMorph, afin de bénéficier de la gestion des interfaces 3D. Comme cela a été montré au chapitre précédent, la propagation du rayonnement au sein de la mousse peut être satisfaite par une approche de type lancer de rayons par méthode Monte Carlo. La première partie de ce chapitre décrira donc les différents modèles utilisés pour la propagation d'un rayon et la description de son interaction avec la phase solide de SiC constituant les brins de la mousse. Ensuite, nous présenterons deux méthodes basées sur cette approche : le calcul permettant de reproduire numériquement les mesures expérimentales des propriétés radiatives macroscopiques, ainsi que l'identification des propriétés radiatives homogénéisées. Ces méthodes seront ensuite validées, toujours par rapport aux résultats fournis par la caractérisation expérimentale de la mousse de référence. Enfin, les possibilités d'analyse des statistiques liées au transport du rayonnement offertes par l'implémentation de ces méthodes seront soulignées.

Le cinquième chapitre décrira quant à lui la méthode innovante de génération numérique de mousses à pores ouverts développée dans cette thèse. Après avoir abordé les diverses possibilités qu'offre l'étape initiale d'ensemencement des positions des centres de cellules, les algorithmes de croissance et de segmentation des cellules seront exposés et leur pertinence discutée. Puis la mise en forme des brins à l'aide d'éléments structurants, et la méthode de contrôle de la porosité du matériau, constituant les étapes finales du processus de génération, seront décrites. La validité des mousses virtuelles obtenues via le générateur sera être vérifiée. Pour cela, une mousse virtuelle ayant pour objectif d'imiter la mousse de référence sera générée, puis ses propriétés texturales seront comparées via iMorph.

À ce stade, tous les éléments permettant la fonctionnalisation des propriétés radiatives des matériaux évoquée au début de cette introduction seront réunis. En effet, l'accès à des jeux de mousses à géométries variées et contrôlées, rendue possible par l'utilisation du générateur, ainsi que les méthodes de prédiction des propriétés radiatives développées permettront des investigations plus poussées qui seront menées au sixième et dernier chapitre. Dans un premier temps, nous mettrons à l'épreuve des méthodes simples d'identification des propriétés radiatives, puis, nous déterminerons les volumes élémentaires représentatifs devant être considérés pour assurer la validité des résultats obtenus via les méthodes numériques développées. La dépendance de ces volumes à la texture de la mousse sera estimée. Ensuite, une fois que ces spécifications seront établies, les liens entre les propriétés texturales et radiatives seront étudiés. Pour cela, un jeu constitué d'un grand nombre de mousses numériquement générées sera l'objet d'une campagne de simulation pour les propriétés optiques du SiC, mais également pour des propriétés synthétiques correspondant à des matériaux plus réfléchissants. L'ensemble des résultats obtenus, confronté au propriétés texturales, permettra d'établir des relations compactes entre ces dernières et les propriétés radiatives. Il sera alors possible de spécifier une texture de mousse favorisant les performances thermiques des absorbeurs solaires volumé-triques.

0.1 Références

BP (2015). Bp energy outlook 2035. 1

INTERNATIONAL ENERGY AGENCY (2014). Key world energy statistics. Rapport technique. 1

Chapitre 1

Énergie solaire concentrée

Sommaire

1.1	1 Contexte énergétique		
	1.1.1	Répartition de la production mondiale d'énergie	6
	1.1.2	La ressource solaire et son utilisation	7
	1.1.3	Historique et avenir de la production d'électricité par voie solaire .	9
1.2	Cent	rales solaires thermodynamiques à concentration	11
	1.2.1	Principe général de fonctionnement	11
	1.2.2	Centrales à récepteurs mobiles	12
	1.2.3	Centrales à récepteur fixe	14
	1.2.4	Intérêt des centrales à tour pour la production d'électricité à grande	
		échelle	16
1.3	Les d	ifférentes technologies de récepteurs solaires pour les centrales à	
	tour	• • • • • • • • • • • • • • • • • • • •	17
	1.3.1	Absorbeurs surfaciques	18
	1.3.2	Absorbeurs volumétriques	19
	1.3.3	Potentiel des absorbeurs en mousses céramiques pour les centrales	
		à tour	22
1.4	Les n	nousses de carbure de silicium (SiC)	23
	1.4.1	Mousse de SiC de référence	24
	1.4.2	Principales propriétés texturales et radiatives	24
	1.4.3	Influence de la texture sur la performance thermique des absor-	
		beurs solaires de type mousse	27
1.5	Conc	lusions	32
1.6	Références		

Ce chapitre introductif va nous permettre de situer le contexte de ce travail de thèse. Premièrement, l'importance de la production d'énergie par voie solaire sera soulignée par un bref exposé des ressources énergétiques dont dispose l'humanité. Une fois les atouts de la ressource solaire mis en évidence, nous nous pencherons plus spécifiquement sur l'une des catégories de technologies les plus prometteuses pour la production d'énergie à grande échelle : les centrales solaires thermodynamiques à concentration. Une rapide revue des quelques études prospectives existantes traitant de la croissance de cette filière pour les prochaines décennies nous permettra alors de souligner l'importance des efforts de recherche et développement dans lesquels s'inscrit cette thèse.

Ensuite, après avoir rappelé le principe de fonctionnement des centrales à énergie solaire concentrée et ses diverses déclinaisons, nous aborderons la problématique des centrales solaires à tour, et plus particulièrement des absorbeurs solaires volumétriques. Ceci nous amènera à la description du matériau d'intérêt de cette thèse, à savoir les mousses de carbure de silicium. Les propriétés thermo-physiques qui en font des matériaux intéressants pour la conception d'absorbeurs solaires volumétriques seront exposées. Une fois introduits les paramètres physiques impactant l'efficacité thermique des récepteurs volumétriques, nous dégagerons de cette étude préliminaire les objectifs de ce travail de thèse et les articulations de ce manuscrit.

1.1 Contexte énergétique

La production d'énergie dans le cadre du développement durable est un enjeu incontournable pour l'avenir de notre planète. Une étude rapide de la répartition de la production mondiale d'énergie primaire par type de ressources permet de s'en rendre compte.

1.1.1 Répartition de la production mondiale d'énergie

Selon les chiffres fournis en 2014 par l'Agence Internationale de l'Énergie (AIE) [International Energy Agency, 2014], la production totale d'énergie primaire mondiale en 2012 s'élève à 13371 Mtep, ¹ répartie comme suit : pétrole (31,4%), charbon (29,0%), gaz naturel (21,3%), biocarburant (toutes générations) et déchets (10,0%) , nucléaire (4,8%), énergies renouvelables (3,5 %).

Les énergies renouvelables sont très en retrait au sein de cette répartition, et sont majoritairement représentées par l'hydroélectricité (à hauteur de 68 %). Ce sont finalement seulement 1,1 % de la production totale qui proviennent des autres types de production d'énergie primaire : géothermie, solaire, éolien, etc. Les combustibles fossiles constituent donc aujourd'hui les matières premières les plus utilisées pour la production d'énergie dans le monde. Or, les besoins mondiaux en énergie ont considérablement augmenté au cours du 20^{ème} siècle, et le développement de pays émergents permet de prévoir une

^{1.} Le tep (tonne d'équivalent pétrole) est une unité de mesure de l'énergie correspondant au pouvoir calorifique d'une tonne de pétrole "standard", soit environ 42 GJ. Lorsque l'on convertit une énergie électrique (exprimée en kWh ou ses multiples) en tep, on applique une méthode dite d'"équivalence à la production" qui consiste à estimer le nombre de tep nécessaires à la production de cette énergie. Un coefficient de rendement dépendant du mode de production électrique est alors utilisé.

augmentation encore plus rapide dans les prochaines décennies. L'AIE prévoit ainsi que la demande des 25 prochaines années nécessitera une production égale à celle des 150 dernières années d'exploitation des combustibles fossiles. L'AIE estime également que la demande mondiale en énergie devrait croître de 52 % à l'horizon 2030. Mais les ressources fossiles nécessitent des mécanismes biologiques et géologiques qui mettent des millions d'années à s'accomplir, et donc ne sont pas renouvelables à l'échelle humaine. Les prévisions s'accordent sur le fait que l'activité humaine aura en quelques centaines d'années épuisé les réserves de combustibles fossiles constituées en des temps géologiques. D'autres sources d'énergies peuvent en revanche être considérées comme étant inépuisables à l'échelle humaine (énergies solaire, géothermique, hydraulique, éolienne...). De plus, leur exploitation, moins nocive pour l'environnement, constitue une réponse adéquate au problème du réchauffement climatique, même si leur utilisation reste à l'heure actuelle marginale.

1.1.2 La ressource solaire et son utilisation

La figure 1.1, construite d'après l'étude menée par Perez et Perez [2009], compare les ressources énergétiques planétaires accessibles à l'homme (transcrites en TWy²), qu'elles soient renouvelables ou finies.



FIGURE 1.1 – Ressources planétaires en énergie : la consommation mondiale, ainsi que les potentiels de production accessibles à l'homme pour les énergies renouvelables sont indiquées en TWy (terawatt/year) par année. Les ressources non renouvelables sont exprimées en TWy.

L'observation de ces quantités, et leur confrontation aux chiffres précédemment fournis, permet de souligner à la fois le caractère éphémère des réserves fossiles et le potentiel des ressources renouvelables dont le développement constitue l'un des principaux défis à relever dans les prochaines années. On distingue notamment que la ressource solaire se positionne de loin en première position en terme de potentiel de production électrique. Pourtant, même parmi les énergies renouvelables (pour rappel 3,5 % de l'énergie primaire produite dans le monde) actuellement exploitées pour produire de l'électricité, l'énergie

^{2. 1} Tera Watt year = 8,76 x 1012 kWh = $31,54 \times 10^9$ GJ (avec un coefficient de rendement égal à 100 %).

solaire reste très minoritaire : la proportion d'électricité d'origine solaire représente 0,7 % de la production d'électricité dite renouvelable mondiale.

Le rayonnement fourni par le soleil est une source d'énergie hautement énergétique : l'éclairement énergétique (ou irradiance en anglais) produit par le soleil est de 63 MW/m² [Fernández-García *et al.*, 2010] à sa surface. À la distance qui sépare la Terre du Soleil, le flux d'énergie solaire reçue par unité de surface perpendiculaire aux rayons est réduit à 1368 W/m². Cette mesure est appelée par ailleurs la constante solaire. L'atténuation due à l'atmosphère terrestre fait que le flux reçu par mètre carré au sol, lorsque le soleil est au zénith et que le temps est clair, est égal à 1000 W/m². Le flux solaire est constitué de deux composantes, l'une directe, l'autre diffuse, dont la répartition est fortement dépendante des conditions atmosphériques. Néanmoins, en 90 minutes, la quantité d'énergie fournie par le Soleil qui est reçue par la planète serait suffisante pour satisfaire les besoins énergétiques annuels de l'humanité [International Energy Agency, 2011] (soit 16 TW/an) dans leur intégralité. Les investissements mondiaux dans la filière solaire connaissent par conséquent une croissance sans précédent qui a pour effet de faire baisser les coûts de production.

Le rayonnement solaire est constitué de lumière visible, de rayonnement infrarouge et ultraviolet (respectivement 40 %, 50 % et 10 % en terme d'énergie radiative). Son spectre est représenté sur la figure 1.2 pour le rayonnement en dehors de l'atmosphère ainsi qu'à la surface de la Terre.



FIGURE 1.2 – Spectre solaire hors atmosphère (en noir) et au sol à 37°Sud (en rouge) [ASTM International, 2005].

Ce rayonnement solaire peut être utilisé de diverses manières : il peut être vu comme le flux de particules électromagnétiques (photons) hautement énergétiques dont la collecte permet l'initiation de photo-réactions, dont :

 la conversion photovoltaïque (PV), permettant la conversion directe du rayonnement solaire en électricité, via l'utilisation de matériaux sensibles à l'effet photoélectrique. L'échelle et la modularité de tels dispositifs, souvent positionnés sur les toits, en font des candidats très adaptés à la production d'énergie sur des sites de petite taille et/ou isolés, ainsi que pour la production individuelle d'appoint, même s'il existe également des installations de grande taille.

- la photosynthèse, permettant la génération de biomasse (micro-algues, bactéries, mousses) via des photo-bioréacteurs. Ceux-ci permettent d'atteindre des productivités élevées et de contrôler les conditions de culture. Cette biomasse est ensuite utilisée de manière classique pour produire des biocarburants ou des biogaz [Chen et al., 2011]. À l'inverse de la biomasse d'origine agricole, la biomasse produite par ce type de procédé s'inscrit dans une logique de développement durable [Chisti, 2008].
- la photo-catalyse, permettant par exemple la dé-toxification et désinfection des eaux usées [Goswami, 1997].

Le rayonnement solaire peut également être aisément converti en chaleur (énergie solaire thermique) au travers de l'absorption au sein de gaz, de liquides ou de solides, pour des températures de conversion allant de 400 à 1500 K. Cette chaleur peut ensuite être directement utilisée de diverses manières (chauffage sanitaire ou industriel de l'eau, évaporation, séchage de matériaux, chauffage de bâtiments, etc), ou être transformée en énergie mécanique. Cette énergie mécanique permet de fournir en énergie des procédés industriels impliquant des transformations physiques ou chimiques, ou bien de générer de l'électricité. Cette dernière catégorie de technologie rassemble les centrales solaires thermodynamiques à concentration (ou Concentrated Solar Power, dénoté par la suite CSP). Des centrales sans système de concentration existent également (production basse température, cheminées solaires dans lesquelles l'air est chauffé sur de très grandes surfaces puis canalisé pour actionner des turbines produisant de l'électricité).

1.1.3 Historique et avenir de la production d'électricité par voie solaire

L'utilisation de l'énergie solaire à diverses fins remonte à des périodes de l'histoire relativement lointaines. Plusieurs exemples marquants peuvent être cités. Dès l'antiquité (VIII^{ème} siècle avant J.C.), les Grecs concentraient les rayons du Soleil grâce à des miroirs afin d'allumer la flamme olympique. La légende veut qu'en 213 avant J.C., Archimède ait employé des miroirs géants pour concentrer les rayons du Soleil sur les voiles des navires romains assiégeant alors Syracuse. En 1615, une pompe solaire fut conçue par Salomon de Caus. Grâce à un miroir concentrateur, la fusion d'un morceau d'argent (point de fusion à 925°C) fut réalisée par Buffon en 1747. Peu après, la température de 1800°C fut atteinte par Lavoisier à l'aide d'un four solaire mettant en œuvre une lentille liquide.

Toutefois, les avancées concernant la production d'électricité à partir de l'énergie solaire se trouvent être plus récentes. L'utilisation de la chaleur pour obtenir de l'énergie mécanique (cycle thermodynamique idéal de Carnot) est préalable à la génération d'électricité. Ainsi, des précurseurs tels que Mouchot [1869] ou Kryza [2003] furent les premiers à alimenter de petites machines à vapeur à l'aide de l'énergie solaire. Parallèlement, la découverte de l'effet photovoltaïque en 1839 par Edmond Becquerel amènera, plus d'un siècle plus tard, aux premières cellules PV produisant un rendement correct [Chapin *et al.*, 1954]. Après un développement progressif de la technologie, plusieurs pays, comme le Japon et l'Allemagne notamment, lancent durant les années 90 des programmes de développement de la filière PV de grande envergure, permettant d'offrir des tarifs compétitifs. Mais c'est surtout lors des années 2000 que la progression du marché PV est la plus impressionnante. Ainsi, de 2003 à 2009 le marché connaît une progression annuelle moyenne de 40 % et, pour la seule année 2010, de 135 % [International Energy Agency, 2011]. La capacité de production PV globale passe de 0,1 GW en 1992 à 40 GW en 2010 et ce développement se poursuivra dans les prochaines décennies.

En ce qui concerne la production d'électricité par les centrales CSP, les recherches débutent à la fin des années 70 [ESTELA, 2010]. Les premières centrales CSP sont opérationnelles dans les années 80 [International Energy Agency, 2010b]. Une chronologie détaillée du développement de la technologie CSP est fournie par le rapport de l'ESTELA³ [ESTELA, 2010]. Le faible coût de revient du kWh procuré par les énergies fossiles ou nucléaires, ainsi que le manque de soutien financier limitent ensuite fortement le développement de la production par CSP. C'est seulement au cours de ces dernières années que le CSP connaît un regain d'intérêt, notamment dû à la hausse des besoins en électricité, à l'épuisement des ressources fossiles et à la prise de conscience collective vis à vis du réchauffement climatique.

Même si la filière PV continue son fort développement, plusieurs facteurs font de la technologie CSP une solution plus adaptée à la production à grande échelle d'électricité. La capacité de produire de l'électricité en continu malgré les cycles jour/nuit, grâce à l'intégration de systèmes de stockage de chaleur (décrits dans la section suivante) constitue une valeur ajoutée non négligeable aux centrales de type CSP. La conversion directe du rayonnement solaire en électricité via les panneaux PV n'offre pas cette possibilité, du fait des difficultés imposées par les technologies de stockage d'électricité. De plus, l'un des matériaux les plus utilisés à ce jour pour la fabrication de cellules PV est le silicium, dont le manque constitue un frein au développement. Sa fabrication à partir de silice, ainsi que les divers traitements nécessaires à l'obtention d'un semi-conducteur consomme une grande quantité d'énergie. Ainsi, on estime qu'un panneau solaire doit fonctionner parfois jusqu'à plusieurs années, suivant la technique de fabrication employée, afin de produire l'énergie dépensée lors de sa fabrication [International Energy Agency, 2010a]. La combinaison de ces facteurs, additionnée à une durée de vie limitée, font que les installations de type CSP proposent une longévité et des coûts d'entretien plus intéressants.

La production mondiale totale en 2010 par CSP était de près de 1 GW et les projets en cours de développement à cette date permettraient d'atteindre une production totale de 15 GW [International Energy Agency, 2010b]. De nombreuses prospections proposent des scénarios permettant d'évaluer l'évolution de la place qu'occupe le CSP dans la production d'électricité. Ceux-ci tiennent compte des besoins spécifiques de chaque pays, de la répartition de la ressource solaire, de l'évolution des réserves en énergies fossiles restantes et des aspects géopolitiques. Même si les divers degrés d'optimisme de ces scénarios donnent lieu à des disparités quant à la place du CSP dans la production d'énergie future, quelques grandes tendances se dégagent et laissent présager que celle-ci sera prépondérante. Ainsi, dans le rapport CSP Global Outlook [SolarPACES, ESTELA, Greenpeace, 2009] (rédigé par SolarPACES, ESTELA et Greenpeace), plusieurs scénarios, plus ou moins optimistes ont été proposés. La capacité de production mondiale par CSP atteinte en 2050 à été estimée dans le cas le plus favorable à 1500 GW. Ces prévisions comptent notamment sur les avancées technologiques et leur déploiement sur des centrales à grande échelle, permettant une baisse considérable du prix de production [ESTELA, 2010] (environ 10c €/kWh en 2050 contre 27-31c €/kWh aujourd'hui). La figure 1.3, construite suivant le scénario MED-CSP [German Aerospace Center (DLR), 2005] montre l'évolution

^{3.} European Solar Thermal Electricity Association.

de la part que pourraient prendre les technologies CSP dans la production d'électricité dans les futures décennies pour la zone UE-MENA (Union Européenne, Moyen Orient et Afrique du Nord).



FIGURE 1.3 – Évolution potentielle de la production d'électricité dans la zone UE-MENA selon le scénario MED-CSP [German Aerospace Center (DLR), 2005].

Notons tout de même que cette zone n'est pas représentative du monde en terme de production/consommation d'énergie solaire. Les pays de la zone MENA ont un très fort potentiel de production qui serait destinée à alimenter l'UE. D'autres scénarios globaux (scénario Blue Map de l'AIE [International Energy Agency, 2011]) réservent une place moins prépondérante mais tout de même importante aux technologies CSP. Le développement et l'optimisation des centrales CSP afin d'améliorer leur compétitivité sur le marché apparaît dans ce contexte comme un enjeu crucial. Cette dynamique, dans laquelle s'inscrit ce travail de thèse nécessite des progrès scientifiques et technologiques, notamment pour le développement des matériaux utilisés pour assurer la conversion du rayonnement solaire en chaleur. La suite de ce chapitre introductif présentera les divers types de centrales CSP existants.

1.2 Centrales solaires thermodynamiques à concentration

Cette section vise à exposer le principe général de fonctionnement des centrales de type CSP, puis à en distinguer les différentes variantes. Nous nous concentrerons finalement sur les centrales solaires à tour, dans lesquelles sont mis en œuvre les absorbeurs à base de mousses céramiques qui seront l'objet d'étude de ce travail de thèse.

1.2.1 Principe général de fonctionnement

Les centrales solaires thermodynamiques à concentration sont constituées d'un système de concentration optique, d'un récepteur constitué d'un ou plusieurs absorbeurs permettant le chauffage d'un fluide caloporteur, puis d'un dispositif thermodynamique assurant la conversion de la chaleur du fluide en énergie mécanique, puis en électricité. Nous considérerons par la suite que la température de la source chaude (fluide au niveau de l'absorbeur) est notée T_C , et celle de la source froide T_F . L'un des principaux désavantages de la production d'énergie par voie solaire, à savoir son intermittence naturelle (cycle jour/nuit, météorologie), peut être palliée par l'adjonction de systèmes de stockage thermique (vapeur pressurisée, matériaux à changement de phase, sels fondus, ...), permettant de restituer la chaleur la nuit et de maintenir la production électrique. Des systèmes de soutien utilisant l'énergie fossile ("backup") peuvent également assurer cette continuité. La figure 1.4 présente un schéma fonctionnel général pour les centrales CSP.



FIGURE 1.4 - Fonctionnement général d'une centrale solaire à concentration.

Si nous considérons un fonctionnement suivant un cycle thermodynamique idéal de Carnot, dont l'efficacité thermodynamique s'écrit $\eta_C = 1 - T_F/T_C$, l'obtention d'une température T_C la plus élevée possible apparaît cruciale. Nous allons voir que le type de système de concentration optique conditionne le type de récepteur utilisé, lui même conditionnant la nature du fluide caloporteur. Il existe 4 grandes familles de technologies CSP, que nous allons à présent détailler.

1.2.2 Centrales à récepteurs mobiles

Dans ce type de centrales, les récepteurs se meuvent en synchronisation avec le dispositif de concentration. Pour les deux sous-catégories détaillées ci-dessous, l'efficacité optique est alors accrue en comparaison aux systèmes à récepteur fixe.

1.2.2.a Concentration linéaire : miroirs cylindro-paraboliques

Le rayonnement solaire incident est recueilli par des rangées parallèles de longs miroirs dont la section transverse suit une parabole. Les miroirs sont situés sur un axe nordsud et pivotent avec les récepteurs afin de suivre la trajectoire du Soleil. Le rayonnement est alors concentré sur un récepteur linéaire situé au foyer du cylindre parabolique ainsi constitué (voir figure 1.5).

Le fluide caloporteur (généralement de l'huile synthétique, parfois des sels fondus) circulant dans le récepteur est chauffé puis transféré au travers d'échangeurs de cha-



FIGURE 1.5 – (a) Principe de fonctionnement. (b) Centrale à miroirs cylindro-paraboliques (thermosolar Olivenza 1, Espagne, 50 MW).

leur afin de vaporiser de l'eau et ensuite actionner une turbine. Le récepteur est constitué d'un tube en acier inoxydable réfractaire recouvert d'une couche optiquement sélective permettant l'absorption du rayonnement solaire tout en limitant les pertes par réémission infrarouge. Le tube, au sein duquel s'écoule le fluide caloporteur, est lui-même isolé par une enveloppe généralement en verre et sous vide afin de limiter les pertes convectives. Des systèmes permettant de générer directement de la vapeur sont actuellement à l'étude. L'efficacité optique de ce type de dispositif est relativement bonne, mais chaque ligne doit être suffisamment éloignée de ses voisines afin de minimiser les effets d'ombrage.

Cette technologie est de loin la plus utilisée (90% de la production par CSP) et la plus maîtrisée (utilisée depuis plus de 20 ans dans des installations commerciales). Sa modularité constitue également un atout non négligeable. Le fluide caloporteur peut atteindre des températures de l'ordre de 350-550°C, permettant d'initier des cycles thermodynamiques de Rankine.⁴

1.2.2.b Concentration ponctuelle : miroirs paraboliques

La concentration se fait dans ce cas de manière ponctuelle, au foyer d'un miroir parabolique. Au foyer de la parabole, un récepteur est couplé à une unité de génération indépendante (machine de Stirling, micro-turbine, voir figure 1.6).

Ce type de technologie est le meilleur en terme d'efficacité optique (90%), car l'axe du miroir est toujours parallèle aux rayons solaires (pas d'effet cosinus). En effet, contrairement aux miroirs cylindro-paraboliques qui ne peuvent s'adapter à la trajectoire du Soleil seulement sur un seul axe, la rotation peut se faire ici sur deux axes. Cet avantage fait de cette technologie la meilleure en termes de rendement de conversion solaire/électrique (40%) permettant d'atteindre des températures de fonctionnement élevées (de 150 à 1500 °C [Romero et Gonzàlez-Aguilar, 2014]). A l'exception de certaines installations rassemblant plusieurs paraboles rendant possible le couplage avec des systèmes de stockage et

^{4.} Le cycle de Rankine est un cycle thermodynamique. Comparativement au cycle idéal de Carnot, dans le cycle de Rankine, la condensation est totale, permettant d'obtenir une compression nécessitant un travail moindre. Cette amélioration fait qu'une pompe, peu consommatrice d'énergie, peut être utilisée comme compresseur et que le travail utile produit est plus important que pour le cycle de Carnot.



FIGURE 1.6 – (a) Principe de fonctionnement. (b) Unité de production à miroir parabolique avec moteur Stirling (Plataforma Solar de Almería, Espagne).

de backup, ce type d'unité de concentration, plus adapté à un fonctionnement indépendant, se rapproche des panneaux photovoltaïques en termes de mode d'utilisation. La taille restreinte des paraboles limite la production à environ 10 kW [International Energy Agency, 2010b].

1.2.3 Centrales à récepteur fixe

1.2.3.a Concentration linéaire : miroirs de Fresnel

Le rayonnement solaire incident est collecté par un ensemble de longs miroirs plans parallèles dont la rotation individuelle autour de leurs axes respectifs permet l'approximation d'une parabole par l'ensemble des miroirs (voir figure 1.7).



FIGURE 1.7 – (a) Principe de fonctionnement. (b) Centrale avec concentrateur linéaire de Fresnel (Novatec Solar Lidell, Australie, 9 MW).

Un miroir secondaire placé en opposition permet ensuite de chauffer un récepteur linéaire (tube) fixe. Le principal atout de cette technologie est son faible coût de déploiement (miroirs plans, absorbeurs fixes). De plus, la génération directe de vapeur est favorisée, ce qui permet de s'affranchir d'échangeurs de chaleur en amont du bloc de puissance. L'eau contenue dans le tube est vaporisée et directement utilisée pour alimenter celui-ci. Ce système de concentration optique est par contre le moins performant parmi les technologies CSP, et ne permet pas d'atteindre des températures de fluide supérieures à 500 degrés. De plus, l'absence de fluide caloporteur constitue un obstacle à l'intégration de système de stockage de la chaleur.

1.2.3.b Concentration ponctuelle : centrales à tour

Les centrales solaires à tour ont un système de concentration optique constitué d'un grand nombre de miroirs (ou héliostats). La concentration se fait de manière ponctuelle sur un récepteur situé sur une tour (voir figure 1.8 (a)) de hauteur relativement importante (plus d'une centaine de mètres parfois).



FIGURE 1.8 – (a) Principe de fonctionnement. (b) Centrale à tour (Ivanpah solar power complex, Californie, États-Unis, 392 MW).

Les miroirs peuvent être de diverses tailles (1 m² à 160 m²) et doivent être placés et dirigés de manière à limiter au maximum les effets d'ombrage. La forme du champ d'héliostats peut varier en fonction de la latitude de l'installation (basse latitude, champ circulaire, hautes latitudes, champ semi-circulaire pour réduire l'effet cosinus). Des spécifications pour le positionnement, le pilotage et la taille des miroirs sont fournies de manière plus précise dans l'ouvrage de Goswami et Kreith [2007]. Ce type de centrale connaît des limites relatives à son dimensionnement : la taille de champ de miroirs est en effet limitée à une puissance thermique théorique d'environ 600 MW (correspondant à des miroirs distants de 1,5 km et une tour de 160 m). Au-delà de ces dimensions, des difficultés liées d'une part à l'atténuation atmosphérique et d'autre part à la mauvaise focalisation du rayonnement sur le récepteur central, réduirait l'efficacité de ce type de centrale [International Energy Agency, 2010b]. La centrale Ivanpah (voir figure 1.8 (b)) permet de donner une idée de la taille de ce type de centrale. Récemment mise en service (2014), elle est devenue la plus grande centrale CSP du monde (toutes catégories confondues), en combinant 3 tours pour une puissance totale de 392 MW. En comparaison, la puissance moyenne d'un réacteur nucléaire avoisine les 860 MW. L'étendue du champ de miroirs collectant le rayonnement solaire pour un unique récepteur fait que les températures atteintes en son sein sont bien plus importantes que dans tous les autres types de centrales CSP. Ces hautes températures permettent l'initiation des cycles thermodynamiques combinés à hauts rendements. Les hautes températures atteintes, combinées à l'immobilité du récepteur, facilitent l'utilisation d'un système de stockage thermique.

De plus, d'un point de vue recherche et développement, ce concept propose une grande flexibilité. En effet, diverses options peuvent être envisagées pour chaque étape du procédé (miroirs, récepteurs, fluide caloporteur, système de stockage, blocs de puissance). Alors que les autres types d'installations requièrent des terrains plats, les centrales à tour peuvent s'accommoder des reliefs, et même parfois en tirer partie pour augmenter la densité de miroirs.

1.2.4 Intérêt des centrales à tour pour la production d'électricité à grande échelle

Au travers des considérations précédemment développées, il apparaît difficile de hiérarchiser clairement les différentes technologies présentées par rapport à leur capacité à répondre à la problématique de la génération d'électricité à grande échelle. Chaque famille présente en effet des avantages et des défauts devant être mis en regard avec les différents types d'utilisations qui leurs sont destinés. Le tableau 1.1 rassemble en guise de conclusion quelques données importantes sur les quatre grandes familles de CSP, compilées à partir de plusieurs études.

Technologie	Cylindro-	Parabole	Fresnel	Centrale à	
	parabolique			tour	
Propriétés					
Rendement optique	65-70	90	50	60-65	
annuel (%) [<mark>Olalde et</mark>					
Flamant, 2012]					
Rendement	15-16	20-25	9-10	15-18	
conversion					
solaire/électrique					
annuel (%) [Olalde et					
Flamant, 2012]					
Température de	50-400	150-1500	50-300	300-2000	
fonctionnement (°C)					
[Romero et					
Gonzalez-Aguilar,					
2014j	(0,0,0) = (0,-1,-,0,0)			0001	
Parc mondial (2	Parc mondial (2009) [SolarPACES, ESTELA, Greenpeace, 2009]				
Capacité installée	500	0,5	5	40	
(MW)					
Capacité en cours de	10000	1000	500	3000	
construction (MW)					
Potentiel	Faible	Faible	Moyen	Élevé	
d'amélioration					
technologique [Olalde					
et Flamant, 2012]					

Comme il a été précisé dans la section précédente, la part de production d'électricité par voie solaire via ces différents types de centrales reste toutefois encore limitée. Cette limitation est principalement due aux faibles rendements de conversion solaire/électrique proposés par les centrales CSP, qui contribuent aux coûts élevés de l'électricité ainsi pro-

duite [Pitz-Paal et al., 2012] (2 à 3 fois plus élevés que ceux de l'électricité produite à partir d'énergie fossile). Ce niveau de performance est affiché aujourd'hui par les centrales CSP (cylindro-paraboliques et centrales à tour) mettant en œuvre des cycles thermodynamiques utilisant de la vapeur à des températures modérées (400-550°C). Les technologies de type parabolique (dish-Stirling) sont en mesure de proposer des rendements de conversion solaire/électrique plus élevés, mais leur mise en œuvre difficile et coûteuse en font une solution de niche pour les petites installations de production. L'augmentation des rendements de conversion solaire/électrique constitue donc une priorité dans l'objectif de rendre compétitives les centrales de type CSP. Une des approches développées aujourd'hui pour répondre à cette problématique consiste à se tourner vers des cycles présentant des rendements thermodynamiques plus élevés. C'est le cas des cycles combinés conventionnels (CCC), mettant en œuvre des turbines à gaz (air à haute température) et à vapeur opérant en série. Ce type de cycle permet d'atteindre un haut taux de conversion chaleur/électricité (60 %), ce qui pourrait amener le rendement de conversion solaire/électrique aux alentours de 25-30 % [Kribus et al., 2014]. Néanmoins, ces cycles nécessitent l'obtention d'air chauffé à plus de 1000°C, ce qui représente un véritable défi.

Les centrales à tour, dont la technologie est avancée et dont la commercialisation a déjà été éprouvée, représentent la voie la plus à même de relever ce défi. Elles semblent de même être les plus intéressantes en terme de développement potentiel. La conversion du flux solaire concentré en chaleur se fait au niveau du récepteur solaire. La prochaine section est donc consacrée à la présentation des divers types de récepteurs utilisés dans les centrales solaires à tour et de leurs spécificités.

1.3 Les différentes technologies de récepteurs solaires pour les centrales à tour

La conversion du rayonnement solaire concentré en chaleur constitue une étape clé pour la production d'électricité via les centrales CSP. Cette conversion a lieu au niveau d'échangeurs de chaleur ici appelés récepteurs solaires qui mettent en œuvre un ou plusieurs absorbeurs. Dans cette section nous ferons un bref inventaire des diverses technologies de récepteurs solaires utilisés dans les centrales à tour. Un aperçu plus complet pourra être trouvé grâce aux revues de Ho et Iverson [2014], de Tian et Zhao [2013], ou encore dans l'ouvrage de Goswami et Kreith [2007].

Plusieurs classifications des récepteurs solaires peuvent être faites, notamment selon le type de matériau absorbant mis en œuvre (récepteurs à gaz, à liquide ou à particules solides), l'utilisation de matériaux absorbants intermédiaires, le fluide caloporteur choisi (gaz ou liquide), ainsi que sa pressurisation (sous pression ou sous atmosphère), la configuration ou encore les mécanismes de transfert de chaleur mis en jeu. Du point de vue de la configuration, le récepteur peut être de type cavité ou bien externe. Dans le premier cas, le flux solaire concentré passe au travers d'une ouverture à l'intérieur d'une cavité dans laquelle est situé l'absorbeur (figure 1.9 (a)). Ce type de configuration est donc réservé aux centrales ayant un champ d'héliostats semi-circulaire. Dans le second cas, le récepteur, typiquement de forme cylindrique (figure 1.9 (b)) et parfois parallélépipédique est à même de recevoir le flux solaire de toutes parts. Cette configuration est par conséquent associée aux centrales possédant des champs de miroirs circulaires.



FIGURE 1.9 – Les différentes configurations de récepteurs solaires pour centrales à tour : (a) cavité, (b) externe.

Mais l'élément clé réside dans le mécanisme de transfert de chaleur (radiatif, convectif et conductif) et notamment dans la géométrie de la surface sur laquelle a lieu cet échange. On distingue alors deux catégories d'absorbeurs solaires : les absorbeurs surfaciques (généralement tubulaires) ou volumétriques, pouvant être installés dans des récepteurs en configuration cavité ou externe.

1.3.1 Absorbeurs surfaciques

Les absorbeurs surfaciques tubulaires sont constitués de tubes exposés au flux solaire concentré à l'intérieur desquels s'écoule le fluide de travail. Le fluide caloporteur joue alors le rôle d'un fluide de refroidissement en extrayant la chaleur collectée par la surface externe des tubes. Dans ce type de systèmes, le fluide de travail circulant dans les tubes subit peu de pertes de charges et peut aisément être chauffé sous pression. Le tube doit être capable de supporter les contraintes thermomécaniques engendrées à la fois par le fluide caloporteur et le flux solaire incident. Il doit présenter une bonne conductivité (nécessaire pour transmettre efficacement au fluide la chaleur en limitant les gradients thermiques dans l'épaisseur de la paroi) et une absorptivité maximale. Il est donc généralement constitué de métal ou de céramiques recouverts d'un revêtement absorbant dans la gamme spectrale du rayonnement solaire. Le fluide de travail peut être de l'eau (génération directe de vapeur), du sodium liquide, des sels fondus, et beaucoup plus rarement des gaz (l'utilisation de gaz comme fluide de travail n'est pas la plus adaptée du fait de leurs faibles coefficients de transferts thermiques). Le mécanisme de transfert de chaleur fait donc intervenir un phénomène de conduction au travers de la paroi du tube, entraînant des désavantages majeurs liés à ce type d'absorbeurs :

- le flux radiatif incident est limité (200 kW/m² [Hoffschmidt, 1997]), car la température de l'absorbeur ne doit pas dépasser température maximale à laquelle son matériau constitutif peut être soumis. Or, les métaux, souvent utilisés pour leur bonne conduction, ne résistent pas à des températures très élevées.
- la haute température de l'absorbeur va occasionner des pertes radiatives par réémission dans le domaine de l'infrarouge importantes, qui dépendent fortement de la température d'un matériau comme l'indique la loi de Stefan-Boltzmann $E_{IR} = e_{IR}T^4$ (avec E_{IR} l'émittance, e_{IR} l'émissivité, dans le domaine de l'infrarouge, no-

tions définies en section 3.1, et σ_{SB} la constante de Stefan-Boltzmann). Ce phénomène peut être limité par l'utilisation de revêtements sélectifs [Sani *et al.*, 2012; Zhang, 2000]. La sélectivité spectrale du revêtement est ici définie comme sa capacité à absorber un maximum d'énergie dans une gamme voulue (dans notre cas celle correspondant au spectre d'émission solaire) tout en étant faiblement émissif dans la gamme de l'infrarouge lointain pour limiter les pertes au niveau de l'échangeur.

La figure 1.10 montre quelques exemples d'absorbeurs surfaciques tubulaires de configurations diverses, ainsi que le principe de fonctionnement et les gradients thermiques auxquels ceux-ci sont soumis.



FIGURE 1.10 – Différents récepteurs à absorbeurs surfaciques (a) Ivanpah (tubular boiler), (b) Gemasolar (Espagne), (c) récepteur haute température SOLGATE [European Commission, 2002]. (d) Principe de fonctionnement et gradients thermiques [Hoffschmidt, 1997].

1.3.2 Absorbeurs volumétriques

L'utilisation d'absorbeurs solaires volumétriques permet d'augmenter la surface utile sur laquelle les échanges thermiques convectifs vont avoir lieu. Pour cela, on utilise des matériaux hautement poreux dont la surface spécifique S_s (définie en section 2.4.2).est importante. Ceux-ci permettent une pénétration profonde du flux solaire concentré incident auquel ils sont exposés. L'énergie de celui-ci est alors absorbée dans le volume de l'absorbeur et non seulement sur la face éclairée. Simultanément, le fluide caloporteur (généralement de l'air dans la plupart des dispositifs) est envoyé au travers du milieu poreux à partir de la face exposée au flux solaire concentré (par aspiration à partir de la face arrière de l'absorbeur (sortie)). Le fluide prélève ensuite la chaleur par convection forcée avec les surfaces du poreux ayant absorbé le rayonnement. Ce principe de fonctionnement fait que la température de la face arrière, phénomène que l'on appellera par la suite "effet volumétrique". Cet effet volumétrique a pour conséquence de permettre le refroidissement de la face avant de l'absorbeur, limitant ainsi les pertes radiatives par ré-émission, qui sont alors très inférieures à celles que l'on observe pour les absorbeurs surfaciques à des températures similaires. Divers exemples d'absorbeurs volumétriques ainsi que leur principe de fonctionnement et les gradients de température illustrant l'effet volumétrique sont exposés en figure 1.11 :



FIGURE 1.11 – Différents récepteurs à absorbeurs volumétriques : (a) boucle ouverte : HiTRec [Hoffschmidt *et al.*, 2001], agencement en cluster de ce type de module (SOLAIR 3000) [Ávila Marín, 2011], (b) boucle fermée : récepteur haute température de SOLGATE [European Commission, 2002]. (c) Principe de fonctionnement et gradients thermiques illustrant l'effet volumétrique [Hoffschmidt, 1997].

Les températures atteintes pour l'air en sortie de l'absorbeur sont de ce fait plus élevées que celles délivrées par les absorbeurs surfaciques. Toutes ces propriétés confèrent de nombreux avantages aux absorbeurs volumétriques utilisant l'air : celui-ci est gratuit et disponible partout, ce qui limite les coûts d'entretien, les risques industriels et l'impact environnemental. La possibilité d'atteindre des températures élevées permet l'utilisation de cycles thermodynamiques plus efficaces. Le fonctionnement est simplifié, il n'y a pas de changement de phase, et la réponse aux fluctuations du flux solaire incident est rapide (faible inertie).

1.3.2.a Cycles thermodynamiques mis en œuvre

La majorité des applications utilisant des absorbeurs volumétriques suivent l'un des deux principes de fonctionnement suivant, liés au type de cycle thermodynamique impliqué. Dans beaucoup d'applications, les absorbeurs volumétriques possèdent une fenêtre optiquement transparente permettant de mettre en pression le fluide de travail tout en empêchant les fuites vers l'atmosphère. On parle alors de récepteurs à boucle fermée (voir figure 1.11 (b)). Ces récepteurs ainsi pressurisés permettent l'utilisation directe du fluide de travail au niveau du bloc de puissance, autorisant l'utilisation de cycles de Brayton.⁵ Le fluide de travail doit alors être mis en pression à basse température en amont du récepteur. Puis, celui-ci est réinjecté en face avant de l'absorbeur, ce qui permet le maintien de la température du matériau et de l'effet volumétrique.

À l'inverse, dans le cas d'un absorbeur non pressurisé, le gaz qui circule en son sein est exposé à l'atmosphère. Dans ce cas, le récepteur est dit à boucle ouverte (voir figure 1.11 (a)). Le chauffage du gaz a donc lieu à pression ambiante. La mise en pression du fluide de travail du bloc de puissance est de ce fait indirecte. Celui-ci est chauffé via un échangeur de chaleur intermédiaire à partir de l'air chaud provenant de l'absorbeur. Le bloc de puissance produit alors de l'électricité via une turbine de cycle Rankine. De la même manière que pour les systèmes à boucle fermée, l'air refroidi (provenant de l'échangeur de chaleur intermédiaire) est généralement réinjecté au niveau de la face avant de l'absorbeur pour assurer l'effet volumétrique (voir figure 1.11 (a)). Les travaux de Koll *et al.* [2009], dans lesquels une centrale de démonstration (Jülich, Allemagne) utilisant cette catégorie de récepteur est présentée, permettent d'obtenir plus de détails sur leur mise en œuvre et sur les cycles thermodynamiques associés.

Certaines configurations limitent la taille des absorbeurs, ce qui nécessite parfois d'en regrouper plusieurs en cluster. La figure 1.11 (a) montre un exemple de cluster d'absorbeurs volumétriques à boucle ouverte. Nous allons dans la suite de ce chapitre nous intéresser aux absorbeurs volumétriques à boucle ouverte. Ces derniers peuvent mettre en œuvre divers matériaux absorbants le rayonnement solaire dont nous allons à présent faire l'inventaire.

1.3.2.b Matériaux utilisés en tant qu'absorbeurs

Les principaux critères que doit respecter un matériau poreux utilisé en tant qu'absorbeur solaire volumétrique sont listés dans l'ouvrage de Sheffler et Colombo [2005]. Les matériaux utilisés doivent être durables, si possible peu onéreux et doivent supporter des taux de concentration élevés (\approx 1000 soleils). Les travaux de Ávila Marín [2011] ou encore de Fend *et al.* [2004] offrent une vue d'ensemble récente des différents types d'absorbeurs volumétriques développés à ce jour.

- Propriétés radiatives et thermo-mécaniques requises

Les absorbeurs volumétriques sont principalement constitués de matériaux devant être hautement absorbants (ils doivent posséder une absorptance ⁶ élevée) dans le visible et le proche infrarouge, et présenter une conductivité thermique élevée. Pour assurer de surcroît leur bonne tenue (à la fois mécanique et relative aux propriétés optiques) à hautes température, ils doivent posséder une bonne résistance à l'oxydation. Ils sont donc le plus souvent fabriqués à base de métaux ou de céramiques réfractaires comme le carbure de

^{5.} Le cycle de Brayton, principalement utilisé pour la génération d'électricité, est un cycle à caloporteur gazeux correspondant au fonctionnement idéal d'une turbine à gaz.

^{6.} Dans ce travail de thèse, la terminaison -ance sera utilisée pour traiter des milieux poreux car elle désigne les propriétés dépendant également du volume sous-jacent. Pour les propriétés dépendant uniquement de la surface du matériau, la terminaison -ivité est préférée. Cette terminologie est notamment discutée dans les ouvrages de Howell *et al.* [2011] et de Modest [2003], ainsi que dans ce manuscrit en section 3.3.

silicium (SiC) et ses dérivés comme le re-SiC (carbure de silicium re-cristallisé) et le Si-SiC (carbure de silicium infiltré avec du silicium), ou encore la cordiérite. Les températures atteintes les plus importantes sont celles fournies par les absorbeurs en céramique [Ávila Marín, 2011]. Grâce à des absorbeurs en métal, des températures d'air en sortie de 850°C peuvent être atteintes, et jusqu'à 1000°C avec des absorbeurs en céramiques. La conductivité thermique du matériau doit être de préférence élevée pour assurer un bon transport radial de la chaleur. Ils doivent également si possible présenter une faible émittance E_{IR} dans le domaine infrarouge afin de limiter les pertes radiatives par ré-émission à l'entrée de l'absorbeur (matériaux sélectifs définis en section 1.3.1).

- Propriétés texturales requises

Pour répondre aux critères radiatifs et thermomécaniques que nous venons d'énumérer, les matériaux utilisés doivent posséder des propriétés particulières du point de vue de leur texture.⁷ Ils doivent en effet proposer une surface d'échange convectif importante. Une haute porosité, ainsi que de petites tailles de cellules, procurent au matériau une surface spécifique (volumétrique) élevée et sont donc requises pour faire de celui-ci un bon absorbeur. De plus les pertes de charge que connaît le flux d'air au travers de l'absorbeur doivent être limitées. Dans l'objectif de répondre à ces exigences, plusieurs types de morphologies poreuses ont été développées :

- les mousses céramiques (SiC, Si-SiC, re-SiC, mullite) ou métalliques (nickel, alliages de nickels, cuivre, inconel, aluminium) [Albanakis *et al.*, 2009; Wu *et al.*, 2011a] (voir figure 1.12 (a,b,c,d)).
- les monolithes extrudés (ou structures alvéolaires) constitués de canaux parallèles et de parois minces (ou nids d'abeilles) en métal ou céramiques (voir figure 1.12 (e,g,h)) [Agrafiotis *et al.*, 2007]. Les canaux sont orientés parallèlement au flux d'air.
- d'autres structures plus particulières telles que les treillis de fibres métalliques ou céramiques (voir figure 1.12 (f)) et les absorbeurs de types "porc-épic" [Karni *et al.*, 1998] (porcupine).

Les travaux de thèse de Gomez-Garcia [2015] proposent une étude du potentiel offert par de nouvelles structures de type monolithes (grille et store) pour optimiser simultanément le comportement thermo-hydraulique et radiatif d'absorbeurs solaires volumétriques.

1.3.3 Potentiel des absorbeurs en mousses céramiques pour les centrales à tour

De la même manière que pour les différents types de centrales CSP, les spécificités liées à chaque type de récepteur font qu'il est difficile de désigner une technologie à pri-

^{7.} Dans l'ensemble de ce manuscrit, le terme texture sera utilisé pour désigner l'agencement spatial des hétérogénéités (cellules, brins, grains...) dans la matrice tridimensionnelle hôte ainsi que leurs distributions de tailles, de formes et d'orientations respectives. La porosité, la forme des cellules et leur distributions de tailles et d'orientations, ainsi que la surface spécifique constitueront donc les propriétés texturales du matériau. La signification du terme texture (ici utilisé au sens qui est le sien en sciences des matériaux telles que la cristallographie, métallurgie, ou encore les sciences de la Terre) ne doit pas ici être confondue avec celles qui prévalent dans d'autres domaines scientifiques, notamment celui de la science de l'imagerie, très présent dans cette thèse.



FIGURE 1.12 – Différents matériaux utilisés en tant qu'absorbeurs volumétriques : (a) diverses mousses céramiques [Fend *et al.*, 2004], (b) mousse SiC [Wu *et al.*, 2011a], (c) mousse inconel [Albanakis *et al.*, 2009], (d) mousse nickel [Albanakis *et al.*, 2009], (e) monolithes métalliques et (g) céramiques [Fend *et al.*, 2004], (f) treillis de fibres SiC [Fend *et al.*, 2004], (h) nids d'abeilles ReSiC [Agrafiotis *et al.*, 2007].

vilégier pour les centrales à tour. De plus, les avantages et inconvénients que les divers récepteurs présentent doivent être considérés en regard des particularités des cycles thermodynamiques mis en œuvre. Néanmoins, les récepteurs utilisant des absorbeurs volumétriques sont à privilégier lorsque l'on souhaite obtenir les températures les plus élevées possibles. Les mousses céramiques, qui font partie de cette famille, représentent des matériaux prometteurs pour tenir ce rôle. La suite de ce manuscrit va par la suite présenter plus en détail les absorbeurs constitués de mousses céramiques, et plus particulièrement en carbure de silicium (SiC), qui sont l'objet d'étude de cette thèse.

1.4 Les mousses de carbure de silicium (SiC)

Parmi les mousses les plus utilisées pour la conversion du rayonnement solaire concentré en chaleur, on trouve les mousses en carbure de silicium et plus particulièrement en α -SiC. L' α -SiC est un matériau bien connu, qui propose un grand potentiel pour les applications à hautes températures, hautes fréquences et subissant un rayonnement intense [Casady et Johnson, 1996] (le β -SiC est quant à lui davantage utilisé dans les procédés de catalyse). Le SiC sous forme de mousse présente de nombreuses propriétés intéressantes : haute porosité, faible conduction thermique, stabilité thermique, bonne résistance mécanique et aux attaques chimiques. Elles sont donc utilisées pour de nombreuses applications industrielles [Bao *et al.*, 1999] telles que l'isolation et les structures à très hautes températures, les filtres à particule pour gaz et métaux à très hautes températures, les supports catalytiques et bien sûr les absorbeurs volumétriques utilisés dans le CSP.

L'ANR SEED (Systèmes Énergétiques Efficaces et Décarbonés), et plus précisément le programme OPTISOL, qui finance ce sujet de thèse, concentre ses efforts de recherche sur

l'étude des mousses à base de SiC utilisées en tant qu'absorbeurs solaires volumétriques. Cette section va permettre de présenter un échantillon de mousse de carbure de silicium qui constituera une référence tout au long de cette étude. Nous donnerons également quelques éléments de base sur les propriétés texturales principales et sur le comportement radiatif des mousses.

1.4.1 Mousse de SiC de référence

Pour présenter et valider les méthodes numériques développées lors de ce travail de thèse, nous nous baserons sur l'étude d'un échantillon de mousse de SiC de référence. Cet échantillon a été choisi car il est représentatif des mousses de SiC utilisées en tant qu'absorbeurs solaires. L'échantillon de mousse étudié a été élaboré par la méthode de réplication de mousse polymère (présentée ci-dessous) à l'Institute of Metal Research (IMR) de la Chinese Academy of Sciences (CAS). La figure 1.13 montre une photographie de l'échantillon de 1 cm³ caractérisé tout au long de ce manuscrit.



FIGURE 1.13 – Échantillon de mousse de référence caractérisé.

1.4.2 Principales propriétés texturales et radiatives

Une première approche consiste à décrire la géométrie d'une mousse selon trois paramètres texturaux principaux, souvent interdépendants selon le procédé de fabrication : sa porosité p, le diamètre moyen (ou diamètre nominal) de ses cellules d_{nom} , ainsi que sa surface spécifique S_s . Une description plus avancée de ces paramètres sera fournie par ailleurs en section 2.4.

D'un point de vue radiatif, à l'échelle macroscopique, une mousse va interagir avec le rayonnement via des phénomènes d'absorption, de réflexion et de transmission (voir figure 1.14 (a)).



FIGURE 1.14 – Description des différentes échelles : (a) macroscopique, où l'on peut mesurer A_N , R_{NH} et T_{NH} , (b) mésoscopique, où opèrent des phénomènes d'absorption et de diffusion par réflexion sur la phase solide, et (c) microscopique, où la connaissance des *n* et *k* intrinsèques et de la texture de la surface permet d'identifier des *n* et *k* effectifs. (d) Milieu semi-transparent (MST) homogène idéal équivalent et propriétés radiatives homogénéisées le caractérisant.

Détaillons à présent cette figure : le comportement radiatif macroscopique d'une mousse (à l'échelle macroscopique) est décrit par son absorptance normale A_N , qui peut être directement déduite des mesures expérimentales de réflectance et de transmittance normales hémisphériques (R_{NH} et T_{NH} qui quantifient respectivement les fractions de rayonnement incident réfléchies et transmises). Ces propriétés radiatives et leur méthode d'acquisition expérimentale seront décrites en section 3.3.

Plus localement (échelle mésoscopique, voir figure 1.14 (b)), comme nous sommes en présence d'un matériau opaque, le rayonnement va interagir avec la phase solide via des phénomènes de diffusion par réflexion et d'absorption dans le volume de la mousse, qui vont piloter les propriétés radiatives macroscopiques présentées précédemment.⁸ C'est à cette échelle d'observation que les textures de la mousse et/ou du brin jouent un rôle prépondérant sur les propriétés radiatives macroscopiques.

L'étude de ces interactions nécessite la connaissance des propriétés optiques effectives de la phase solide constituant les brins (n et k, définies en section 3.2) qui sont liées aux propriétés texturales de la surface : en général, les brins sont constitués de grains d' α -SiC consolidés (voir figure 3.6), chaque grain pouvant être considéré comme un domaine mono- voir polycristallin. C'est seulement à l'échelon d'un grain d' α -SiC (échelle microscopique, voir figure 1.14 (c)), que les propriétés radiatives peuvent être considérées comme intrinsèques au matériau. À l'échelon d'un brin, en raison des rugosités de surface, des désorientations cristallines et de l'anisotropie structurale engendrée par l'agglomérat de grains, il est nécessaire d'estimer des propriétés optiques n et k effectives. Ces propriétés optiques effectives caractérisant le brin peuvent être proches de celles caractérisant un domaine identique supposé homogène, mais cette question demeure encore aujourd'hui un verrou à lever. Néanmoins, dans cette thèse, une approche tenant compte d'une analyse chimique et texturale multi-échelles sera proposée pour y répondre.

Dès lors que l'on souhaite connaître le rendement de conversion solaire-chaleur ou, de manière plus générale, les performances thermiques d'une mousse, il convient de résoudre des jeux d'équations de transport de masse et de chaleur complexes. Dans ce cadre, le matériau peut alors être vu comme un milieu semi-transparent homogène équivalent à l'assemblage des phases solides et fluides. Une mousse est dans ce cas caractérisée par les propriétés radiatives homogénéisées (ou effectives) suivantes : les coefficients d'extinction β , d'absorption α et de diffusion σ , ainsi que la fonction de phase de diffusion ϕ , qui décrivent le comportement radiatif d'un milieu homogène semi-transparent idéal. Le coefficient d'extinction (égal à la somme des coefficients d'absorption et de diffusion $\beta = \alpha + \sigma$) intervient dans la loi de Beer-Lambert. Cette dernière que, nous rappelons ci-dessous, permet de traduire la variation de la luminance (ou intensité radiative) le long du chemin optique (d'abscisse curviligne *s*) d'un rayon traversant un milieu semi-transparent homogène. Lorsque ce milieu est caractérisé par un coefficient d'extinction β constant, le rapport entre l'intensité restante à la distance *s*, L(*s*), et l'intensité initiale L(0) en *s*=0 est donné comme suit par la loi de Beer-Lambert :

$$\frac{\mathcal{L}(s)}{\mathcal{L}(0)} = exp(-\beta s) \tag{1.1}$$

La connaissance des propriétés radiatives homogénéisées permettent la résolution de

^{8.} Ce qui justifie la terminologie -ance pour les grandeurs radiatives macroscopiques.
l'Équation de Transfert Radiatif (ETR), qui permet l'étude du transfert radiatif à l'échelle macroscopique. L'ETR, ainsi que β , α , σ et Φ sont également explicités en section 3.4. Leur connaissance est cruciale, notamment dans les études impliquant des modèles d'absorbeurs multiphysiques intégrant le calcul de bilans de masse et de chaleur dans lesquels la composante radiative est résolue via l'ETR [Wu *et al.*, 2011a]. À l'inverse des propriétés radiatives macroscopiques, il n'est pas possible de les acquérir expérimentalement de manière directe, et leur acquisition nécessite des méthodes numériques d'identification plus poussées. Ces méthodes nécessitent également la prise en compte des interactions du rayonnement avec la phase solide à l'échelle mésoscopique, qui dépend elle-même de la texture de la mousse et des *n* et *k* effectifs de la phase solide.

À ce stade, il est donc possible d'établir des liens entre la texture de la mousse et les différentes propriétés radiatives présentées, et ce, à différentes échelles : les propriétés radiatives macroscopiques (A_N , R_{NH} et T_{NH}) et homogénéisées (β , α , σ et Φ) d'une mousse dépendent à la fois de la structure géométrique de la mousse à l'échelle mésoscopique (p, d_{nom} , S_s), ainsi que des propriétés optiques effectives de la phase solide la constituant (n et k effectifs). Ces dernières sont quant à elles dépendantes de l'état de surface à l'échelle microscopique.

1.4.3 Influence de la texture sur la performance thermique des absorbeurs solaires de type mousse

Cette section vise à introduire les différents paramètres physiques permettant d'optimiser les performances des absorbeurs solaires volumétriques. Nous définirons dans un premier temps l'efficacité thermique du récepteur, dénotée ici η_{th} . Ensuite, nous verrons que celle-ci est dépendante de certaines propriétés de l'absorbeur précédemment introduites. Nous ferons également une rapide revue de la littérature concernant l'optimisation des performances des absorbeurs volumétriques. Il sera enfin possible, d'une part, de cibler les propriétés texturales requises pour une mousse de carbure de silicium utilisée en tant qu'absorbeur volumétrique, et d'autre part, de distinguer les lacunes existantes dans l'étude et la modélisation de l'effet de la structure géométrique de la mousse sur ces mêmes propriétés. Les conclusions de cette section permettront de dégager les axes de ce travail de thèse.

1.4.3.a Efficacité thermique du récepteur

Comme évoqué précédemment, l'une des clés pour augmenter la compétitivité des centrales à tour réside dans la capacité à fournir de l'air chauffé à très haute température. L'efficacité thermique du récepteur η_{th} doit dans ce cas être très élevée (\geq 90 %). Deux approches peuvent être employées pour exprimer l'efficacité d'un absorbeur solaire volumétrique : la première consiste à dresser le bilan des flux de chaleur (ici nous travaillerons en termes de flux surfaciques, dénotés ici φ [W.m⁻²]) sur notre absorbeur solaire, et la seconde se base sur une étude de la variation de l'enthalpie de l'air s'écoulant au travers de l'absorbeur.

- Bilan des flux surfaciques de chaleur au niveau de l'absorbeur

Le bilan des flux de chaleur surfaciques sur notre absorbeur solaire donne la formule suivante⁹ :

$$\varphi_{entrant} + \varphi_{genere} = \varphi_{sortant} + \varphi_{stocke}.$$
 (1.2)

Le flux généré par l'absorbeur lui-même étant nul (l'absorbeur ne constituant pas luimême une source thermique) nous pouvons réécrire l'équation 1.2 de la manière suivante :

$$\varphi_{stocke} = \varphi_{entrant} - \varphi_{sortant}. \tag{1.3}$$

Le flux entrant $\varphi_{entrant}$ est alors le flux solaire absorbé tel que $\varphi_{entrant} = A_S \varphi_{incident}$, avec A_S l'absorptance de l'absorbeur dans le domaine de longueur d'onde correspondant en partie au spectre solaire. Le flux sortant $\varphi_{sortant}$ est constitué du flux radiatif échangé avec le milieu extérieur, du flux convectif, et du flux transmis à l'air :

$$\varphi_{sortant} = \varphi_{rad} + \varphi_{conv} + \varphi_{air}. \tag{1.4}$$

Puisque φ_{rad} correspond aux pertes radiatives par ré-émission surfacique de l'absorbeur vers l'extérieur, ¹⁰ celui-ci s'écrit :

$$\varphi_{rad} = \mathcal{E}_{\mathrm{IR}} \sigma_{\mathrm{SB}} \mathcal{T}^4_{abs}, \tag{1.5}$$

avec T_{abs} étant la température de l'absorbeur, E_{IR} son émittance dans le domaine de l'infrarouge, et σ_{SB} la constante de Boltzmann. ϕ_{conv} correspond quant à lui aux pertes convectives de l'absorbeur avec l'air ambiant extérieur :

$$\varphi_{conv} = h(\mathbf{T}_{abs} - \mathbf{T}_{amb}), \tag{1.6}$$

avec T_{amb} la température de l'air ambiant à l'extérieur de l'absorbeur, et *h* le coefficient d'échange par convection. En considérant l'absorbeur à l'équilibre thermique, le flux stocké φ_{stocke} est nul car :

$$\rho \bar{\mathcal{C}}_{p,syst} \frac{\mathrm{V}}{\mathrm{S}} \frac{d\mathrm{T}}{dt} = 0, \qquad (1.7)$$

avec $\bar{C}_{p,syst}$ la capacité thermique massique moyenne (J.Kg⁻¹.K⁻¹) du système, ρ sa masse volumique et S la surface du récepteur, et V son volume. Ainsi, l'équation 1.3 peut s'écrire de la manière suivante :

^{9.} Ici, on utilise la notation φ_{stocke} (flux stocké) pour désigner le flux de chaleur s'accumulant dans le système absorbeur dans son ensemble au fil du temps.

^{10.} Ici, φ_{rad} est le flux émis par la surface externe de l'absorbeur, et non la surface de l'interface entre les phases solide et fluide (surface spécifique). φ_{rad} correspond donc à un flux totalement perdu par l'absorbeur (et non ré-intercepté dans le volume).

$$\varphi_{air} = A_S \varphi_{inc} - E_{IR} \sigma_{SB} T^4_{abs} - h(T_{abs} - T_{amb}).$$
(1.8)

Du point de vue de l'absorbeur, l'efficacité thermique η_{th} de celui-ci est donc égale à :

$$\eta_{th} = \frac{\varphi_{air}}{\varphi_{inc}} = A_{\rm S} - \frac{E_{\rm IR}\sigma_{\rm SB}T_{abs}^4 - h(T_{abs} - T_{amb})}{\varphi_{inc}}.$$
(1.9)

Cette relation peut être retrouvée dans la littérature dans la review de Ho et Iverson [2014], dans laquelle les auteurs font apparaître plus précisément des caractéristiques liées au récepteur et à la centrale :

$$\eta_{th} = A_{\rm S} - \frac{E_{\rm IR}\sigma_{\rm SB}F_{view}T_{abs}^4 + f_{conv}h(T_{abs} - T_{amb})}{\eta_{field}E_{\rm DNI}C}.$$
(1.10)

Ici, F_{view} représente le facteur de vue radiatif de la surface du récepteur par rapport aux alentours (pouvant être réduit dans le cas de récepteur de type cavité et/ou à boucle fermée, réduisant ainsi les pertes radiatives par ré-émission), f_{conv} un facteur de perte de chaleur par convection également lié à la géométrie du récepteur (plus important si le récepteur est externe). η_{field} représente l'efficacité du champ d'héliostats (prenant en compte l'effet cosinus, les pertes de réflectance et les effets d'ombrage). Plus de détails concernant le calcul de η_{field} peuvent être trouvés dans l'ouvrage de Falcone [1986]. E_{DNI} enfin correspond à l'éclairement direct normal ($\approx 1000 \text{ W/m}^2$ pour les centrales à tour), et C au taux de concentration solaire fourni par le champ d'héliostats ou le système de concentration optique.

- Étude de la variation de l'enthalpie de l'air au sein de l'absorbeur

Une seconde approche de l'efficacité consiste à calculer directement φ_{air} via l'étude de l'écoulement de l'air au sein de l'absorbeur. Dans ce cas précis, l'air est le système sur lequel on dresse un bilan enthalpique :

$$\varphi_{air} = \frac{1}{S} \frac{\mathrm{dH}}{\mathrm{d}t},\tag{1.11}$$

avec dH exprimé comme suit :

$$dH = \delta m \bar{C}_{p,air} dT, \qquad (1.12)$$

avec $C_{p,air}$ la capacité thermique massique moyenne (J.Kg⁻¹.K⁻¹) de l'air. Ainsi,

$$\varphi_{air} = \frac{1}{S} \frac{\delta m}{dt} \bar{C}_{p,air} dT = \dot{m} \bar{C}_{p,air} dT, \qquad (1.13)$$

avec \dot{m} étant le débit massique de l'air s'écoulant dans l'absorbeur. Ainsi, pour de grands écarts de température entre l'entrée et la sortie de l'absorbeur (respectivement

 T_{in} et T_{out}), φ_{air} peut donc s'exprimer comme suit :

$$\varphi_{air} = \int_{T_{in}}^{T_{out}} \dot{m} \bar{C}_{p,air} \, \mathrm{dT}. \tag{1.14}$$

On peut finalement exprimer l'efficacité de l'absorbeur comme suit :

$$\eta_{th} = \frac{\dot{m} \int_{T_{in}}^{T_{out}} \bar{C}_{p,air} \, dT}{\varphi_{inc}}.$$
(1.15)

Cette expression de l'efficacité est par ailleurs utilisée dans les travaux de Mey *et al.* [2014] qui visent à optimiser les performances d'absorbeurs à base de mousses céramiques. Dans ces travaux, φ_{air} est obtenu via un calcul de bilan de masse, de quantité de mouvement et de chaleur. Pour calculer la contribution radiative au bilan de chaleur, il faut résoudre l'ETR en introduisant les conditions à la limite. La détermination de φ_{air} dépend alors des propriétés radiatives homogénéisées nécessaires à la résolution de l'ETR, ces dernières étant elles-mêmes fortement liées aux propriétés texturales de la mousse.

À partir des deux approches exposées, il est possible de dégager l'importance des propriétés radiatives de l'absorbeur sur la performance finale du récepteur. L'équation 1.10 montre de plus que les profils de températures existant au sein de l'absorbeur gouvernent directement les pertes par ré-émission radiative et par convection ayant lieu en face avant de celui-ci. La bonne distribution de la température, à la fois des phases fluide et solide, et à l'échelle macroscopique au sein de l'absorbeur, est cruciale afin de garantir la régularité de son fonctionnement, son intégrité, et surtout son efficacité. La connaissance des gradients de température est de ce fait primordiale. La section suivante présente quelques études significatives consacrées à l'optimisation de la performance thermique des absorbeurs à mousses et les liens entre cette performance et leurs textures.

1.4.3.b Influence de la texture de l'absorbeur sur l'efficacité

Les performances d'un absorbeur solaire volumétrique dépendent de nombreux paramètres. Si nous nous concentrons sur ceux directement dépendants du matériau poreux, il apparaît que la texture de la mousse va jouer un rôle important, à la fois sur le plan de l'écoulement et sur le plan radiatif. Cette section va donc aborder ces deux points successivement.

Influence des propriétés texturales sur les pertes de charge et les coefficients de transfert convectif locaux.

La perte de charge correspond à la dissipation, par frottement au travers de la structure, de l'énergie mécanique du fluide en mouvement. Cette perte d'énergie doit être compensée pour permettre au fluide de se déplacer. Pour assurer le bon fonctionnement d'une centrale à tour, le débit d'air aspiré au travers de l'absorbeur doit être constant. Le pompage qui est effectué doit donc compenser la perte de charge occasionnée par l'absorbeur. Le rendement de la centrale peut alors être impacté de manière non négligeable si les pertes de charges sont trop importantes. Une étude plus approfondie de l'effet des pertes de charges est fournie dans les travaux de thèse de Gomez-Garcia [2015], ainsi que dans les travaux de Mey *et al.* [2014], de Wu *et al.* [2010, 2011b], ou encore de Topin *et al.* [2006].

Parmi ces diverses études, nous pouvons distinguer celle de Wu et al. [2010], qui ont mené une étude expérimentale afin de caractériser les pertes de charges pour des structures de types mousse dont les paramètres texturaux principaux varient (p de 0,55 à 0,85 et d_{nom} de 1,35 à 4,5 mm). Cette étude montre que la réduction de la porosité et/ou du diamètre de cellule favorise les échanges convectifs et l'efficacité de l'absorbeur. Toutefois, les pertes de charges augmentent drastiquement dans ce cas. Du point de vue de l'écoulement et du transfert convectif ayant lieu au sein de la mousse, il faut donc trouver le bon compromis pour obtenir à la fois de bons échanges convectifs et de faibles pertes de charges. Une autre approche, numérique cette fois-ci, a également été menée par Wu et al. [2011b] pour appréhender l'effet de la géométrie de la mousse sur les coefficients de transfert de chaleur convectif locaux (volumétriques et à la paroi). Il en ressort que les coefficients de transfert de chaleur convectif décroissent avec le diamètre moyen de cellule et sont faiblement dépendants de la porosité. Ce résultat, qui va à l'encontre des conclusions des précédents travaux menés pourtant par les mêmes auteurs, témoigne de la difficulté d'appréhender (numériquement ou expérimentalement) le lien entre la texture et le comportement thermo-hydraulique global des mousses. Par ailleurs, il est également démontré que les géométries de type mousse permettent de limiter la formation d'instabilités dans l'écoulement néfastes pour le récepteur et les échanges thermiques [Becker et al., 2006].

Influence des propriétés texturales sur les propriétés radiatives

Du point de vue radiatif, il apparaît des expressions de l'efficacité, introduites dans la section précédente, que l'absorbeur doit proposer une forte absorptance dans le proche infrarouge et une faible émittance dans le domaine de l'infrarouge lointain afin de limiter les pertes par ré-émission. Ces propriétés sont intimement liées d'une part aux propriétés radiatives effectives de la phase solide constituant les brins de la mousse, et d'autre part à la texture de celle-ci (*i.e.* la répartition spatiale de cette phase solide). L'optimisation des absorbeurs solaires peut donc notamment passer par l'étude de l'influence des propriétés texturales de la mousse sur ses propriétés radiatives macroscopiques. Bien que mesurable, peu d'études expérimentales ont été consacrées à l'impact de la texture sur l'absorptance. Ceci est principalement dû à la faible diversité des textures des mousses réelles à caractériser. De même, peu d'études numériques se sont penchées sur cette problématique, car elle nécessite une prise en compte précise de la géométrie de la mousse. L'obtention de cette géométrie (reconstruite à partir d'images tomographiques, modélisée ou numériquement générée) constitue également un défi à part entière.

L'influence des paramètres texturaux des mousses sur les propriétés radiatives homogénéisées a été étudiée lors de travaux impliquant le développement de modèles numériques multi-physiques d'absorbeurs volumétriques. Parmi ces approches, on peut trouver par exemple les travaux de Wu *et al.* [2011a], qui proposent une approche modélisant le transfert de chaleur entre la phase solide de la mousse et le fluide s'écoulant en son sein, ainsi que la chute de pression engendrée. Dans ce modèle, la mousse de SiC étant considérée comme un milieu absorbant, émettant et diffusant isotropiquement, les transferts radiatifs dus à l'absorption du rayonnement solaire concentré par la mousse céramique, sont traités en résolvant l'équation de transfert radiatif (ETR).

Cette modélisation du transfert radiatif nécessite donc la connaissance des propriétés radiatives effectives homogénéisées présentées en section précédente (β , α , σ), qui dépendent de la texture et des propriétés optiques effectives de la mousse. À l'inverse de A et E_{IR} , ces propriétés nécessaires à la résolution de l'ETR, ne sont pas mesurables expérimentalement de manière directe.

Les méthodes numériques permettant de les obtenir font donc l'objet de nombreuses études, notamment dans le cadre des milieux poreux (recensées en chapitre 4). Toutefois, ces méthodes de prédiction sont souvent difficiles à utiliser, et le recours à des corrélations plus compactes liant les paramètres texturaux principaux (porosité, diamètre moyen de cellule) au coefficient d'extinction sont souvent utilisées.

Parmi ces corrélations, on peut citer la plus représentative, qui a été introduite par Hsu et Howell [1992]. Dans ce travail, un modèle basé sur la théorie de l'optique géométrique a été développé pour déterminer le coefficient d'extinction de mousses céramiques. Dans ce modèle, la porosité et le diamètre de cellule sont les paramètres principaux :

$$\beta = \frac{C_{\rm H}(1-p)}{d_{nom}}.\tag{1.16}$$

avec $C_H = 3$. Cette équation a été développée en considérant la mousse céramique comme une suspension monodisperse de particules sphériques de diamètre d_{nom} . Les travaux ultérieurs de Hendricks et Howell [1996], ont confronté ce modèle à des β identifiés par inversion de modèles radiatifs et en s'appuyant sur des mesures de transmittance et de réflectance d'échantillons de mousses céramiques. Ils ont démontré que ce modèle était valable pour des mousses présentant des d_{nom} suffisamment importants, mais également que le coefficient C_H était susceptible de changer selon le matériau (4,8 dans le cas du SiC). L'usage de ce type de corrélations est aisé et rapide. Néanmoins, celles-ci ont été uniquement validées et ajustées via l'inversion de modèles de transport radiatif à partir de campagnes de mesures dont les échantillons ne présentaient pas une grande variété de textures. La valeur de β ayant une grande influence sur les profils de température au sein de la mousse résultant de modèles numériques, nous nous attacherons dans ce travail à étudier la validité de ce type de corrélations.

1.5 Conclusions

Ce chapitre introductif, au travers de la présentation de quelques éléments du contexte énergétique mondial actuel et futur, nous a permis de souligner tout d'abord l'importance que revêt les efforts de recherche et de développement concernant la filière des centrales CSP. L'un des défis majeurs pour le développement de la production d'électricité d'origine solaire à grande échelle consiste à faire baisser le coût élevé de l'électricité ainsi produite, dû principalement aux faibles rendements de conversion solaire/électricité. Les centrales à tour semblent être les plus à même de relever ce défi, car elles permettent l'obtention de températures plus élevées pour le fluide de travail utilisé. L'objectif consiste notamment à utiliser des cycles thermodynamiques combinés, dont les rendements sont plus élevés. Parmi les différentes technologies de récepteur existantes, l'utilisation d'absorbeurs volumétriques à base de mousses en céramiques semble être une piste prometteuse. En effet, ceux-ci apparaissent comme étant les seuls capables de délivrer de l'air à de très hautes températures (≥ 1000 °C), permettant ainsi l'initiation de ces cycles thermodynamiques combinés.

L'efficacité thermique du récepteur, qui doit être maximale pour remplir cet objectif, est fortement dépendante de la texture des mousses utilisées, qui impacte à la fois l'écoulement et les échanges thermiques liés, mais également le transfert radiatif. Ce dernier point va constituer le cœur de cette thèse. Une synthèse rapide de la littérature nous permet de dégager les principes suivants concernant le transfert radiatif : (i) une haute porosité favorise la pénétration du rayonnement au sein de l'absorbeur, l'instauration de l'effet volumétrique, et un meilleur stockage de la chaleur; (ii) une faible taille de cellule augmente la surface d'échange et favorise les échanges thermiques convectifs avec l'air.

Au regard de ces constatations, il apparaît important de faire le lien entre les propriétés texturales et radiatives de ces matériaux afin d'optimiser l'efficacité de ces absorbeurs. Nous nous intéressons d'une part aux propriétés radiatives macroscopiques (absorptance normale A_N , réflectance normale-hémisphérique R_{NH} et transmittance normale-hémisphérique T_{NH}), et d'autre part aux propriétés radiatives homogénéisées (coefficient d'extinction β , d'absorption α et de diffusion σ , fonction de phase de diffusion Φ) nécessaires à la résolution de l'ETR. Nous verrons que A_N , R_{NH} , et T_{NH} peuvent être obtenues expérimentalement sur des échantillons réels à l'aide de mesures spectroscopiques ou via des modèles numériques, tandis que β , α , σ , et Φ ne peuvent à l'inverse pas être obtenues expérimentalement, comme nous le verrons au chapitre 6.

Afin de relier la texture des mousses à ses propriétés radiatives, objectif qui constituera le fil rouge de ce manuscrit, il sera nécessaire de développer et/ou d'utiliser des outils numériques que nous classerons en 3 catégories :

- des outils de caractérisation fine des propriétés texturales de mousses,
- des méthodes numériques permettant l'estimation des propriétés radiatives macroscopiques (A, T_{NH} et R_{NH}) et l'identification des propriétés radiatives homogénéisées (β , α , σ et Φ),
- une méthode numérique de génération de mousses permettant le contrôle des paramètres texturaux, afin de surmonter le verrou que constitue la faible diversité des textures disponibles par l'élaboration à l'échelle du laboratoire ou de l'industrie.

L'ensemble de ces outils numériques (présentés respectivement en chapitres 2, 4 et 5) permettra alors de fonctionnaliser les propriétés radiatives des mousses.

Le chapitre suivant sera dans l'immédiat consacré à la caractérisation des propriétés texturales de l'échantillon de mousse de référence présenté en section 1.4.1. Cette caractérisation sera l'occasion de décrire en détail les méthodes numériques permettant le calcul des paramètres texturaux utilisés tout au long de ce travail de thèse.

1.6 Références

- AGRAFIOTIS, C. C., MAVROIDIS, I., KONSTANDOPOULOS, A. G., HOFFSCHMIDT, B., STOBBE, P., ROMERO, M. et FERNANDEZ-QUERO, V. (2007). Evaluation of porous silicon carbide monolithic honeycombs as volumetric receivers/collectors of concentrated solar radiation. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 91(6):474 – 488. 22, 23, XVII
- ALBANAKIS, C., MISSIRLIS, D., MICHAILIDIS, N., YAKINTHOS, K., GOULAS, A., OMAR, H., TSIPAS, D. et GRANIER, B. (2009). Experimental analysis of the pressure drop and heat transfer through metal foams used as volumetric receivers under concentrated solar radiation. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 33(2):246 252. 22, 23, XVII
- ASTM INTERNATIONAL (2005). Astm g159-98, standard tables for references solar spectral irradiance at air mass 1.5 : Direct normal and hemispherical for a 37 degrees tilted surface. Rapport technique, ASTM. 8, XVII
- Ávila MARÍN, A. (2011). Volumetric receivers in solar thermal power plants with central receiver system technology : A review. *Solar Energy*, 85(5):891 910. 20, 21, 22, XVII
- BAO, X., NANGREJO, M. et EDIRISINGHE, M. (1999). Synthesis of silicon carbide foams from polymeric precursors and their blends. *Journal of Materials Science*, 34(11):2495–2505. 23
- BECKER, M., FEND, T., HOFFSCHMIDT, B., PITZ-PAAL, R., REUTTER, O., STAMATOV, V., STE-VEN, M. et TRIMIS, D. (2006). Theoretical and numerical investigation of flow stability in porous materials applied as volumetric solar receivers. *Solar Energy*, 80(10):1241 – 1248. Solar Power and Chemical Energy Systems (SolarPACES'04)International Symposium on Concentrating Solar Power and Chemical Energy Systems. 31
- CASADY, J. et JOHNSON, R. (1996). Status of silicon carbide (sic) as a wide-bandgap semiconductor for high-temperature applications : A review. *Solid-State Electronics*, 39(10):1409 1422. 23
- CHAPIN, D., FULLER, C. et PEARSON, G. (1954). A new silicon p-n junction photocell for converting solar radiation into electrical power. *J. Appl. Phys.*, 25:676. 9
- CHEN, C.-Y., YEH, K.-L., AISYAH, R., LEE, D.-J. et CHANG, J.-S. (2011). Cultivation, photobioreactor design and harvesting of microalgae for biodiesel production : a critical review. *Bioresource technology*, 102(1):71–81. 9
- CHISTI, Y. (2008). Biodiesel from microalgae beats bioethanol. *Trends in Biotechnology*, 26(3):126 131. 9
- ESTELA (2010). Solar thermal electricity 2025 clean electricity on demand : attractive ste cost stabilize energy production. Rapport technique, European Solar Thermal Electricity Association. 10
- EUROPEAN COMMISSION (2002). Solgate solar hybrid gas turbine electric power system. Rapport technique, - Community Research. 19, 20, XVII
- FALCONE, P. (1986). *A Handbook for Solar Central Receiver Design*. Sandia National Laboratories. 29

- FEND, T., HOFFSCHMIDT, B., PITZ-PAAL, R., REUTTER, O. et RIETBROCK, P. (2004). Porous materials as open volumetric solar receivers : Experimental determination of thermophysical and heat transfer properties. *Energy*, 29(5–6):823 – 833. SolarPACES 2002. 21, 23, XVII
- FERNÁNDEZ-GARCÍA, A., ZARZA, E., VALENZUELA, L. et PÉREZ, M. (2010). Parabolic-trough solar collectors and their applications. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 14(7):1695 1721. 8
- GERMAN AEROSPACE CENTER (DLR), I. o. T. T. (2005). Concentrating solar power for the mediterranean region med csp -final report. Rapport technique. 10, 11, XVII
- GOMEZ-GARCIA, F. (2015). Analyse du potentiel de nouvelles structures d'absorbeurs volumétriques pour les récepteurs des centrales solaires à tour. Thèse de doctorat, Université de Perpignan Via Domitia. 22, 31
- GOSWAMI, D. (1997). A review of engineering developments of aqueous phase solar photocatalytic detoxification and disinfection processes. *J. Sol. Energy Eng.*, 119(2):101–107. 9
- GOSWAMI, D. et KREITH, F. (2007). *Handbook of Energy Efficiency and Renewable Energy*. CRC Press, Taylor and Francis Group. 15, 17
- HENDRICKS, T. J. et HOWELL, J. R. (1996). Absorption/scattering coefficients and scattering phase functions in reticulated porous ceramics. *Journal of Heat Transfer*, 118(1):79–87. 32
- Ho, C. K. et IVERSON, B. D. (2014). Review of high-temperature central receiver designs for concentrating solar power. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 29:835–846. 17, 29
- HOFFSCHMIDT, B. (1997). Vergleichende Bewertung verschiedener Konzepte Volumetrischer Strahlungsempfanger. DLR Forschungsbericht. 18, 19, 20, XVII
- HOFFSCHMIDT, B., FERNÁNDEZ, V., KONSTANDOPOULOS, A., MAVROIDIS, I., ROMERO, M., STOBBE, P. et TÉLLEZ, F. (2001). Development of ceramic volumetric receiver technology. *In In : Proceedings of 5th Cologne Solar Symposium, Forschungsbericht 2001-10, DLR, Germany*, pages pp. 51–61. 20, XVII
- HOWELL, J. R., SIEGEL, R. et PINAR MENGÜC, M. (2011). *Thermal Radiation Heat Transfer Fifth Edition*. CRC Press. 21
- HSU, P. F. et HOWELL, J. R. (1992). Measurements of thermal conductivity and optical properties of porous partially stabilized zirconia. *Experimental Heat Transfer*, 5(4):293–313. 32
- INTERNATIONAL ENERGY AGENCY (2010a). Compared assessment of selected environmental indicators of photovoltaic electricity in oecd cities. Rapport technique. 10
- INTERNATIONAL ENERGY AGENCY (2010b). Technology roadmap concentrating solar power. Rapport technique. 10, 14, 15
- INTERNATIONAL ENERGY AGENCY (2011). Renewable energy technologies solar energy perspectives. Rapport technique. 8, 10, 11

- INTERNATIONAL ENERGY AGENCY (2014). Key world energy statistics. Rapport technique. 6
- KARNI, J., KRIBUS, A., RUBIN, R. et DORON, P. (1998). The "porcupine" : A novel high-flux absorber for volumetric solar receivers. *J. Solar Energy Engineering*, 120:85–95. 22
- KOLL, G., SCHWARZBÖZL, P., HENNECKE, K., HARTZ, T., SCHMITZ, M. et HOFFSCHMIDT, B. (2009). The solar tower Jülich a research and demonstration plant for central receiver systems. *In SolarPACES, Berlin.* 21
- KRIBUS, A., GRIJNEVICH, M., GRAY, Y. et CALIOT, C. (2014). Parametric study of volumetric absorber performance. *Energy Procedia*, 49:408 – 417. Proceedings of the SolarPACES 2013 International Conference. 17
- KRYZA, F. T. (2003). The Power of Light. McGraw-Hill. 9
- MEY, S., CALIOT, C., FLAMANT, G., KRIBUS, A. et GRAY, Y. (2014). Optimization of high temperature sic volumetric solar absorber. *Energy Procedia*, 49:478 487. Proceedings of the SolarPACES 2013 International Conference. 30, 31
- MODEST, M. F. (2003). Radiative Heat Transfer (Second Edition). Academic Press. 21
- MOUCHOT, A. (1869). *La Chaleur solaire et ses applications industrielles*. Paris, Gauthier-Villars. 9
- OLALDE, G. et FLAMANT, G. (2012). Solaire thermodynamique et thermochimie solaire. 16
- PEREZ, R. et PEREZ, M. (2009). A fundamental look at the planetary energy reserves. *IEA/SHC Solar Update*. 7
- PITZ-PAAL, R., AMIN, A., OLIVER BETTZUGE, M., EAMES, P., FLAMANT, G., FABRIZI, F., HOLMES, J., KRIBUS, A., van der LAAN, H., LOPEZ, C., GARCIA NOVO, F., PAPAGIANNA-KOPOULOS, P., PIHL, E., SMITH, P. et WAGNER, H.-J. (2012). Concentrating solar power in europe, the middle east and north africa : a review of development issues and potential to 2050. *J. Sol. Energy Eng.*, 134(2):024501. 17
- ROMERO, M. et GONZÀLEZ-AGUILAR, J. (2014). Solar thermal csp technology. *Wiley Interdisciplinary Reviews : Energy and Environment*, 3(1):42–59. 13, 16
- SANI, E., MERCATELLI, L., SANSONI, P., SILVESTRONI, L. et SCITI, D. (2012). Spectrally selective ultra-high temperature ceramic absorbers for high-temperature solar plants. *Journal of Renewable and Sustainable Energy*, 4(3):–. 19
- SHEFFLER, M. et COLOMBO, P. (2005). *Cellular Ceramics : Structure, Manufacturing, Properties and Applications.* Wiley. 21
- SOLARPACES, ESTELA, GREENPEACE (2009). Concentrating solar power global outlook 09. Rapport technique. 10, 16
- TIAN, Y. et ZHAO, C. (2013). A review of solar collectors and thermal energy storage in solar thermal applications. *Applied Energy*, 104(0):538 553. 17
- TOPIN, F., BONNET, J.-P., MADANI, B. et TADRIST, L. (2006). Experimental analysis of multiphase flow in metallic foam : flow laws, heat transfer and convective boiling. *Advanced Engineering Materials*, 8(9):890–899. 31

- WU, Z., CALIOT, C., BAI, F., FLAMANT, G., WANG, Z., ZHANG, J. et TIAN, C. (2010). Experimental and numerical studies of the pressure drop in ceramic foams for volumetric solar receiver applications. *Applied Energy*, 87(2):504–513. 31
- WU, Z., CALIOT, C., FLAMANT, G. et WANG, Z. (2011a). Coupled radiation and flow modeling in ceramic foam volumetric solar air receivers. *Solar Energy*, 85:2374–2385. 22, 23, 27, 31, XVII
- WU, Z., CALIOT, C., FLAMANT, G. et WANG, Z. (2011b). Numerical simulation of convective heat transfer between air flow and ceramic foams to optimise volumetric solar air receiver performances. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 54(7-8):1527–1537.
 31
- ZHANG, Q.-C. (2000). Recent progress in high-temperature solar selective coatings. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 62(1–2):63 74. 19

Chapitre 2

Caractérisation des propriétés texturales des mousses à cellules ouvertes

Sommaire

2.1	Généralités sur les mousses				
	2.1.1	Les différentes classes de matériaux poreux	40		
	2.1.2	Propriétés géométriques d'intérêt	41		
2.2	Procé	dé de fabrication de la mousse de référence en SiC	42		
2.3	3 Acquisition d'images volumiques par μ -tomographie par rayons X .				
	2.3.1	Présentation du logiciel iMorph	43		
	2.3.2	μ-tomographie par rayons X	43		
2.4	Défin	ition et caractérisation des propriétés texturales de la mousse	44		
	2.4.1	Porosité	44		
	2.4.2	Surface spécifique	47		
	2.4.3	PPI	48		
	2.4.4	Distribution de taille de cellule et diamètre nominal de cellule	48		
	2.4.5	Distribution de distance inter-cellules (CCDD) et connectivité moy-			
		enne C_m	51		
	2.4.6	Morphologie des brins	52		
2.5	Conclusions				
2.6	Références				

L'optimisation des absorbeurs solaires volumétriques nécessite une meilleure compréhension des liens entre la texture des mousses SiC, à partir desquelles ils sont élaborés, et leurs propriétés radiatives. Ce présent chapitre vise donc, après avoir fourni quelques généralités et éléments de vocabulaire lié aux mousses, à présenter l'ensemble des moyens expérimentaux et numériques permettant la caractérisation des propriétés texturales qui sont à notre disposition. La méthode permettant d'obtenir une représentation 3D numérique d'un échantillon réel à partir d'images obtenues par μ -tomographie par rayons X sera tout d'abord détaillée. Cette reconstruction sert ensuite de base pour les calculs des paramètres texturaux de la mousse, réalisés via le logiciel iMorph. Chacun des paramètres texturaux qui nous intéressent seront définis précisément, ainsi que les méthodes de calcul utilisées pour les obtenir via iMorph. Pour illustrer ces diverses étapes, l'échantillon de mousse de SiC de référence présenté au chapitre précédent sera caractérisé.

2.1 Généralités sur les mousses

2.1.1 Les différentes classes de matériaux poreux

Les matériaux poreux sont définis comme étant des solides constitués d'un assemblage de cellules vides, chacune étant entourée d'arêtes ou de parois solides [Gibson et Ashby, 1997]. La figure ci-dessous présente quelques exemple de matériaux poreux naturels ou manufacturés :



FIGURE 2.1 – Matériaux cellulaires naturels et manufacturés : (a) nids d'abeilles, (b) section d'une tige de Ricinus communis [Coulter *et al.*, 1910], (c) os coxal humain (source wikimedia commons), (d) absorbeur solaire volumétrique en nids d'abeilles de SiC, (e) Mousse de polyéthylène, (f) éponge synthétique.

Comme la figure 2.1 en témoigne, les milieux poreux présentent une grande variété de structures parmi lesquelles il est important de faire des distinctions. La première, et la

plus basique, distingue d'une part les matériaux dont la structure peut être représentée par un plan présentant un arrangement de cellules polygonales en 2 dimensions (nids d'abeille par exemple), et d'autre part, les matériaux décrits par un arrangement 3D de cellules aux orientations aléatoires (mousses). Dans cette deuxième catégorie, on peut séparer les mousses ouvertes des mousses fermées. Les mousses à cellules fermées sont constituées par des arrangements de cellules ellipsoïdales ou polygonales isolées les unes des autres par des parois, à l'inverse des mousses ouvertes, dont l'architecture est uniquement constituée par les arêtes qui définissent les cellules. Concernant les mousses ouvertes, il convient de définir le vocabulaire qui sera utilisé dans l'ensemble de ce manuscrit. Ainsi, le terme cellule désignera l'espace vide correspondant à une bulle de notre mousse (Fig. 2.2), le terme col correspondant quand à lui aux ouvertures entre deux cellules différentes. Les brins correspondent aux arêtes délimitant les cellules, et les nœuds correspondent aux jonctions entre les brins.



FIGURE 2.2 – Éléments constitutifs d'une mousse à cols ouverts.

2.1.2 Propriétés géométriques d'intérêt

Il existe un certain nombre de matériaux cellulaires naturels (bois, liège, éponge, corail, os...) dont la fonction "biologique" est souvent de présenter un bon rapport entre légèreté et résistance mécanique. À présent fabriqués par l'homme, leurs applications très diverses font partie de notre vie courante. Ces matériaux présentent en effet de nombreuses propriétés thermiques, mécaniques, structurelles ou encore de flottabilité intéressantes. Ils sont donc destinés à des usages variés tels que l'optimisation de transferts thermiques, l'absorption de chocs mécaniques, la catalyse, etc. L'ouvrage de Gibson et Ashby [1997] donne un aperçu plus complet de ces domaines d'application.

Concernant leur propriétés thermiques, les mousses sont principalement utilisées pour leur caractère isolant. Les mousses à cols fermés notamment, font partie des matériaux dont la conductivité thermique est la plus faible. Plusieurs facteurs combinés limitent le transfert thermique : la faible fraction volumique de solide limitant la conduction, la taille limitée des cellules limitant la convection et la réduction du transfert radiatif au travers de multiples réflexions et absorptions sur les parois ou les brins [Gibson et Ashby, 1997]. Ces propriétés en font des candidats naturels pour résoudre les problématiques liées au stockage à très basse température (transport de gaz liquéfié, industrie alimentaire...) ou encore à la protection contre les très hautes températures (récipients jetables pour boissons chaudes, boucliers thermiques...).

2.2 Procédé de fabrication de la mousse de référence en SiC

La méthode de diffraction par rayons X sur poudre (XRD), réalisée sur une pièce de mousse finement broyée, a révélé que l'échantillon est composé d'a-SiC. L'a-SiC fritté est un matériau réfractaire, capable de supporter des conditions extrêmes d'usage et est sujet à une passivation protectrice sous air à haute température (1200-1500 K) [Rousseau et al., 2013]. La mousse d'α-SiC de référence est produite par un procédé de réplication de mousse polymère. Ce procédé, précisément décrit dans l'ouvrage de Sheffler et Colombo [2005], est l'un des plus utilisés (et l'un des plus anciens) pour produire des mousses dont les gammes de porosités et les tailles de cellules sont contrôlées. Il consiste à plonger une mousse précurseur en polymère flexible (dans notre cas du polyuréthane) dans une solution de céramique liquide afin de l'en imbiber. Après avoir enlevé l'excédant de céramique en pressant la mousse, puis séché l'échantillon afin d'assurer un décloisonnement optimal des cellules, une combustion permet de brûler complètement le polymère tout en assurant le frittage de la céramique. Via un tel procédé, la texture de la mousse obtenue est celle du "template" de polyuréthane utilisé. En théorie, il est donc envisageable de générer des textures relativement variées. En pratique, la fragilité de la céramique, ainsi que les lacunes laissées au cœur des brins par la disparition du polymère, ne permettent pas la réplique de formes trop complexes (brins très longs et fins par exemple). De plus la fabrication de grandes pièces (> 50 mm de diamètre) pour de petites tailles de cellules (> 30 PPI, pores per inch, notion définie en section 2.4.3) rend l'étape permettant le décloisonnement des cellules partiellement inefficace.

En outre, la génération de la mousse polymère précurseur est effectuée par un procédé de bullage qui n'offre pas un contrôle important sur les propriétés texturales du template (seule la taille des cellules est contrôlée). Toutefois, cette notion de réplication dans le procédé reste très intéressante dans la mesure ou les technologies d'impression 3D sont aujourd'hui en plein progrès. On peut alors imaginer, une fois la texture idéale d'un point de vue radiatif définie, l'impression un précurseur en polyuréthane nous permettant de la réaliser.

2.3 Acquisition d'images volumiques par μ -tomographie par rayons X

L'obtention d'une reconstruction 3D numérique correspondant précisément à l'échantillon réel est une étape indispensable pour la caractérisation des propriétés texturales et radiatives via des méthodes numériques. Le processus consiste premièrement à acquérir des images tomographiques du matériau. Deux représentations du matériau sont alors accessibles. La première consiste en un assemblage de cubes (ou voxels), dont le niveau de gris traduit la densité de matière qui permet ensuite d'identifier les différentes phases (solide/fluide). Cette représentation binarisée du matériau sera utilisée par l'ensemble des calculs permettant d'obtenir les paramètres texturaux des mousses. La seconde est une représentation surfacique se présentant sous la forme d'un maillage. Celui-ci sera utilisé pour les simulations des propriétés radiatives via des méthodes de ray-tracing. La méthode permettant son obtention sera donc décrite en chapitre 4.

2.3.1 Présentation du logiciel iMorph

La caractérisation des propriétés texturales est réalisée à partir du logiciel libre iMorph développé à l'IUSTI UMR 7343 (Aix-Marseille Université), spécialisé dans l'analyse fine des matériaux cellulaires [Rousseau *et al.*, 2012] (logiciel sous licence CeCiLL, C++, GUI sous framework Qt). Les méthodes de caractérisation des propriétés texturales brièvement présentées ci-dessous ont été développées depuis quelques années [Vicente *et al.*, 2006], puis plus récemment lors des travaux de thèse de Brun *et al.* [2008]. Les méthodes de prédiction des propriétés radiatives qui ont été développées lors de ce travail de thèse se présentent sous la forme d'un plugin du logiciel, permettant ainsi l'utilisation des structures de données et des maillages adaptés au transport radiatif dans les milieux poreux.

Tout au long de ce manuscrit, un vocabulaire et différents types de représentations liés au domaine de l'imagerie 3D, qu'il convient de définir, seront utilisés. Ainsi, le terme image 3D, sera employé pour désigner un volume de données discrètes (matrice 3D) représentant notre matériau. Le volume élémentaire de cette représentation, le voxel, est l'équivalent, pour une image 3D, de ce qu'est un pixel pour une image classique (2D). Souvent, par souci de commodité, des images 2D seront utilisées pour illustrer les concepts développés. Celles-ci équivaudront alors à des plans de section de l'image 3D, et le terme voxel sera utilisé par abus de langage.

2.3.2 μ-tomographie par rayons X

Pour l'acquisition fine de la micro structure d'un matériau poreux, la µ-tomographie par rayons X est très utilisée depuis quelques années. Elle consiste à réaliser un grand nombre d'images par rayons X correspondant aux projections de la structure interne du milieu selon divers angles d'observation. Des algorithmes de reconstruction faisant intervenir des méthodes inverses permettent ensuite l'obtention de la répartition de la matière en 3 dimensions. Dans la mesure où cette technique, non-intrusive, permet d'obtenir des images à de bonnes résolutions, elle est abondamment utilisée dans le domaine de l'imagerie médicale et de la science de matériaux. Plus spécifiquement, de nombreuses études utilisent directement la reconstruction 3D des milieux poreux pour la détermination de leurs propriétés radiatives [Coquard *et al.*, 2012; Loretz *et al.*, 2008; Zeghondy *et al.*, 2006]. Il est toutefois important de préciser que la taille des échantillons investigués est bornée par la résolution que l'on souhaite obtenir. Pour obtenir des résolutions d'images plus élevées, le recours à des sources de type Synchrotron est nécessaire. Néanmoins la taille utile caractérisable d'échantillon est dans ce cas plus limitée, et ces mesures sont plus coûteuses [Baruchel *et al.*, 2000].

Une acquisition par μ -tomographie par rayons X a donc été réalisée sur un échantillon de notre mousse SiC de référence dont le volume est de 1 cm³, avec un tomographe Mi-

croXCT 400 Xradia (GEM, Nantes, France). La figure 2.3 montre l'empilement des images issue de la tomographie réalisée sur l'échantillon. La résolution de ces images est de 24,14 μ m/pixel.



FIGURE 2.3 – Empilement d'images issues de la μ -tomographie par rayons X.

Binarisation des images tomographiques

La première étape consiste à binariser les images tomographiques (dont l'empilement constitue une image 3D brute en niveaux de gris de notre mousse) en fixant un seuil de niveau de gris qui va déterminer la séparation entre les phases fluide et solide. La figure 2.3 illustre cette étape de binarisation pour une seule image de l'empilement. Les voxels faisant partie de la phase solide (dont le niveau de gris est supérieur au seuil choisi) y sont affichés en rouge. Tous les autres voxels de l'image, dont le niveau de gris est inférieur, constituent alors la phase fluide.

2.4 Définition et caractérisation des propriétés texturales de la mousse

Les dimensions de l'échantillon numérique issu des images tomographiques de la mousse réelle que nous allons caractériser dans cette section nécessitent d'être précisées : celui-ci possède un volume de 400 × 400 × 400 voxels de résolution voxélique 24,14 μ m/voxel, ce qui lui confère une taille fictive de 1 cm³.

2.4.1 Porosité

Définition

La porosité (dénotée p dans la suite de ce manuscrit) est définie comme étant le rapport entre le volume constitué par l'espace poral et le volume total de l'échantillon considéré. La porosité d'un matériau cellulaire constitue la propriété texturale ayant le plus d'influence sur les propriétés effectives d'un matériau poreux. Elle constitue ainsi le paramètre le plus important pour piloter les propriétés radiatives de l'absorbeur volumétrique. En effet une haute porosité réduit les pertes de charge subies par l'écoulement du fluide qui le traverse et permet une bonne pénétration du rayonnement incident, favorisant ainsi l'effet volumétrique. Comme pour toute propriété calculée sur un volume, pour une estimation correcte de la porosité, ce volume total doit être supérieur au volume représentatif élémentaire (V.E.R.) relatif à la porosité. Ce point spécifique fait l'objet d'une étude située en chapitre 6 (section 6.2). Dans le cadre des mousses, il peut être nécessaire de distinguer plusieurs types de porosités :

- la macro-porosité, constituée des cellules inter-connectées,
- la méso-porosité, constituée par les espaces vides dans les brins lorsqu'ils sont creux ou éventuellement fissurés,
- la micro-porosité (ou porosité matricielle), propriété intrinsèque de la phase solide.

Calcul de la porosité

Lorsque l'échantillon ne peut pas être reconstruit numériquement, la méthode la plus classique pour déterminer la porosité d'un échantillon de matériau cellulaire consiste à faire une pesée, puis, connaissant les dimensions de l'échantillon et la masse volumique du matériau constitutif, à calculer la porosité en divisant la masse obtenue par la masse théorique d'un échantillon de même dimension supposé plein. Une autre méthode, telle que la porosimétrie par voie mercure, peut être également employée, mais celle-ci ne permet pas la prise en compte des porosités fermées.

Dans notre cas, la porosité de la mousse peut être facilement calculée à partir de la reconstruction 3D des images tomographiques ou virtuellement générées. La méthode consiste à compter le nombre de voxels comptant pour la phase poreuse et à le diviser par le nombre total de voxels de la zone d'intérêt. Les méso-porosités dues aux lacunes laissées au cœur des brins par la destruction du squelette template de polyuréthane sont prises en compte dans le calcul de la porosité totale. La porosimétrie par image tomographique permet de distinguer les porosités ouvertes et fermées et est de fait différente de celle obtenue expérimentalement. En revanche, la résolution voxélique étant de 24,14 μ m, les éventuelles micro-porosités dues à l'empilement de grains (voir section 1.4.1) intrinsèques au SiC, et dont la taille est bien inférieure à la résolution des images tomographiques, ne sont ici pas comptabilisées.La porosité de l'échantillon de référence est estimée à 0,7.

Choix du seuil et précision

Une brève étude des distributions de niveaux de gris de l'ensemble du stack d'images issu de la tomographie permet d'estimer l'erreur faite sur la porosité numériquement calculée. La figure 2.4 (a) montre la distribution brute des niveaux de gris de l'ensemble de ces images.

La facilité avec laquelle les images peuvent être binarisées dépendent de leur qualité de contraste permettant de distinguer la phase solide de la phase fluide. On distingue sur la distribution brute des niveaux de gris 2 ensembles sous la forme de gaussiennes correspondant aux pixels ou voxels faisant partie de la phase fluide (niveaux de gris sombres, pic entre 0 et 50) et de la phase solide (niveaux de gris clairs, pic entre 125 et 175). Ceux-ci,



FIGURE 2.4 – (a) Distribution des niveaux de gris du stack d'images tomographiques de la mousse de référence. (b) Distribution cumulée des niveaux de gris et visualisation du report d'une gamme de niveaux de gris en gamme de porosité.

bien séparés, montrent que la porosité de l'échantillon peut être choisie avec une bonne précision. La zone intermédiaire (niveaux de gris de 50 à 125) correspond au dégradé de gris existant entre la phase solide et la phase fluide issu des images tomographiques (représenté en encart). C'est donc dans cette zone que le seuil de binarisation est choisi. Cette zone est relativement étendue : on peut voir sur la figure 2.4 (b) que celle-ci peut donner lieu à des porosités allant de 0,647 à 0,788. Cependant, comme nous pouvons le voir dans les encarts, ces deux cas ne reproduisent pas de manière réaliste l'interface so-lide/fluide. Dans le premier, la phase solide est surestimée, et les méso-porosités internes aux brins sont occultées. À l'inverse, dans le second cas, la porosité est surestimée et les lacunes au sein des brins sont trop étendues. Le choix du seuil de niveau de gris définitif doit donc se faire à l'œil de manière à obtenir une binarisation réaliste. Dans la zone d'incertitude, chaque valeur de niveau de gris correspond alors à une variation de porosité de $\pm 0,002$ en moyenne, ce qui procure une précision satisfaisante.

Porosimétrie 2D

Une étude plus fine de la porosité consiste à observer l'évolution de la porosité le long des directions portées par les axes x, y et z. Par exemple, pour une étude le long de l'axe z, cette approche consiste à calculer pour chaque valeur de z (le pas selon z correspond à un voxel) la porosité "2D" du plan ¹ constitué de tous les voxels (selon les axes x et y) possédant pour coordonnée le z courant. La figure 2.5 (a) propose un schéma décrivant une telle configuration. Ce calcul est également réalisé le long des axes x et y. La figure 2.5 (b) montre le tracé superposé des évolutions des porosités "2D" en fonction de la profondeur le long des axes x, y et z.

On observe un comportement comparable pour les trois directions portées par les axes *x*, *y* et *z*. Celui-ci se traduit par des fluctuations relativement importantes (jusqu'à \pm 4 %) de la porosité. Ces fluctuations ont pour origine l'arrangement des cellules proposé par la mousse. En effet, lors du procédé de bullage du template en polyuréthane (qui est majoritairement responsable de la texture de la mousse SiC finale), les cellules se répar-

^{1.} Ce qui est appelé plan ici ne représente pas un plan au sens strict car celui-ci possède une épaisseur correspondant à la taille d'un voxel.



FIGURE 2.5 – (a) Schéma représentant le calcul de la porosité pour le plan (0,x,y) pour z = 0. (b) Évolution de la porosité "2D" le long des axes x y et z pour l'échantillon de mousse référence.

tissent de manière relativement régulière. Des effets de rangées de cellules peuvent alors être mis en évidence par les fluctuations observées en figure 2.5 (b). Lorsque la porosité d'un plan est haute, cela signifie que celui-ci coupe une plus grande proportion de cellules au niveau de leur centre. La phase solide interceptée par le plan est alors principalement constituée par des brins coupés transversalement. Ainsi, le plan intercepte une plus faible proportion de solide et la porosité 2D correspondante est plus faible. À l'inverse, une basse porosité dans le plan indique que celui-ci coupe davantage de brins longitudinalement et que le plan se situe majoritairement entre deux rangées de cellules. Ces profils de porosité représentent donc des indicateurs fiables permettant de caractériser le degré d'organisation, mais également l'isotropie ou l'anisotropie d'une mousse. Pour la mousse de référence, l'observation de la figure 2.5 (b) permet d'affirmer l'isotropie de son réseau de cellules. Par la suite, il sera possible de montrer leur influence non négligeable sur les propriétés radiatives des mousses.

2.4.2 Surface spécifique

Définition

La surface spécifique (dénotée S_s dans la suite de ce manuscrit) est définie par le rapport entre la surface totale de l'interface (entre les phases fluide et solide) et le volume de l'échantillon. Son unité est donc en m².m⁻³. La surface spécifique joue un rôle important sur les propriétés radiatives des mousses utilisées en tant qu'absorbeurs. Celle-ci correspond directement à la surface d'échange sur laquelle ont lieu (i) les phénomènes d'absorption permettant de convertir le flux radiatif concentré en chaleur fournie à la phase solide; et (ii) le transfert convectif fournissant la chaleur depuis le solide et vers le fluide caloporteur.

Calcul de la surface spécifique (iMorph)

La surface spécifique est obtenue non pas grâce à la représentation 3D voxélisée de l'échantillon, mais à partir de la reconstruction 3D de l'interface entre les phases solide et

fluide. Cette reconstruction fait intervenir un algorithme de Marching Cubes qui est décrit en section 4.1.1. Celui-ci construit le maillage de l'interface solide/fluide en créant des facettes triangulaires, ensuite stockées en mémoire. La surface de chaque triangle est simultanément calculée. Le calcul de la surface spécifique revient donc à réaliser une simple addition de ces surfaces. Pour la mousse de référence, la surface spécifique est égale à 2810 m^2/m^3 . Cette valeur est obtenue pour la résolution voxélique des images tomographiques (24,14 µm/voxel).

2.4.3 PPI

Le PPI (de l'anglais pores per inch) est défini comme étant le nombre de cellules (ou pores) décomptés le long d'un segment rectiligne mesurant un inch (1 inch = 2,54 cm). Étant évalué à partir d'un plan de coupe d'une mousse, il constitue une donnée relativement imprécise pour qualifier la texture d'une mousse. En effet, un plan de coupe laisse apparaître à la fois des coupes de cols entre deux cellules, ainsi que des coupes de cellules entières. Dès lors, la définition même du PPI peut apparaître intrinsèquement erronée. Toutefois, dans l'industrie et la littérature, il est souvent d'usage d'utiliser le PPI par commodité pour différencier les mousses par rapport à la taille de leurs cellules. Encore une fois, cette utilisation doit rester qualitative, car deux mousses de PPI similaires mais de porosités différentes ne présenteront pas la même taille de cellule. L'utilisation d'une telle grandeur s'explique en partie par le manque de techniques d'imagerie couplées à des moyens numériques plus poussés, nécessaires à la caractérisation fine de la morphologie² des cellules. La section suivante répond d'ailleurs à ces attentes. Néanmoins, nous utiliserons tout de même dans ce travail le sens strict de la notion de PPI pour décrire grossièrement le nombre de cellules par unité de longueur. Dans le chapitre 6, qui concerne l'exploitation des résultats, une méthode permettant de fournir une valeur exacte du PPI indépendamment de la porosité sera détaillée. Le PPI estimé sur la mousse de référence est d'environ 18.

2.4.4 Distribution de taille de cellule et diamètre nominal de cellule

Définition

La distribution de taille des cellules (dénotée CSD dans la suite de ce manuscrit, pour Cell Size Distribution) présentes dans la mousse est un paramètre important pour la caractérisation de sa structure. Généralement, cette distribution suit une loi normale (distribution gaussienne), mais certaines mousses peuvent présenter des distributions de taille de cellules bi ou multi-modales (distributions constituées par l'addition de plusieurs gaussiennes), témoignant de plusieurs catégories de taille de cellules bien distinctes. Dans notre cas, celui d'une distribution mono-disperse, le moment d'ordre 1 de cette distribution (*i. e.* le pic de la gaussienne) correspond à la la taille moyenne de cellule qui sera dénotée dans ce manuscrit comme étant le diamètre nominal de cellule d_{nom} . La largeur de la gaussienne à mi-hauteur témoigne quant à elle de la dispersion des tailles des cel-

^{2.} Le terme morphologie est employé dans ce manuscrit pour désigner la forme géométrique d'une cellule ou d'un brin, et ne doit pas être confondu avec le terme texture.

lules. Les trois premiers paramètres texturaux que nous venons de définir sont liés les uns aux autres. En effet, à porosité fixée, la variation de d_{nom} modifie fortement la valeur de surface spécifique. Nous verrons que la valeur de d_{nom} influe sur les propriétés radiatives volumétriques homogénéisées.

Calcul de la CSD et de d_{nom} (iMorph)

Le calcul de la CSD nécessite premièrement la segmentation de la phase fluide, puis la reconstruction d'ellipsoïdes équivalentes inscrites dans chaque cellule présentée par la mousse. L'utilisation de méthodes simples (érosion, dilatation) pour réaliser la segmentation est impossible, car la porosité des mousses étudiées est ouverte. Une méthode plus complexe, exposée dans les travaux de Vicente *et al.* [2006] a donc été développée.

Celle-ci consiste tout d'abord à calculer une image 3D dont chaque voxel de la phase fluide contient la distance le séparant du voxel solide de l'interface le plus proche. Cette image 3D (que nous appellerons par la suite carte des distances à l'interface, voir figure 2.6 (a)) est calculée grâce à un algorithme de Fast-Marching initialisé aux voxels de l'interface solide/fluide. Cet algorithme, utilisé à plusieurs reprises dans cette thèse pour la génération numérique de mousses, est défini de manière précise en chapitre 5. La carte des distances à l'interface présente alors des extrema locaux (figure 2.6 (a), zone jaunes), ou marqueurs qui sont identifiés.



FIGURE 2.6 – (a) Carte des distances à l'interface, (b) représentation en 2D de la segmentation obtenue par Watershed, (c) cellules ellipsoïdales inscrites reconstruites en 3D.

Du fait de l'irrégularité de la forme des cellules et des éventuelles constrictions, plusieurs marqueurs peuvent être présents au sein d'une même cellule. Une étape importante de la méthode consiste alors à déterminer lequel pourra être choisi comme étant le centre de la cellule dans laquelle il est inclus. Ces procédures d'élimination sont expliquées plus en détails dans les travaux de Vicente *et al.* [2006]. À partir des marqueurs sélectionnés, un algorithme de Watershed (également utilisé et décrit en chapitre 5) exécuté sur la carte des distances, permet finalement la segmentation des voxels de la phase fluide en domaines (représentés en 2D sur la figure 2.6 (b)) correspondant chacun à une cellule [Dillard *et al.*, 2003]. Une correction du biais de l'algorithme de Watershed est utilisée pour bien localiser les zones de Plateau (zones de rencontre de deux cellules), afin de bien définir la géométrie des cols.

Une population d'ellipsoïdes est ainsi reconstruite (voir figure 2.6 (c)) à partir de laquelle il est possible de mesurer directement les distributions de divers paramètres morphologiques liés aux cellules (volume, surface, diamètre de la sphère équivalente, longueurs des 3 demis-axes *a*, *b* et *c*, par défaut attribués aux valeurs décroissantes des composantes).

Le diamètre équivalent de la cellule est dans ce travail défini comme le diamètre de la sphère de même volume. La figure 2.7 représente les distributions des tailles des trois demis-axes (en couleurs) caractérisant chaque ellipsoïde ainsi que la distribution des diamètres de cellule (CSD) équivalents leurs correspondant obtenue pour l'échantillon de la mousse de référence que nous caractérisons (en blanc).



FIGURE 2.7 – Distribution des tailles des demis-axes a, b et c (en couleurs) et des diamètres équivalents de cellules obtenus qui leur correspondent (en blanc).

Il est important de noter que seules les cellules totalement inscrites au sein de l'échantillon numérique (ce qui représente 296 cellules pour l'échantillon numérique de 400 × 400 × 400) sont comptabilisées, évitant de prendre en compte dans la distribution les diamètres sous-estimés des cellules tronquées aux limites. La CSD de la mousse de référence présente la forme d'une gaussienne (trait plein noir), permettant l'identification relativement aisée de d_{nom} , qui est ici égal à 1290 µm. On peut remarquer que cette valeur correspond grossièrement à l'écart moyen entre deux oscillations du profil de porosité 2D (figure 2.5). La CSD ne fournit pas seulement la valeur de d_{nom} , elle donne également la valeur de dispersion que présente la distribution. Ainsi, la valeur de d_{nom} peut être assortie d'un écart type ici égal à ± 140 µm. Les distributions des demis-axes *a*, *b* et *c* donnent des informations sur la forme générale des cellules. Les valeurs moyennes des demi-axes indiquent que les cellules ont une projection quasi circulaire dans le plan défini par *a* et *b* (*a* et *b* étant proches), et plutôt ovale dans les autres plans (définis par *a* et *c* ou *b* et *c*).

2.4.5 Distribution de distance inter-cellules (CCDD) et connectivité moyenne C_m

Définitions

La manière dont est organisé le réseau des cellules au sein d'une mousse constitue également une donnée importante. Celle-ci peut être caractérisée par la connectivité moyenne des cellules C_m . Pour une cellule donnée, le terme connectivité correspond dans ce travail au nombre de cellules voisines étant directement en contact via une connexion ouverte (un col). Nous verrons que cette propriété revêt une importance particulière lorsque l'on souhaite générer des mousses virtuelles réalistes. Comme nous allons l'aborder cidessous, la fabrication du réseau reliant les cellules voisines permet également l'acquisition de la distribution des distances inter-cellules. Celle-ci permet d'apprécier les distances moyennes séparant l'ensemble des cellules. Dans la suite de ce manuscrit, elle sera dénotée CCDD (pour Cell-Cell Distance Distribution).

Calcul de la CCDD et de C_m via iMorph

La connectivité moyenne des cellules peut être déterminée via iMorph car le logiciel offre la possibilité de construire un graphe représentant le réseau des cellules. La méthode consiste à retrouver les connexions directes (via les ouvertures des cols) entre cellules en se servant des positions des centres de cellules précédemment déterminées. La figure 2.8 (a) donne un aperçu du réseau ainsi obtenu. Les sphères colorées y représentent les centres de cellules, et les segments symbolisent les connexions directes entre cellules.



FIGURE 2.8 – (a) Reconstruction du réseau de connectivité de l'échantillon de référence. (b) Distribution des connectivités de la population de cellules.

La connectivité d'une cellule de la mousse est donc calculée en additionnant le nombre de cellules directement voisines. Ensuite C_m est obtenue en moyennant les connectivités de chaque cellule de l'échantillon. Pour la mousse de référence, C_m est égale à 11. La distribution des distances inter-cellules est accessible via le calcul de la longueur de chaque segment correspondant à une connexion ouverte entre deux centres (voir figure 2.9 (a)).

De la même manière que précédemment, seules les cellules et connexions totalement inscrites ont été prises en compte, évitant une sous-estimation de la connectivité moy-



FIGURE 2.9 – Distribution des distances inter-cellules pour la mousse de référence.

enne et la présence de segments de jonction tronqués dans la CCDD. Nous identifions à partir de cette distribution une distance inter-cellules moyenne l_{int} de 1330 ± 380 µm.

2.4.6 Morphologie des brins

Pour caractériser la géométrie des brins, la première étape consiste à obtenir le graphe représentant le réseau de la phase solide (dont les nœuds et les segments vont respectivement représenter les nœuds de la mousse et les brins qui les lient).

Celui-ci peut être obtenu en déterminant les nœuds par la loi de Plateau appliquée à l'image 3D contenant la segmentation des cellules (voir figure 2.6 (b)). Les lois de Plateau régissent la formation et la structure des mousses liquides à l'équilibre. Celles-ci permettent donc d'identifier les cols, les brins et les nœuds de la mousse (voir figure 2.2) comme étant respectivement les interfaces entre 2, 3 et 4 (ou plus) cellules. Pour les appliquer, l'image 3D contenant la segmentation des cellules doit être modifiée afin de ne plus représenter la phase solide, qui empêche la détermination de ces interfaces entre cellules. Les voxels de la phase solide doivent être intégrés à la cellule la plus proche en prenant son label. Pour cela, toutes les cellules sont dilatées par une croissance géodésique simultanée jusqu'à ce que tous les voxels correspondant à la phase solide appartiennent à une cellule.

Une fois le graphe des lois de Plateau obtenu, celui-ci permet d'identifier les orientations et extrémités de chaque brin. Ensuite, une méthode de classification de formes, développée et décrite de manière précise dans les travaux de Brun et Vicente [2010], est appliquée à chaque voxel de la phase solide. Celle-ci consiste à calculer les moments d'inerties des domaines constitués par ces voxels et leurs voisinages respectifs dans la phase solide (domaines définis par géodésie en utilisant l'algorithme de Fast-Marching). Les proportions existant entre les différentes composantes (a, b et c, par défaut attribués aux valeurs décroissantes des composantes) des moments d'inertie ainsi obtenus nous informent sur la topologie locale de la phase solide sondée : si la composante a est prédominante par rapport aux deux autres (rapport a/b élevé), le domaine est caractéristique d'une poutre, si l'une d'entre elles est très inférieure aux autres (rapport b/c élevé), on identifiera une plaque (ou paroi), et enfin si les trois sont équivalentes, on identifiera une jonction. La figure 2.10 montre l'identification ainsi faite des différents types de structures solides pour la reconstruction 3D de la mousse de référence.



FIGURE 2.10 – (a) Identification des différents types de structures solides pour la mousse de référence : poutres (en blanc) et nœuds (en orange).

La mousse de référence présente des brins relativement trapus, mais que la méthode d'identification de formes parvient tout de même à différencier des nœuds. Très peu de parois sont détectées, ce qui correspond bien à notre configuration de mousse à cols ouverts. Toutefois, quelques nœuds particulièrement déformés sont identifiés comme étant des plaques.

Cette classification préalable permet ensuite le calcul des diamètres équivalents des brins. Ce calcul n'est réalisé que pour les brins suffisamment cylindriques, qui constituent, dans le cas de la mousse de référence, la majorité des brins. Pour cela, un seuil définissant la circularité de chaque brin, à partir des moments d'inertie précédemment calculés (correspondant au rapport a/b), est choisi. Ensuite, pour un brin, le calcul de sa section est réalisé. En se situant au centre du brin (par rapport à sa longueur), on calcule d'abord le diamètre du cercle maximal pouvant être inscrit à l'intérieur de la section du brin pour obtenir ce que nous appellerons le diamètre inscrit. Puis le calcul du diamètre du cercle minimal pouvant contenir la section (diamètre circonscrit) est effectué à son tour. La figure 2.11 (a) montre les distributions de ces diamètres inscrits et circonscrits :

Le faible écart que l'on observe entre ces deux distributions indique que les diamètres inscrits et circonscrits sont dans l'ensemble relativement proches. Ce fait confirme la bonne circularité des brins identifiés par la procédure de classification de formes. Ensuite, le périmètre moyen de chaque brin est calculé. À partir de ce périmètre, un diamètre équivalent est ensuite déterminé. La figure 2.10 (b) montre la distribution des valeurs de diamètre équivalent pour l'échantillon de référence. La distribution peut être relativement bien assimilée à un gaussienne, nous permettant d'identifier le diamètre moyen de brin d_b , qui est égal à 300 µm. Cette distribution nous montre également que les diamètres des brins au sein de la mousse de référence présentent une forte dispersion (environ \pm 100 µm).



FIGURE 2.11 – (a) Distributions des diamètres inscrits et circonscrits. (b) Distribution des diamètres calculés à partir du périmètre.

2.5 Conclusions

Au travers de ce chapitre, nous avons pu définir les propriétés texturales d'intérêt des mousses à pores ouverts. Ensuite celles-ci ont été calculées numériquement sur l'échantillon de mousse de référence. Cette caractérisation nécessite la reconstruction 3D d'un échantillon numérique à partir d'un empilement d'images tomographiques obtenues sur la mousse. Les méthodes numériques sont mises en œuvre par un logiciel libre spécialisé dans l'analyse fine des matériaux cellulaires, iMorph [Rousseau *et al.*, 2012], initialement développé à l'IUSTI UMR 7343 (Aix-Marseille Université).

Les propriétés texturales définies et calculées dans ce chapitre sont les suivantes :

- la porosité *p*,
- la surface spécifique S_s ,
- le nombre de PPI,
- la distribution des diamètres de cellule (CSD) et le diamètre nominal de cellule d_{nom} ,
- la distribution de distance inter-cellules (CCDD) l_{int} ,
- la connectivité moyenne inter-cellules,
- la distribution des diamètres de brin et le diamètre moyen de brin *d*_b.

Les méthodes numériques déployées par iMorph ont été détaillées, et leur précision à été discutée. Il ressort de cette étude que la précision des méthodes numériques, ainsi que la variété des paramètres texturaux calculés, permettent une caractérisation en profondeur de la texture des mousses. Les propriétés texturales de la mousse de référence sont récapitulées dans le tableau 4.2.

L'ensemble de ces propriétés caractérise quantitativement la texture de la mousse de référence. Ces informations permettent de définir précisément la texture "cible" que la méthode numérique de génération de mousse développée au chapitre 5 cherchera à reproduire. L'association de cette méthode de génération aux méthodes numériques de prédiction des propriétés radiatives permettra finalement d'étudier l'influence de la texture sur ces dernières. Le chapitre suivant sera quant à lui consacré à la définition des

p	0,7
PPI	23
d_{nom}	$1290 \pm 140 \ \mu m$
S _s	2810 m^2/m^3
C_m	11
d_b	300 ± 100
l _{int}	$1330\pm380~\mu\mathrm{m}$

TABLEAU 2.1 – Paramètres texturaux de la mousse de référence :

propriétés radiatives que nous allons étudier dans ce travail de thèse.

2.6 Références

- BARUCHEL, J., BUFFIERE, J. et MAIRE, E. (2000). *X-Rray tomography in material science*. Hermes science publications. 43
- BRUN, E. et VICENTE, J. (2010). Volumetric segmentation of trabecular bone into rods and plates : a new method based on local shape classification. *In SPIE Medical Imaging*, pages 762340–762340. International Society for Optics and Photonics. 52
- BRUN, E., VICENTE, J., TOPIN, F. et OCCELLI, R. (2008). Imorph : A 3D morphological tool to fully analyse all kind of cellular materials. *In Cellmet'08*, *Dresden, Germany*. 43
- COQUARD, R., ROUSSEAU, B., ECHEGUT, P., BAILLIS, D., GOMART, H. et IACONA, E. (2012). Investigations of the radiative properties of Al-NiP foams using tomographic images and stereoscopic micrographs. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 55(5-6):1606–1619. 43
- COULTER, J. M., BARNES, C. R. et COWLES, H. C. (1910). *A textbook of botany for colleges and universities*, volume 1. American book Company. 40, XVIII
- DILLARD, T., N'GUYEN, F., FOREST, S., BIENVENU, Y., BARTOUT, J.-D., SALVO, L., DENDIE-VEL, R., MAIRE, E., CLOETENS, P. et LANTUÉJOUL, C. (2003). In-situ observation of tensile deformation of open-cell nickel foams by means of X-ray microtomography. *In* ed.
 J. BANHART, N. F., éditeur : *International conference on cellular metals and metal foaming technology*, 23-25 juin 2003, pages 301–306, Berlin, Germany. MIT Verlag. 49
- GIBSON, L. J. et ASHBY, M. (1997). *Cellular solids, structure and properties, second edition*. Cambridge University Press. 40, 41
- LORETZ, M., MAIRE, E. et BAILLIS, D. (2008). Analytical modelling of the radiative properties of metallic foams : contribution of X-Ray Tomography. *Advanced Engineering Material*, 10(4):352–360. 43
- ROUSSEAU, B., GUÉVELOU, S., DOMINGUES, G., VICENTE, J., CALIOT, C. et FLAMANT, G. (2013). Prediction of the radiative properties of reconstructed α-sic foams used for concentrated solar applications. *In MRS Online Proceedings Library*, volume 1545. 42
- ROUSSEAU, B., ROLLAND, J.-Y., ECHEGUT, P., BRUN, E. et VICENTE, J. (2012). Numerical prediction of the radiative behavior of metallic foams from the microscopic to macroscopic scale. *In Journal of Physics : Conference Series, Eurotherm Conference No.* 95, *Nancy, France*, volume 369. IOP. 43, 54
- SHEFFLER, M. et COLOMBO, P. (2005). *Cellular Ceramics : Structure, Manufacturing, Properties and Applications*. Wiley. 42
- VICENTE, J., TOPIN, F. et DAURELLE, J.-V. (2006). Open celled material structural properties measurement : from morphology to transport properties. *Materials transactions*, 47(9): 2195–2202. 43, 49
- ZEGHONDY, B., IACONA, E. et TAINE, J. (2006). Determination of the anisotropic radiative properties of a porous material by radiative distribution function identification (RDFI). *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 49(17-18):2810–2819. 43

Chapitre 3

Caractérisation des propriétés radiatives d'un matériau cellulaire

Sommaire

3.1	Rayo	nnement thermique	58			
	3.1.1	Grandeurs énergétiques caractérisant le rayonnement thermique .	58			
	3.1.2	Corps noir et loi de Planck	60			
	3.1.3	Propriétés radiatives aux interfaces	61			
	3.1.4	Bilan d'énergie radiative au niveau d'un matériau.	64			
3.2	Prop	riétés optiques de la phase solide (n et k)	66			
	3.2.1	indice de réfraction complexe \tilde{n}	66			
	3.2.2	Réflexion spéculaire à l'interface	66			
	3.2.3	Propriétés optiques effectives d'un brin d' α – S <i>i</i> C	68			
3.3	Caractérisation de la réflectance normale-hémisphérique R_{NH} et de la					
	trans	mittance normale-hémisphérique T _{NH}	69			
	3.3.1	Définitions et terminologie	69			
	3.3.2	Mesure par spectroscopie de réflexion/transmission infrarouge	70			
3.4	Équation du transfert radiatif (ETR) et propriétés radiatives homogé-					
	néisé	es (β , α , σ , Φ)	72			
	3.4.1	Coefficient d'extinction	72			
	3.4.2	Fonction de phase de diffusion	73			
	3.4.3	Émission thermique	74			
	3.4.4	Équation du Transfert Radiatif	74			
3.5	État de l'art des méthodes de prédiction des propriétés radiatives					
	3.5.1	Introduction	76			
	3.5.2	Domaines d'application des équations de Maxwell	77			
	3.5.3	Identification des propriétés radiatives homogénéisées à partir de				
		mesures expérimentales	78			
	3.5.4	Méthodes numériques de prédiction des propriétés radiatives ho-				
		mogénéisées à partir d'images 3D	80			
	3.5.5	Méthodes numériques de prédiction de l'absorptance normale	84			
3.6	Conc	Conclusions				
3.7	Références					

Le chapitre qui s'ouvre vise à donner les bases théoriques concernant les propriétés radiatives étudiées dans ce travail de thèse. Premièrement, le rayonnement thermique ainsi que les grandeurs permettant sa quantification énergétique (flux d'énergie radiative P et luminance L) seront définis. Ensuite, l'introduction de la notion de corps noir permettra de définir les propriétés radiatives aux interfaces que sont l'émissivité e_{λ} , l'absorptivité a_{λ} (spectrales et directionnelles), la réflectivité ρ_{λ}^{\cap} et la transmissivité τ_{λ}^{\cap} (spectrales et directionnelles-hémisphériques). Le formalisme employé dans ce chapitre est tiré du chapitre du livre à paraître de Boyard [2016], lui-même basé sur les ouvrages de référence de Howell et al. [2011] et de Modest [2003]. Les liens entre les propriétés radiatives à l'interface d'un matériau et ses propriétés optiques intrinsèques, définies par la suite, pourront alors être établis, via l'étude de l'interaction entre le rayonnement et un matériau. Nous verrons que, dans le cas particulier des mousses d' α -SiC, il est nécessaire d'estimer les propriétés optiques effectives de la phase solide constituant les mousses d' α -SiC, car celles-ci sont différentes de celles du monocristal d' α -SiC. La méthode permettant leur identification à partir de mesures expérimentales réalisées sur l'échantillon de référence sera évoquée. Puis, les propriétés radiatives macroscopiques¹ (réflectance normale-hémisphérique R_{NH}, transmittance normale-hémisphérique T_{NH} et absorptance normale A_N) et le spectromètre qui permet de les acquérir seront présentés. Les propriétés radiatives volumiques homogénéisées (coefficient d'exinction β , coefficient d'absorption α , coefficient de diffusion σ et fonction de phase de diffusion Φ) caractérisant un milieu continu homogène et semi-transparent, qui feront dans la suite de ce travail l'objet de méthodes numériques d'identification, seront également introduites. L'établissement de l'équation de transfert radiatif (ETR) permettra de définir rigoureusement les contributions respectives de chacune de ces propriétés. Finalement, nous mènerons une étude bibliographique ayant pour objectif d'établir l'état de l'art des méthodes numériques de prédiction des propriétés radiatives des matériaux cellulaires. Cette dernière section permettra d'identifier les limites et les contraintes des méthodes existantes, et orientera le développement des méthodes numériques d'identification présentées en chapitre 4.

3.1 Rayonnement thermique

Le rayonnement thermique est un échange de chaleur attribué à l'émission par la matière d'ondes électromagnétiques du fait de sa température. À l'inverse de la conduction ou de la convection, ce mode de transfert thermique ne nécessite pas la présence d'un milieu matériel intermédiaire. Le rayonnement thermique ne constitue qu'une partie du spectre électromagnétique dont les longueurs d'onde sont comprises entre 0,1 μ m et 100 μ m [Modest, 2003].

3.1.1 Grandeurs énergétiques caractérisant le rayonnement thermique

Quand une onde électromagnétique se propage au travers d'un milieu et rencontre un second milieu, elle peut être réfléchie à l'interface et la partie non réfléchie va donc pénétrer dans le second milieu. L'onde sera atténuée par le second milieu, et, dans le cas d'une

^{1.} Que l'on peut mesurer à l'échelle d'un échantillon de mousse.



FIGURE 3.1 – Définition du domaine du rayonnement thermique et du spectre solaire au sein du spectre électromagnétique.

atténuation complète, l'onde sera totalement absorbée. En fonction de la nature des mécanismes microscopiques impliqués dans l'atténuation de la lumière, on peut distinguer trois classes de matériau : les milieux opaques, semi-transparents, ou transparents. Les deux premiers termes correspondent aux cas où le milieu traversé atténue partiellement ou totalement le rayonnement. Le dernier convient pour les milieux où aucune atténuation n'intervient.

Afin de quantifier ces échanges énergétiques, il convient de définir un certain nombre de grandeurs. Celles-ci dépendent de la longueur d'onde ainsi que des directions considérées, et leur définition rigoureuse nécessite l'emploi d'un vocabulaire dont le rappel est nécessaire. En ce qui concerne les longueurs d'onde considérées, les grandeurs sont dites monochromatiques ou spectrales lorsque l'on se réfère à un intervalle de longueur d'onde d λ centré autour de λ , ou bien totales lorsque tout le spectre électromagnétique est concerné. Dans la suite de ce manuscrit, les grandeurs spectrales seront signalées par un indice λ . Pour les directions considérées, nous utiliserons le vocabulaire suivant : les grandeurs seront dites directionnelles si elles sont relatives à une unité d'angle solide portée par une direction de l'espace donnée, ou bien hémisphériques si elles sont relatives à l'ensemble du demi-espace offert devant la source. Par ailleurs, les grandeurs vectorielles, telles que **u**, **n** ou encore **r**, seront écrites en gras dans la suite de ce manuscrit.

La première des grandeurs énergétiques que nous allons définir est l'énergie radiative (radiant energy), ε_e , ayant le Joule pour unité, qui correspond à l'énergie d'une onde électromagnétique donnée. Le flux radiatif (nommé *"radiant flux"* ou *"radiant power"* dans les ouvrages anglo-saxons), P , ayant pour unité le Watt, correspond à la quantité d'énergie radiative étant réfléchie, transmise ou absorbée par un milieu. Nous pouvons également définir la densité de flux radiatif, notée *p*, dont l'unité est le W/m², qui représente la quantité de flux radiatif P passant au travers d'une surface donnée S. *p* constitue une généralisation de la densité de flux de chaleur bien connue dans le domaine de la thermique. Quand *p* impacte une surface il est souvent noté irradiance et noté G dans les ouvrages. Lorsque *p* est émis depuis une surface, il peut être désigné par l'exitance ou émittance radiative. P et *p* étant à présent introduits, nous allons maintenant nous concentrer sur une grandeur radiative qui sera cruciale pour la description des transferts radiatifs : la

luminance L (nommée radiative intensity et notée I chez les anglo-saxons). La figure 3.2 présente le repère en coordonnées sphériques nécessaire à la description de l'angle solide élémentaire d Ω (porté par la direction **u**, elle-même repérée par les angles θ et ϕ par rapport à la normale **n** de la surface) dont la définition est nécessaire à l'expression de cette grandeur.



FIGURE 3.2 – Géométrie nécessaire à la description du rayonnement émis par une surface élémentaire dS.

L est définie comme étant le flux radiatif élémentaire, d^2P , émis depuis une surface élémentaire dS localisée au point **r** par l'angle solide $d\Omega$ porté par **u** :

$$L(\mathbf{r},\mathbf{u}) = \frac{d^2 P(\mathbf{r},\mathbf{u})}{\cos\theta dS d\Omega},$$
(3.1)

avec $\cos \theta = \mathbf{u} \cdot \mathbf{n}$. Exprimée en tant que grandeur spectrale, la relation précédente devient :

$$L_{\lambda}(\mathbf{r}, \mathbf{u}) = \frac{d^2 P_{\lambda}(\mathbf{r}, \mathbf{u})}{\cos\theta dS d\Omega d\lambda}.$$
(3.2)

Il apparaît que la luminance spectrale L_{λ} est une fonction de sept paramètres indépendants (trois coordonnées d'espace $\mathbf{r}(x, y, z)$, deux coordonnées angulaires $\mathbf{u}(\theta, \phi)$, une pour la longueur d'onde λ , et une dernière pour le temps *t*. L'unité pour la luminance spectrale est le W.m⁻².µ.sr⁻¹.

3.1.2 Corps noir et loi de Planck

Le corps noir est un corps idéal auquel on se réfère pour quantifier l'énergie radiative émise ou reçue par un matériau réel. À toute température, le corps noir absorbe toute radiation incidente, quelle que soit sa longueur d'onde ou son angle d'incidence. De plus, il émet la totalité de l'énergie qu'il a absorbé de manière homogène dans toutes les directions. Son absorptivité (définie plus bas) est donc égale à l'unité. En toute rigueur, il est impossible de trouver un matériau réel dont le comportement se rapproche de celui d'un corps noir. En pratique, certains matériaux présentant une absorptivité élevée (graphite, carbure de silicium, chromite de lanthane) permettent dans certaines configurations géométriques (cavité munie d'un trou) de réaliser un système s'approchant d'un corps noir. La luminance émise par un corps noir à la température T, dénotée $L^0_{\lambda}(T)$, est donc indépendante de la direction considérée. La dépendance à la température et à la longueur d'onde de $L^0_{\lambda}(T)$ est régie par la loi de Planck, établie ici pour le vide :

$$L_{\lambda}^{0}(T) = \frac{C_{1}\lambda^{-5}}{exp(\frac{C_{2}}{\lambda T}) - 1},$$
(3.3)

avec $C_1 = 2hc_0^2$, et $C_2 = \frac{hc_0}{k_b}$, *h* étant la constante de Planck (*h*=6,63.10⁻³⁴ J.s), *k_b*, la constante de Boltzmann (*k_b*=1,38.10⁻²³ J.K⁻¹) et *c*₀, la vitesse de la lumière (*c*₀ = 3.10⁸ m.s⁻¹).

La figure 3.3 représente la loi de Planck en fonction de la longueur d'onde pour les températures de 1000, 1250 et 1500 K. Les corps réels dont le comportement est proche de celui d'un corps noir idéal ne sont pas nécessairement noirs eux-même. Par exemple, le spectre d'émission solaire (voir figure 1.2) est très proche de celui d'un corps noir rayonnant à 5800 K.



FIGURE 3.3 – Évolution de la loi de Planck en fonction de la longueur d'onde pour 1000, 1250 et 1500 K.

3.1.3 Propriétés radiatives aux interfaces

Dans la section précédente, le concept de corps noir a été brièvement introduit. Un corps noir est considéré comme l'émetteur idéal, rayonnant de manière équivalente dans toutes les directions. Mais en réalité, les matériaux ne peuvent émettre de manière idéale comme le corps noir le fait. Par la suite le corps noir constituera une référence pour la description de l'émission d'une surface réelle enveloppant un matériau donné.

Émissivité spectrale directionnelle

Considérons l'énergie radiative quittant une surface élémentaire opaque dS à une température T, à une position **r**, par unité de temps *t* dans l'intervalle de longueur d'onde d λ centré autour de λ et dans l'angle solide d Ω portée par la direction **u** définie par les angles θ et ϕ (d Ω = sin θ d θ d ϕ). Par la suite, nous considérerons que la variable de température T est dépendante de la position **r**. T englobera donc la variable de position **r**.

Le flux radiatif spectral élémentaire, $d^2P_{\lambda}(\theta,\varphi,T)$ est donné par :

$$d^{2}P_{\lambda}(\theta,\phi,T)d\lambda = L_{\lambda}(\theta,\phi,T)dS\cos\theta d\Omega d\lambda.$$
(3.4)

Pour la référence du corps noir, $L^0_{\lambda}(T)$ est indépendante de (θ, φ) et :

$$d^{2}P_{\lambda}^{0}(\theta,\phi,T)d\lambda = L_{\lambda}^{0}(T)dS\cos\theta d\Omega d\lambda.$$
(3.5)

L'émissivité spectrale directionnelle $e_{\lambda}(\theta, \phi, T)$ est alors définie de la manière suivante :

$$e_{\lambda}(\theta,\phi,T) = \frac{d^2 P_{\lambda}(\theta,\phi,T) d\lambda}{d^2 P_{\lambda}^0(\theta,\phi,T) d\lambda} = \frac{L_{\lambda}(\theta,\phi,T)}{L_{\lambda}^0(T)}.$$
(3.6)

À partir de cette grandeur spectrale directionnelle, on peut par ailleurs calculer son expression totale-hémisphérique (par la suite les grandeurs totales seront signalée par un T en indice, et les grandeurs hémisphériques, par le symbole \cap en exposant) comme suit :

$$e_{\rm T}^{\cap}({\rm T}) = \frac{\int_{\cap} \int_0^{\infty} e_{\lambda}(\theta, \phi, {\rm T}) {\rm L}_{\lambda}^0({\rm T}) \, \mathrm{d}\lambda \, \mathrm{d}\Omega}{\sigma_{\rm SB} {\rm T}^4},\tag{3.7}$$

en spécifiant que :

$$\int_{\Omega} e_{\lambda}(\theta, \phi, T) \, \mathrm{d}\Omega = \int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{\pi/2} e(\theta, \phi, T) \sin\theta \, \mathrm{d}\theta \, \mathrm{d}\phi.$$
(3.8)

Absorptivité spectrale directionnelle

Supposons une source thermique émettant du rayonnement vers une surface élémentaire opaque dS dans la direction \mathbf{u}_i (définie par les angles θ_i, ϕ_i). Le flux radiatif spectral élémentaire incident d²P_{λ,i} est donné par :

$$d^{2}P_{\lambda,i}(\theta_{i},\phi_{i},T)d\lambda = L_{\lambda,i}(\theta_{i},\phi_{i},T)d\Omega_{i}dS\cos\theta_{i}d\lambda.$$
(3.9)

L'absorptivité spectrale directionnelle $a_{\lambda}(\theta_i, \phi_i, T)$ est définie comme la fraction du flux radiatif incident absorbé d²P_{λ,a} à la surface à la température T :

$$a_{\lambda}(\theta_i, \phi_i, T) = \frac{d^2 P_{\lambda,a}(\theta_i, \phi_i, T) d\lambda}{L_{\lambda,i}(\theta_i, \phi_i, T) d\Omega_i dS \cos \theta_i d\lambda}.$$
(3.10)

Si l'énergie radiative incidente provient d'un corps à la température T, on peut réécrire :
$$a_{\lambda}(\theta_{i}, \phi_{i}, T) = \frac{d^{2} P_{\lambda,a}(\theta_{i}, \phi_{i}, T) d\lambda}{L_{\lambda,b}(T) d\Omega_{i} dS \cos \theta_{i} d\lambda}.$$
(3.11)

À partir des équations 3.5 et 3.6, on peut par ailleurs écrire le flux radiatif directionnel émis dans la direction (θ_i , ϕ_i) :

$$d^{2}P_{e,\lambda}(\theta_{i},\phi_{i},T)d\lambda = e_{\lambda}(\theta_{i},\phi_{i},T)L_{\lambda}^{0}(T)d\Omega_{i}dS\cos\theta_{i}d\lambda.$$
(3.12)

La comparaison entre les équations 3.11 et 3.12 nous indique alors que, dans cette configuration (surface élémentaire dS à la température T, insérée dans une enceinte de type corps noir à la même température), l'égalité suivante est respectée pour n'importe quelle incidence (θ, ϕ) :

$$e_{\lambda}(\theta, \phi, T) = a_{\lambda}(\theta, \phi, T). \tag{3.13}$$

Cette relation est connue comme étant la première loi de Kirchhoff. Elle signifie que, lorsque les conditions de l'équilibre thermodynamique local sont respectées, les mécanismes optiques à l'échelle microscopique qui agissent sur l'absorption de la lumière au sein de la matière sont les mêmes qui agissent sur son émission. De plus, de la même manière que pour l'émissivité, l'absorptivité totale hémisphérique a_T^{\cap} peut être calculée et on montre que $e_T^{\cap} = a_T^{\cap}$.

Fonction de distribution de réflectivité bidirectionnelle BRDF

Considérons un faisceau de lumière incident sur une surface élémentaire dS caractérisé par son flux radiatif spectral incident $d^2 P_{\lambda,i}(\theta_i, \phi_i, T)$ à partir de la direction $\mathbf{u}_i(\theta_i, \phi_i)$. Une partie du flux radiatif spectral est alors réfléchie dans la direction $\mathbf{u}_r(\theta_r, \phi_r)$. La figure 3.4 propose une représentation de la géométrie utilisée.



FIGURE 3.4 – Définition de la BRDF.

L'irradiance spectrale directionnelle $dG_{\lambda}(\theta_i, \phi_i, T)$ est donnée dans cette configuration par :

$$dG_{\lambda}(\theta_{i}, \phi_{i}, T) = \frac{d^{2}P_{\lambda,i}(\theta_{i}, \phi_{i}, T)d\lambda}{dSd\lambda} = L_{\lambda,i}(\theta_{i}, \phi_{i}, T)\cos\theta_{i}d\Omega_{i}.$$
 (3.14)

 $dG_{\lambda}(\theta_i, \phi_i, T)$ correspond ici au flux radiatif spectral élémentaire impactant dS à partir de $\mathbf{u}_i(\theta_i, \phi_i)$ par unité d'angle solide $d\Omega_i$. $L_{\lambda,r}(\theta_r, \phi_r, \theta_i, \phi_i, T)$ est la luminance spectrale réfléchie dans la direction $\mathbf{u}_r(\theta_r, \phi_r)$ due à $dG_{\lambda}(\theta_i, \phi_i, T)$. La fonction de distribution de réflectivité bidirectionnelle spectrale (ou BRDF pour bidirectional reflectivity distribution function), notée ici ρ_{λ}'' , est ensuite définie de la manière suivante :

$$\rho_{\lambda}^{\prime\prime}(\theta_r, \phi_r, \theta_i, \phi_i, T) = \frac{L_{\lambda, r}(\theta_r, \phi_r, \theta_i, \phi_i, T)}{L_{\lambda, i}(\theta_i, \phi_i, T)\cos\theta_i d\Omega_i}.$$
(3.15)

 $\rho_{\lambda}''(\theta_r, \phi_r, \theta_i, \phi_i, T)$ peut prendre n'importe quelle valeur entre 0 et ∞ . et son unité est le sr⁻¹. L'utilisation de cette fonction constitue la méthode la plus exacte pour traiter un événement de réflexion sur une surface, car par définition elle fournit les répartitions statistiques directionnelles de l'énergie réfléchie pour toutes les incidences possibles. La BRDF est difficile à mesurer avec des valeurs de d Ω satisfaisantes. À partir d'une simple opération mathématique, on peut en déduire la réflectivité directionnelle-hémisphérique spectrale $\rho_{\lambda}^{\cap}(\theta_i, \phi_i, T)$:

$$\rho_{\lambda}^{\cap}(\theta_{i},\phi_{i},T) = \int_{\Omega} \rho_{\lambda}^{\prime\prime}(\theta_{r},\phi_{r},\theta_{i},\phi_{i},T)\cos\theta_{r} \,\mathrm{d}\Omega_{r}.$$
(3.16)

Fonction de distribution de transmissivité bidirectionnelle BTDF

Quand la surface n'est pas opaque, une partie du flux radiatif spectral incident $d^2 P_{\lambda,i}(\theta_i, \phi_i, T)$ à partir de la direction $\mathbf{u}_i(\theta_i, \phi_i)$ peut alors traverser la surface et être transmise dans la direction $\mathbf{u}_t(\theta_t, \phi_t)$. De la même manière que pour la BRDF spectrale on peut définir la BTDF spectrale comme suit :

$$\tau_{\lambda}^{\prime\prime}(\theta_t, \phi_t, \theta_i, \phi_i, T) = \frac{L_{\lambda,t}(\theta_t, \phi_t, \theta_i, \phi_i, T)}{L_{\lambda}(\theta_i, \phi_i, T)\cos\theta_i d\Omega_i},$$
(3.17)

à partir de laquelle il est possible, comme pour la BRDF, d'exprimer la transmissivité directionnelle-hémisphérique spectrale $\rho_{\lambda}^{\cap}(\theta_i, \phi_i, T)$:

$$\tau_{\lambda}^{\cap} a(\theta_i, \phi_i, \mathbf{T}) = \int_{\Omega} \tau_{\lambda}''(\theta_t, \phi_t, \theta_i, \phi_i, \mathbf{T}) \cos \theta_t \, \mathrm{d}\Omega_t.$$
(3.18)

3.1.4 Bilan d'énergie radiative au niveau d'un matériau.

Lorsqu'un matériau sous la forme d'une lame mince à face parallèle (voir figure 3.5) est soumis à un flux radiatif spectral élémentaire incident $d^2 P_{\lambda,i}(\theta_i, \phi_i, T)$ (équation 3.9)

de luminance $L_{\lambda,i}$ provenant d'une direction \mathbf{u}_i , dans un angle solide d Ω_i , le bilan suivant peut être écrit :

- une partie $d^2 P_{\lambda,a}$ égale à $a_{\lambda}(\theta_i, \phi_i, T) d^2 P_{\lambda,i}$ est absorbée (transformée en chaleur fournie à la matière),
- une partie $d^2 P_{\lambda,r}$ égale à $\rho_{\lambda}^{\cap}(\theta_i, \phi_i, T) d^2 P_{\lambda,i}$ est réfléchie (en partie de manière spéculaire ou diffuse),
- l'énergie restante, $d^2 P_{\lambda,t}$ égale à $\tau^{\cap}_{\lambda\lambda}(\theta_i, \varphi_i, T) d^2 P_{i,\lambda}$ est transmise.



FIGURE 3.5 – Absorption, réflexion et transmission du rayonnement sur un matériau. La réflexion spéculaire est matérialisée en rouge, la réflexion diffuse en jaune, et la transmission en bleu.

Les propriétés $a_{\lambda}(\theta_i, \phi_i, T)$, $\rho_{\lambda}^{\cap}(\theta_i, \phi_i, T)$ et $\tau_{\lambda}^{\cap}(\theta_i, \phi_i, T)$ d'un matériau dépendent de sa nature chimique, de son état de surface, de sa température, et enfin de la longueur d'onde et de la direction du rayonnement incident. À l'équilibre thermodynamique local, le bilan énergétique établi le long d'une direction de l'espace permet d'écrire que :

$$a_{\lambda}(\theta_i, \phi_i, \mathbf{T}) + \rho_{\lambda}^{\cap}(\theta_i, \phi_i, \mathbf{T}) + \tau_{\lambda}^{\cap}(\theta_i, \phi_i, \mathbf{T}) = 1.$$
(3.19)

Pour une surface opaque, $\tau_{\lambda}^{\cap}(\theta_i, \phi_i, T)$ est nulle, et l'on peut écrire une relation pratique pour la détermination de l'absorptivité spectrale directionnelle [Modest, 2003] :

$$a_{\lambda}(\theta_i, \phi_i, \mathbf{T}) = 1 - \rho_{\lambda}^{\cap}(\theta_i, \phi_i, \mathbf{T}).$$
(3.20)

En appliquant la première loi de Kirchhoff, on peut aboutir à une seconde loi de Kirchhoff dite étendue Rousseau [2001]; Rozenbaum [1999] qui s'écrit :

$$e_{\lambda}(\theta_i, \phi_i, \mathbf{T}) = 1 - \rho_{\lambda}^{\prime \cap}(\theta_i, \phi_i, \mathbf{T}).$$
(3.21)

Dans la suite de ce manuscrit, nous étendrons ces relations aux grandeurs mesurables que sont l'émittance normale E_N , l'absorptance normale-hémisphérique A_N et la réflectance normale-hémisphérique R_{NH} , qui seront introduites en section 3.3.

3.2 Propriétés optiques de la phase solide (*n* et *k*)

Nous venons de voir que dans le cas d'un matériau opaque, le comportement radiatif de celui-ci dépend essentiellement de $\rho_{\lambda}^{\cap}(\theta_i, \phi_i, T)$ (voir équation 3.20). Nous allons voir dans cette section que ρ_{λ}^{\cap} est lié aux propriétés optiques caractérisant les milieux de part et d'autre de l'interface, et plus précisément à leurs indices de réfraction complexe \tilde{n} . Nous débuterons donc le paragraphe suivant en définissant cette notion.

3.2.1 indice de réfraction complexe \tilde{n}

L'indice de réfraction complexe \tilde{n} , qui caractérise la propagation d'une onde lumineuse dans un milieu, est exprimé comme suit :

$$\tilde{n} = n + ik. \tag{3.22}$$

La partie réelle *n* est l'indice de réfraction du milieu considéré. *n* est une grandeur sans dimension caractérisant la vitesse de propagation *c* de la lumière en son sein. Il est égal au rapport entre la vitesse de propagation de l'onde dans le vide c_0 et celle relative au matériau :

$$n = \frac{c}{c_0}.$$
(3.23)

La partie imaginaire k représente l'indice d'absorption et correspond à l'atténuation d'une onde électromagnétique dans un milieu absorbant. k permet de remonter au coefficient d'absorption volumique α (défini en section 3.4) via la relation $\alpha = 4\pi k/\lambda$. L'indice de réfraction complexe est intimement lié à la réponse du matériau diélectrique au champ électrique de l'onde incidente. Un court rappel théorique des notions de base d'électromagnétisme permettant d'établir le lien entre \tilde{n} et la fonction diélectrique du matériau à partir des équations de Maxwell est fourni en annexe A. \tilde{n} intervient également dans le calcul de la réflectivité caractérisant l'interface avec la phase solide. Les indices optiques n et k sont dépendants de la nature du matériau, de la longueur d'onde considérée, ainsi que de la température.

3.2.2 Réflexion spéculaire à l'interface

Lors de l'interaction d'une onde électromagnétique avec un milieu solide homogène, la réflectivité ρ et la transmissivité τ de celui-ci peuvent être calculées en écrivant les relations de continuité du champ électromagnétique à l'interface de l'échantillon qui mènent aux lois de Snell-Descartes. Ce calcul ne sera pas développé ici mais peut être retrouvé dans les ouvrages de référence [Born et Wolf, 1999; Howell *et al.*, 2011; Modest, 2003]. Néanmoins, il est important de détailler le calcul de ρ_{λ} dans notre cas. Compte tenu des investigations que nous souhaitons mener, il est préférable d'utiliser la loi de Snell généralisée [Bohren et Huffman, 2008; Born et Wolf, 1999; Rousseau *et al.*, 2007b], qui permet de prendre en compte des indices de réfraction complexes. Nous considérons ici une onde incidente plane harmonique se propageant à partir d'un milieu 1, caractérisé par un indice de réfraction complexe \tilde{n}_1 , vers un milieu 2, caractérisé par un indice de réfraction complexe \tilde{n}_2 , avec un angle d'incidence θ_i (voir figure 3.5). La relation suivante peut être écrite :

$$\sin\tilde{\theta}_{ref} = \frac{\sin\theta_i}{\tilde{m}},\tag{3.24}$$

dans laquelle \tilde{m} est le paramètre optique défini par le rapport entre les deux indices de réfraction complexe ($\tilde{m} = \tilde{n}_1/\tilde{n}_2$). $\tilde{\theta}_{ref}$ est un angle complexe, ce qui signifie que l'onde réfractée est traitée dans le cas général, comme une onde inhomogène [Bohren et Huffman, 2008; Born et Wolf, 1999; Rousseau *et al.*, 2007b]. En d'autres termes, les surfaces d'amplitudes constantes ne coïncident pas avec les surfaces de phases constantes. Les plans d'amplitudes constantes sont perpendiculaires à l'interface séparant les deux milieux, tandis que les plans de phases constantes sont à la normale de la direction de propagation des ondes réfractées. Ensuite, selon l'ouvrage de Born et Wolf [1999], nous pouvons calculer l'angle θ'_r entre la normale de la surface de phase constante et la normale de l'interface entre les deux milieux via la relation suivante :

$$\sin\theta'_r = \frac{\sin\theta_i}{\sqrt{\sin^2\theta_i + q^2 \times (\Re(\tilde{m})\cos\gamma - \Im(\tilde{m})\sin\gamma)^2}},$$
(3.25)

dont la forme correspond à celle de la loi de Snell classique. \Re et \Im sont respectivement les parties réelles et imaginaires du complexe \tilde{m} . Ici, q et γ sont explicités comme suit :

$$q = \left| \sqrt{\left(1 - \left(\frac{\sin(\theta_i)}{\tilde{m}} \right)^2 \right)} \right|, \tag{3.26}$$

$$\gamma = \arg\left(\sqrt{\left(1 - \left(\frac{\sin(\theta_i)}{\tilde{m}}\right)^2\right)}\right). \tag{3.27}$$

Les angles de réfraction calculés via ces équations sont similaires à ceux calculés via la loi de Snell classique [Rousseau *et al.*, 2007b]. Enfin, il est possible de calculer les composantes parallèle et perpendiculaire de la réflectivité ($\rho_{\lambda/\!/}$ et $\rho_{\lambda\perp}$) avec les relations suivantes :

$$\rho_{\lambda/\!\!/} = \left| \frac{\cos \theta_i - \tilde{m} \cos \tilde{\theta}_{ref}}{\cos \theta_i + \tilde{m} \cos \tilde{\theta}_{ref}} \right|^2, \tag{3.28}$$

$$\rho_{\lambda\perp} = \left| \frac{\cos \tilde{\theta}_{ref} - \tilde{m} \cos \theta_i}{\cos \tilde{\theta}_{ref} + \tilde{m} \cos \theta_i} \right|^2.$$
(3.29)

Finalement, la réflectivité dans le cas d'une lumière non polarisée s'écrit :

$$\rho_{\lambda} = \frac{1}{2} \left[\rho_{\lambda / /} + \rho_{\lambda \perp} \right]. \tag{3.30}$$

3.2.3 Propriétés optiques effectives d'un brin d' α – S*i*C

Via la définition des interactions entre le rayonnement et la matière, le lien entre les propriétés radiatives macroscopiques et les propriétés optiques intrinsèques de la matière a été établi. La connaissance de l'indice de réfraction complexe \tilde{n} est donc essentielle pour le développement de modèles numériques permettant la prédiction des propriétés radiatives des mousses. Dans le cas de mousses d' α -SiC, l'état de surface et la texture à l'échelle microscopique des brins constituant la mousse (voir section 3.6) ne permettent pas l'utilisation directe des propriétés optiques intrinsèques (\tilde{n}) de l' α -SiC sous sa forme monocristalline. Une étude approfondie de l'état de surface des brins a donc été menée via l'acquisition d'images stéréoscopiques (voir figure 3.6) grâce à un microscope électronique à balayage.



FIGURE 3.6 – Images obtenues par microscopie par balayage électronique (MEB).

Celles-ci révèlent que les brins sont constitués d'un agglomérat de grains d'a-SiC dont les tailles sont dispersées. Leurs orientations sont pseudo-aléatoires. L'agglomération de ces grains procure de fait une rugosité de surface. L'acquisition d'images stéréoscopiques permet, via des algorithmes de reconstruction, d'obtenir le relief précis des surfaces sondées. La rugosité de surface, si celle-ci est approchée comme une surface gaussienne aléatoire, est caractérisée par un une rugosité quadratique moyenne σ_{RMS} de 2,3 µm, ainsi qu'une longueur de corrélation de 22 µm. Cette rugosité, bien inférieure à la résolution voxélique n'est par conséquent pas reproduite par la reconstruction 3D de l'interface de la mousse (voir section 4.1.1). Il existe dans la littérature des travaux [Coquard et al., 2012; Rousseau et al., 2011b], dans lesquels la caractérisation des propriétés radiatives tient compte de ce type de rugosité de surface à l'échelle micrométrique. Dans notre cas, la prise en compte de l'état de surface des brins est accomplie via l'estimation de propriétés optiques *n* et *k* effectives d'un brin d' α -SiC. Cette étape requiert l'utilisation d'une méthode d'identification. Celle-ci consiste à caractériser expérimentalement de manière représentative la réflectivité normale-normale R_{NN} de brins issus de la mousse d'α-SiC. Ensuite, un modèle amélioré de Drude-Lorentz est utilisé pour reproduire la fonction diélectrique, ce qui permet de remonter à une valeur de réflectivité théorique. L'inversion de ce modèle par rapport à la réflectivité normale-normale R_{NN} obtenue expérimentalement permet d'identifier les propriétés optiques effectives n et k. Cette méthode d'identification ne constituant pas le cœur de ce travail, celle-ci est présentée en détails en annexe Β.

3.3 Caractérisation de la réflectance normale-hémisphérique R_{NH} et de la transmittance normale-hémisphérique T_{NH}

3.3.1 Définitions et terminologie

Nous présentons dans cette section les grandeurs spectrales qui permettent de caractériser le comportement radiatif des mousses à l'échelle macroscopique et qui peuvent être mesurées expérimentalement. Ces grandeurs sont analogues aux absorptivités, réflectivités et transmissivités définies en section 3.1. Cependant, nous utiliserons une terminologie spéciale qu'il est nécessaire de définir dans le cadre des mousses. Comme nous l'avons vu, la surface d'un matériau exposée au rayonnement possède des propriétés d'émissivité, d'absorptivité, de réflectivité et de transmissivité dépendantes de la longueur d'onde et de la direction du rayonnement. En pratique, cette terminaison -ivité est utilisée dans de nombreux domaines de la physique pour désigner des grandeurs intensives (grandeur indépendante de la quantité, masse ou volume, de matériau considéré). La terminaison -ance est quant à elle réservée aux grandeurs extensives (grandeur dépendante de la quantité, masse ou volume, de matériau considéré). L'usage de ce type de nomenclature est discuté dans l'ouvrage de référence de Howell *et al.* [2011]. L'ouvrage de Modest [2003], réserve quant à lui la terminaison -ivité pour les surfaces pures et parfaitement lisses et -ance pour les surfaces présentant des impuretés et/ou rugueuses.

Comme nous nous situons dans un cas comme dans l'autre plus proche de l'usage de la terminaison -ance telle que définie par ces auteurs (les phénomènes d'émission, d'absorption, de réflexion et de transmission ayant lieu au sein d'une mousse dépendent de la répartition de l'interface, par ailleurs rugueuse, de la matrice solide au sein du volume de mousse considéré), nous utiliserons cette dernière. Une éventuelle confusion avec le sens de l'usage de la terminaison -ance utilisée pour les grandeurs énergétiques (définies en section 3.1.1) doit dans ce cas être évitée. Dans le cadre de ce travail, nous définissons donc les propriétés suivantes, qui seront celles du volume de l'échantillon de mousse caractérisé (et non de l'une des interfaces de l'échantillon) :

- la réflectance normale-hémisphérique spectrale, notée R_{NH}, est définie comme étant la quantité d'énergie réfléchie dans tous les angles solides divisée par l'énergie incidente venant de la direction normale,
- la transmittance normale-hémisphérique spectrale, $T_{\rm NH}$, est définie comme étant la quantité d'énergie transmise dans tous les angles solides divisée par l'énergie incidente venant de la direction normale,
- l'absorptance normale spectrale, A_N, représente la quantité d'énergie absorbée par l'échantillon, divisée par la l'énergie incidente venant de la direction normale.

L'absorptance normale spectrale ne peut être mesurée directement, mais est indirectement déduite des mesures de $R_{\rm NH}$ et $T_{\rm NH}$, via la relation de conservation de l'énergie incidente (équation 3.19) que l'on peut étendre à ces grandeurs macroscopiques. Ainsi, nous pouvons écrire :

$$A_{\rm N} = 1 - R_{\rm NH} - T_{\rm NH}.$$
 (3.31)

Cette généralisation est notamment exposée dans les travaux de thèse de Rozenbaum [1999] et de Rousseau [2001]. Dans la suite de ce manuscrit, le terme "spectrale" sera omis et sous-entendu par souci de commodité.

3.3.2 Mesure par spectroscopie de réflexion/transmission infrarouge

La spectrométrie infrarouge permet la mesure de la réflectance normale-hémisphérique $R_{\rm NH}$ ainsi que de la transmittance normale-hémisphérique $T_{\rm NH}$ sur des échantillons réels de mousse de SiC. Le spectromètre que nous utiliserons dans ce travail de thèse est un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) Vertex-80 v de Bruker Optics, dont une vue CAO est donnée par la figure 3.7.



FIGURE 3.7 – Spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) Vertex-80 v (Bruker Optics).

Ce spectromètre est par ailleurs présenté en détails dans les travaux de thèse de Hakoume [2015]; Hakoume *et al.* [2014]. L'utilisation dans le compartiment du détecteur à deux sphères intégrantes permet la mesure successive de T_{NH} et R_{NH} . La configuration de la sphère intégrante, et notamment la position de l'échantillon n'est pas la même dans les deux cas. La figure 3.8 rappelle à la fois le principe de base d'une sphère intégrante, ainsi que les deux configurations en transmittance et réflectance.

La sphère intégrante joue dans les deux cas un rôle de "concentrateur" : le rayonnement parvenant à s'extraire du matériau dans toutes les directions subit de multiples réflexions pour finalement être capté par le récepteur *in fine*. Le revêtement composant la sphère présente une très bonne réflectivité et permet ainsi au détecteur de capter l'intensité du flux radiatif total sortant. La mesure de la transmittance normale-hémisphérique T_{NH} est faite en plaçant l'échantillon à l'endroit ou le faisceau pénètre dans la sphère (Fig. 3.8, (a)). L'échantillon est maintenu par un porte échantillon en téflon. Le flux radiatif parvenant à l'intérieur de la sphère correspond donc au flux total transmis au travers de l'échantillon. Ensuite, le faisceau transmis frappe un miroir placé au centre de la sphère intégrante qui le redirige vers un diffuseur. Celui-ci permet de répartir le rayonnement



FIGURE 3.8 – Mesure de T_{NH} et R_{NH} par sphère intégrante : (a) configuration pour la mesure de T_{NH} , (b) configuration pour la mesure de R_{NH} .

transmis (qui peut être encore très collimaté, notamment dans le cas de matériaux peu diffusant) dans toute la sphère afin que celle-ci puisse efficacement le transférer au détecteur. L'orientation du miroir peut également être modifiée afin de renvoyer la partie du faisceau transmis qui l'impacte directement vers le détecteur. Cette possibilité permet de mesurer T_{NN} , la transmittance normale-normale.

La réflectance normale-hémisphérique $R_{\rm NH}$ est mesurée selon une configuration différente (Fig. 3.8, (b)) : cette fois-ci, le faisceau incident pénètre librement dans la sphère, frappe le miroir, et c'est l'échantillon lui-même qui joue le rôle de diffuseur. De même que pour la mesure de $T_{\rm NN}$, le faisceau réfléchi peut être directement dirigé vers le détecteur afin de mesurer $R_{\rm NN}$, la réflectance normale normale.

Le spectromètre permet de couvrir la gamme de longueur d'onde du rayonnement thermique $\lambda \in [0, 4 - 100 \ \mu\text{m}]$ [Modest, 2003]. Dans notre cas, nous pouvons couvrir l'intervalle de nombre d'onde, $\omega \in [25000 - 100 \ \text{cm}^{-1}]$ en deux temps :

- − la gamme de l'infrarouge proche (NIR) : on utilise alors pour source une lampe à filament de tungstène, une sphère intégrante en téflon (le miroir central est en aluminium), ainsi qu'un détecteur dont la gamme spectrale est adaptée (de type Si-Diode, 2,4 × 2,4 mm λ ∈ [0,4-1 μm], ω ∈ [25000-9500 cm⁻¹]),
- − la gamme de l'infrarouge moyen (MIR) : la source est dans ce cas une lampe globar haute puissance, la sphère est en or plaqué (le miroir central est également en or) et le détecteur est un MCT avec une fenêtre de ZnSe (λ ∈ [1-16 µm], ω ∈ [10000-600 cm⁻¹]),
- − la gamme de l'infrarouge lointain (FIR) : une lampe à vapeur de mercure couplé à un détecteur pyroélectrique ($\lambda \in [16-100 \ \mu m]$, $\omega \in [600-100 \ cm^{-1}]$).

Le faisceau incident produit par les lampes sur l'échantillon est une source quasicollimatée. L'échantillon est placé au point focal du faisceau très légèrement convergent. La taille de la zone éclairée (ou tache) sur l'échantillon, dont le diamètre peut aller de 0.25 à 8 mm, est contrôlée par l'ouverture choisie. Les gammes de longueurs d'onde pouvant être étudiées par les sphères intégrantes correspondent à celles où le matériau qui les constitue (téflon ou or) présente une bonne réflectivité. Ainsi, les sphères remplissent au mieux leur rôle de concentrateur.

3.4 Équation du transfert radiatif (ETR) et propriétés radiatives homogénéisées (β,α,σ,Φ)

Les milieux poreux tels que les mousses peuvent être également vus d'un point de vue radiatif comme des milieux homogènes semi-transparents, pour un régime de diffusion indépendente [Sacadura, 2011] (notion définie en section 3.5). Cette section a pour but, en établissant l'Équation de Transfert Radiatif (ETR) pour un milieu homogénéisé, d'introduire les mécanismes d'absorption, d'émission et de diffusion et de définir les propriétés radiatives volumétriques du milieu homogène correspondantes. L'équation de transfert radiatif, dont on peut trouver des descriptions complètes dans les ouvrages de référence [Howell et al., 2011; Modest, 2003], décrit le transfert de chaleur par rayonnement dans les milieux absorbant, émettant, et diffusant. Elle fut initialement développée dans le domaine de l'astrophysique par Chandrasekhar [1960]. L'étude d'objets célestes lointains, impossible in situ, nécessite en effet la modélisation des propriétés d'émission de ces objets, ainsi que le transport du rayonnement au travers des milieux qu'il rencontre sur le trajet entre son lieu d'émission et l'observateur. Elle est également utilisée pour calculer les rendements de conversion solaire-chaleur dans le domaine de l'énergie solaire concentrée [Mey et al., 2014]. L'ETR se présente comme une équation de transport de la luminance, grandeur définie plus tôt en section 3.1.1.

3.4.1 Coefficient d'extinction

Considérons à présent l'énergie associée à la luminance L_{λ} incidente (dans la direction **u**) sur un élément de volume élémentaire dV d'un milieu participant. Par souci de clarté, dV est orienté le long de la direction **u** qui porte la luminance incidente. La position de dV est repérée par l'abscisse curviligne *s*, portée par **u**. Enfin, la longueur de dV est égale à d*s*. La figure 3.9 décrit cette configuration :



FIGURE 3.9 – Description de l'élément de volume dV.

Dans la suite de ce chapitre, nous raisonnerons donc avec l'abscisse curviligne s ($s = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$), plus adaptée pour traiter de l'évolution de la luminance au sein du volume dV dans lequel ds = cdt.

Lorsque le rayonnement va traverser dV, une fraction de l'énergie radiative va être perdue via des phénomènes d'absorption et de diffusion. Cette perte dénotée ici dL_{λ} peut être exprimée grâce à la définition d'une constante proportionnelle appelée coefficient d'extinction :

$$dL_{\lambda}(s+ds,\mathbf{u},t) = -\beta_{\lambda}L_{\lambda}(s,\mathbf{u},t)ds.$$
(3.32)

Le coefficient d'extinction est une propriété physique du milieu qui inclut les pertes liées à la fois aux phénomènes d'absorption et de diffusion. Son inverse $l_e = 1/\beta_{\lambda}$ correspond au libre parcours moyen d'extinction. L'unité de β_{λ} est donc l'inverse d'une longueur. L'extinction dans le milieu est due à l'absorption intrinsèque de celui-ci, mais également à la diffusion du rayonnement dans une direction **u**' différentes. Le coefficient d'extinction est donc constitué par la somme de deux coefficients (dits linéaires ou volumétriques) caractérisant les propriétés d'absorption et de diffusion du milieu. Ceux-ci sont appelés coefficients d'absorption α_{λ} et de diffusion σ_{λ} :

$$\beta_{\lambda} = \alpha_{\lambda} + \sigma_{\lambda}. \tag{3.33}$$

De la même manière, des libres parcours moyens d'absorption $(l_a = 1/\alpha_\lambda)$ et de diffusion $(l_d = 1/\sigma_\lambda)$ peuvent être définis.

La luminance associée à un faisceau collimaté dans une direction donnée (entre l'abscisse curviligne 0 et *s*) va suivre la loi de décroissance (que l'on peut aisément obtenir par intégration de l'équation 3.32) suivante, dans le cas où β_{λ} est constant entre 0 et *s* :

$$L_{\lambda}(s, \mathbf{u}, t) = L_{\lambda}(0, \mathbf{u}, t) \exp(-\beta_{\lambda} s).$$
(3.34)

Cette loi de décroissance est la loi de Beer-Lambert, déjà introduite en chapitre 1 (équation 1.1).

L'importance de la diffusion dans un milieu est caractérisée par son albédo $\omega_{d,\lambda}$, égale au rapport entre les coefficients de diffusion et d'extinction :

$$\omega_{d,\lambda} = \frac{\sigma_{\lambda}}{\beta_{\lambda}} = \frac{\sigma_{\lambda}}{\alpha_{\lambda} + \sigma_{\lambda}}.$$
(3.35)

Un albédo nul signifie par conséquent un milieu purement absorbant; s'il est égal à 1, le milieu est à l'inverse purement diffusant.

3.4.2 Fonction de phase de diffusion

Aux pertes d'énergie radiative par diffusion du rayonnement s'ajoute un gain par le biais d'un rayonnement provenant d'une direction \mathbf{u}' , qui renforce le flux radiatif dans la direction \mathbf{u} . Ce processus est décrit par la fonction de phase de diffusion $\Phi_{\lambda}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, \mathbf{u}')$, autre propriété radiative du milieu. Ce gain par diffusion entre *s* et *s* + d*s* s'écrit :

$$dL_{\lambda}(s+ds,\mathbf{u},t) = \frac{\sigma_{\lambda}}{4\pi} \int_{4\pi} \Phi_{\lambda}(s,\mathbf{u},\mathbf{u}') L_{\lambda}(s,\mathbf{u}',t) d\Omega' ds.$$
(3.36)

Le milieu étant supposé homogène, par la suite nous considérerons que la fonction de phase ne dépend pas de **r**. Il est possible (si l'on considère des particules diffusantes présentant une symétrie) de ramener la dépendance de Φ_{λ} aux directions **u** et **u**' à une dépendance plus simple au cosinus de l'angle μ_s résultat du produit scalaire entre ces deux directions ($\Phi_{\lambda}(\mathbf{u}, \mathbf{u}') = \Phi_{\lambda}(cos(\mu_s))$.

Nous normaliserons cette fonction de phase de la manière suivante :

$$\frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} \Phi_{\lambda}(\mathbf{u}, \mathbf{u}') \, \mathrm{d}\Omega' = 1. \tag{3.37}$$

Si le milieu diffuse le rayonnement de manière isotrope, la fonction de phase correspondante est une constante. Très peu de diffuseurs simples (particule diffusante isolée) présentent ce caractère isotrope. Cependant, dans la majorité des systèmes multidiffusants (systèmes présentant de nombreuses particules diffusantes), cette hypothèse est valide, ce qui permet de simplifier grandement les calculs [Howell *et al.*, 2011].

3.4.3 Émission thermique

Au sein du volume élémentaire dV, une certaine quantité d'énergie radiative peut être émise par le milieu dans la direction **u**. Celle-ci, dépendante de la taille du volume élémentaire (ramenée ici à sa longueur d*s*) peut être exprimée de la manière suivante :

$$dL_{\lambda}(s+ds,\mathbf{u},t) = \eta_{\lambda}ds, \qquad (3.38)$$

dans laquelle η_{λ} représente le coefficient d'émission monochromatique. Si le milieu est à l'équilibre thermodynamique local (ETL, lorsque le milieu est localement proche de l'équilibre thermique et mécanique), le flux émis est égal au flux absorbé, et la luminance en tout point est égale à la luminance d'équilibre $n^2 L^0_{\lambda}(T)$ à la température locale, avec n l'indice de réfraction du milieu et $L^0_{\lambda}(T)$ la loi de Planck. La relation suivante est donc vérifiée [Chandrasekhar, 1960] :

$$\eta_{\lambda} = \alpha_{\lambda} n^2 \mathcal{L}_{\lambda}^{0}(\mathbf{T}). \tag{3.39}$$

3.4.4 Équation du Transfert Radiatif

L'ETR peut être établie en écrivant la conservation de l'énergie radiative dans l'élément de volume élémentaire dV orienté le long de la direction **u** (cf Fig. 3.9). Écrire cette conservation revient à faire le bilan des différentes contributions décrites précédemment sur l'élément de volume :

Variation de l'énergie radiative = Gains par émission - Pertes par absorption - Pertes par diffusion en dehors de la direction \mathbf{u} + Gain par diffusion venant de toutes les directions \mathbf{u}' vers la direction \mathbf{u} .

En terme de densité d'énergie directionnelle $u_{\lambda}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)$ ($u_{\lambda}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t) = L_{\lambda}(\mathbf{r}, \mathbf{u}, t)/c$), le bilan d'énergie sur l'élément de volume dV s'écrit :

$$u_{\lambda}(s + cdt, \mathbf{u}, t + dt)d\mathbf{V} = u_{\lambda}(s, \mathbf{u}, t)d\mathbf{V}$$

$$- (\alpha_{\lambda} + \sigma_{\lambda}) u_{\lambda}(s, \mathbf{u}, t) dV c dt + \alpha_{\lambda} n^{2} \frac{L_{\lambda}^{0}(T)}{c} dV c dt \qquad (3.40)$$
$$+ \frac{\sigma_{\lambda}}{4\pi} \int_{4\pi} \Phi_{\lambda}(\mathbf{u}, \mathbf{u}') u_{\lambda}(s, \mathbf{u}', t) d\Omega' dV c dt,$$

en considérant que ds = cdT le long de la direction.

En réorganisant les termes de l'équation, nous pouvons écrire :

$$\frac{L_{\lambda}(s+cdt,\mathbf{u},t+dt) - L_{\lambda}(s,\mathbf{u},t)}{cdt} = -(\alpha_{\lambda} + \sigma_{\lambda})L_{\lambda}(s,\mathbf{u},t) + \alpha_{\lambda}n^{2}L_{\lambda}^{0}(T)$$

$$\frac{\sigma_{\lambda}}{4\pi}\int_{4\pi} \Phi_{\lambda}(\mathbf{u},\mathbf{u}')L_{\lambda}(s,\mathbf{u}',t) d\Omega'.$$
(3.41)

Si nous nous plaçons maintenant dans le cas où d*t* tend vers 0, le membre de gauche correspond à la dérivée totale de la luminance :

$$\frac{1}{c}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}L_{\lambda}(s,\mathbf{u},t) = \frac{1}{c}\frac{\partial L_{\lambda}(s,\mathbf{u},t)}{\partial t} + \frac{\partial L_{\lambda}(s,\mathbf{u},t)}{\partial s} = \frac{1}{c}\frac{\partial L_{\lambda}(s,\mathbf{u},t)}{\partial t} + \mathbf{u}\cdot\nabla, \quad (3.42)$$

avec ∇ l'opérateur gradient par rapport à la variable de position **r**. Enfin, l'équation de transfert radiatif peut être établie :

$$\frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}L_{\lambda}(\mathbf{r},\mathbf{u},t) + \mathbf{u}\cdot\nabla L_{\lambda}(\mathbf{r},\mathbf{u},t) = -(\alpha_{\lambda}+\sigma_{\lambda})L_{\lambda}(\mathbf{r},\mathbf{u},t) + \alpha_{\lambda}n^{2}L_{\lambda}^{0}(T) + \frac{\sigma_{\lambda}}{4\pi}\int_{4\pi}\Phi_{\lambda}(\mathbf{u},\mathbf{u}')L_{\lambda}(\mathbf{r},\mathbf{u}',t) \,\mathrm{d}\Omega'.$$
(3.43)

L'équation de transfert radiatif constitue le modèle de référence pour la description de la propagation du rayonnement. Malgré le fait qu'elle soit particulièrement difficile à résoudre (équation intégro-différentielle de dimension 6, et dont les solutions analytiques sont limitées à des cas simples, tels que les géométries 1D ou 2D, ou les fonctions de phase simples), les méthodes numériques de résolution de l'ETR ont fortement progressé. Dans les travaux de thèse de Dubot [2015] (co-tutelle entre l'École de Technologie Supérieure de Montréal, et l'Université de Nantes), qui traitent de l'inversion de l'ETR pour la tomographie optique, il est possible de trouver un inventaire des nombreuses méthodes de résolution proposées dans la littérature, que nous pouvons rappeler ici :

- Méthode des Ordonnées Discrètes (MOD) [Chandrasekhar, 1960; Modest, 2003],
- Harmoniques sphériques [Jeans, 1917; Modest, 2003],
- Monte Carlo [Hammersley et Handscomb, 1964; Howell, 1998, 1968],
- Ray tracing [Christiansen, 1883; Li *et al.*, 1997; Tan *et al.*, 2004],

- Volumes Finis [Chai et al., 1994; Raithby et Chui, 1990],
- Éléments finis [Razzaque et al., 1984, 1983],
- Éléments finis basés sur des volumes de contrôle [Rousse, 2000; Rousse et al., 2000].

3.5 État de l'art des méthodes de prédiction des propriétés radiatives

3.5.1 Introduction

Les méthodes de mesure et d'identification existantes permettant l'obtention des propriétés radiatives de matériaux réels sont souvent indirectes, et peuvent être également limitées lorsque l'on veut connaître l'influence de leur texture sur leurs propriétés radiatives. La littérature concernant leur prédiction via des méthodes numériques est par conséquent abondante.

L'approche la plus commune consiste à assimiler le milieu poreux par une phase homogène continue équivalente à l'addition des phases fluide et solide. Comme nous venons de le voir, le transfert radiatif au sein de cette phase homogénéisée semi-transparente peut alors être résolu par l'équation de transfert radiatif définie en section 3.4. Les propriétés radiatives de la phase ainsi homogénéisée correspondante sont alors dites homogénéisées ou effectives. Si les dimensions des systèmes étudiés sont relativement grandes, à la fois devant les dimensions des hétérogénéités et devant les longueurs d'onde considérées, le principe de conservation de l'énergie peut alors être utilisé pour établir l'ETR classique. L'ETR, utilisée avec les propriétés radiatives homogénéisées (le coefficient d'extinction β , le coefficient d'absorption α , le coefficient de diffusion σ , et la fonction de phase de diffusion Φ) correspondantes, permet alors de modéliser les comportements radiatifs d'un matériau cellulaire.

Les méthodes numériques pour la résolution de l'ETR sont nombreuses (voir section 3.4) et ont fortement progressé. L'un des principaux challenges consiste donc aujourd'hui à estimer de manière fiable les propriétés radiatives homogénéisées des mousses et notamment les liens qui les unissent à leurs textures. De ce fait, de nombreuses approches ont été exposées dans la littérature. Les revues de Viskanta et Mengüç [1989], Baillis et Sacadura [2000], Sacadura et Baillis [2002], Dombrovsky *et al.* [2011], et enfin Baillis *et al.* [2013], ainsi que l'ouvrage de Dombrovsky et Baillis [2010] donnent une vue d'ensemble de cette littérature et serviront de base dans cette section pour dresser une synthèse des approches expérimentales et des modèles théoriques utilisés pour déterminer les propriétés radiatives des mousses.

Cet état de l'art va tout d'abord définir les hypothèses simplificatrices des équations de Maxwell que l'on peut appliquer pour les géométries de type mousse qui nous intéressent. Une fois ce cadre théorique fixé, une revue des diverses approches existantes permettant l'obtention des propriétés radiatives homogénéisées sera effectuée. Nous traiterons d'abord des méthodes d'identification à partir de mesures spectroscopiques expérimentales et nous discuterons des limites qu'elles présentent. Ensuite, l'inventaire des méthodes numériques de prédiction des propriétés radiatives homogénéisées à partir de leur texture sera fait.

Nous verrons que les différentes approches existantes peuvent être regroupées en plusieurs catégories, en fonction de la manière de représenter leur géométrie : méthodes analytiques sur des modèles de cellules idéalisées, utilisation de méthodes de Monte Carlo sur des microstructures réelles obtenues par μ -tomographie ou des matériaux numériquement générés. Nous ferons ressortir de chacune de ces familles les avantages et inconvénients qu'elles présentent. Cette étude permettra finalement d'orienter le choix des méthodes à développer dans ce travail de thèse.

3.5.2 Domaines d'application des équations de Maxwell

Une mousse peut être visualisée comme une dispersion de particules individuelles de tailles et de formes plus ou moins complexes, arrangées entre elles. Il est donc nécessaire de savoir comment celles-ci interagissent avec le rayonnement incident, via l'application des équations de Maxwell pour une onde plane monochromatique incidente sur une particule de taille et de forme donnée. La théorie de Mie (développée plus en détail notamment dans les ouvrages de référence traitant de la diffusion électromagnétique : Bohren et Huffman [2008], Brewster [1992], Hulst et Van De Hulst [1957]) propose les solutions particulières des équations de Maxwell pour des sphères, des cylindres et des sphéroïdes. Les phénomènes d'émission, d'absorption et de diffusion liés à la particule sont alors caractérisés par des efficacités d'extinction, de diffusion et d'absorption (respectivement Q_e, Q_s et Q_a). Des domaines "géométriques", définis à la fois par la taille caractéristique de la particule d, la longueur d'onde d'intérêt λ (réunis dans le paramètre de taille, dénoté x par la suite : $x = \pi d/\lambda$, ainsi que les constantes optiques du matériau (indice de réfraction complexe $\tilde{n} = n + ik$) permettent toutefois l'utilisation de résultats analytiques bien plus simples que les solutions exactes de Mie. Notons qu'avec la connaissance de la texture des mousses offerte par le logiciel iMorph, la valeur du paramètre de taille est facilement accessible. La définition de ces domaines permettra de fournir un repère pour le choix des approches développées dans le cadre de ce travail. Plusieurs cas sont donc à distinguer :

- -x < 1 et $x|\tilde{n}-1| < 1$ (la longueur d'onde est bien plus grande que la particule, et l'indice de réfraction est modéré) : la théorie de Mie peut être solutionnée par la diffusion Rayleigh,
- x > 1 et $x|\tilde{n}-1| > 1$ (la particule est bien plus grande que la longueur d'onde, et l'indice de réfraction n'est pas trop faible), l'optique géométrique (pouvant être résolue par des techniques de ray tracing) et la théorie de la diffraction peuvent être utilisés,
- *n* → 1 et *k* < 1 de telle manière que la condition $x|\tilde{n}-1| < 1$ soit respectée pour des paramètres de taille *x* arbitraires, la diffusion de Rayleigh-Gans peut s'appliquer,
- la particule est très grande (x < 1), mais avec une variation de \tilde{n} par rapport à l'environnement de la particule limitée $|\tilde{n} 1| < 1$, la diffraction de Van de Hulst peut alors être appliquée.

Dans le cas des mousses de carbure de silicium étudiées dans ce travail, la taille des brins (de l'ordre de plusieurs centaines de microns), comparée aux longueurs d'onde de la plage spectrale qui nous intéresse (rayonnement thermique de 0,4 à 20 μ m), ainsi que la forte absorption du SiC, permettent l'utilisation de l'approximation de l'optique géométrique. Une seconde spécification qui dépend de l'arrangement des particules peut être

faite dans le cas des mousses : les dimensions des cellules (de l'ordre de plusieurs centaines de microns également), et donc les distances moyennes entre les diffuseurs que sont les brins permettent l'utilisation de l'hypothèse de diffusion indépendante [Brewster, 1992]. Celle-ci signifie que les particules interagissent avec le rayonnement sans être influencées par les interactions des particules voisines.

3.5.3 Identification des propriétés radiatives homogénéisées à partir de mesures expérimentales

Il n'existe pas de méthodes expérimentales directes permettant la mesure des propriétés radiatives homogénéisées (β , α , σ et Φ) d'une mousse. Toutefois, leur identification à partir de mesures expérimentales de transmittance et de réflectance est possible. Cette section a pour but de faire l'inventaire de ces méthodes d'identification.

3.5.3.a Identification directe du coefficient d'extinction à partir de mesures de transmittance

On peut trouver dans la littérature un certain nombre de travaux dans lesquels le coefficient d'extinction β de mousses est déterminé d'une manière quasi-directe. Dans ces travaux, des mesures de la transmittance (normale-normale T_{NN} généralement) pour un échantillon d'épaisseur *z* donnée ou plusieurs échantillons d'épaisseurs variables sont réalisées. Ensuite, connaissant l'épaisseur du ou des échantillon(s) et supposant la loi de Beer-Lambert valable pour la transmittance T_{NN}, le coefficient d'extinction β est directement identifié. La mousse est dans ce cas assimilée à un milieu semi-transparent homogène. Cette méthode, relativement facile à mettre en œuvre et peu coûteuse, est proposée dans les ouvrages de référence tels que celui de Gibson et Ashby [1997], ou de Sheffler et Colombo [2005].

Plusieurs études, dont nous allons citer les plus représentatives, ont mis en œuvre cette méthodologie de manière plus ou moins rigoureuse. Mey *et al.* [2014] ont utilisé une mesure de la transmittance (hémisphérique-directionnelle) afin d'évaluer le coefficient d'extinction d'une mousse de SiC. Zhao *et al.* [2004] ont mesuré la transmittance (hémisphérique-normale) de plusieurs mousses métalliques (FeCrAlY) à haute porosité (30, 60 et 90 PPI, avec p=0,95). Le coefficient d'extinction est ensuite obtenu via la méthode précédemment décrite. Cependant, dans ces deux premiers cas, seule une unique épaisseur par échantillon de mousse est utilisée pour identifier β . Cela signifie que la décroissance de l'exponentielle (*i. e.* β) est identifiée à partir d'un unique point. Les travaux utilisant cette approche de la manière la plus complète sont sans doute ceux de Dietrich *et al.* [2014]. La méthode est développée à partir de mesures de transmittance normale-normale sur des échantillons de mousse (Al₂O₃, mullite, OB – S*i*C (oxyde-bonded silicon carbide), cordiérite) présentant cette fois-ci 3 épaisseurs différentes (entre 2 et 9,5 mm). De plus les propriétés texturales des échantillons sont davantage variées ($p \in [0,75 - 0,9]$, PPI $\in [10 - 60]$).

L'avantage de ces méthodes réside dans leur rapidité et leur relative simplicité de mise en œuvre, dès lors que les échantillons présentent une bonne tenue à l'usinage et que l'on

dispose d'un spectromètre. Néanmoins, l'usage de celles-ci soulève quelques questions, à la fois d'ordre pratique et théorique. Les valeurs de transmittance normale-normale mesurées sur des mousses, même si celles-ci sont hautement poreuses et composées de matériaux semi-transparents, sont généralement faibles, à fortiori si le matériau qui constitue les brins est absorbant. L'identification de β est alors réalisée à partir de valeurs de transmittance faibles (T<0,1 [Zhao *et al.*, 2004]), ou bien d'épaisseurs trop réduites (z<2 mm [Dietrich et al., 2014]). Pour ce dernier cas, on peut se poser la question de la représentativité des volumes de mousses pris en compte en vue de l'homogénéisation. Il en est de même de l'identification de β à partir d'une unique valeur de transmittance et de sa précision. Même lorsque plusieurs épaisseurs sont utilisées, la question du respect des conditions aux limites (T(z = 0) = 1 et T($z \mapsto \infty$) = 0) lorsque l'on identifie la loi de Beer Lambert avec plusieurs points, constitue également un point délicat. En effet, il est difficile de déterminer si l'on doit retrouver au mieux les points expérimentaux au risque de ne pas respecter ces conditions aux limites, ou si l'on doit absolument les respecter. Malgré ces diverses interrogations, nous étudierons la faisabilité de ce type d'approche pour les mousses d'α-SiC grâce aux moyens numériques en notre possession (voir section 6.1).

3.5.3.b Inversion de l'ETR appliquée à des mesures expérimentales

Il existe également dans la littérature des méthodes permettant l'identification de l'ensemble des propriétés radiatives homogénéisées (β , α , σ et Φ) à partir de mesures de transmittance et de réflectance. À l'inverse des méthodes présentées en section précédente, qui utilisent de manière simple la loi de Beer Lambert et ne permettent que l'identification de β , celles-ci mettent en œuvre des méthodes numériques permettant l'inversion de l'ETR. Une fois les mesures de transmittance et de réflectance acquises, les paramètres de l'ETR (β , α , σ et Φ) permettant de s'en approcher au mieux sont déterminés. Parmi les travaux les plus notables, on peut citer les suivants :

- Hendricks et Howell [1996] ont proposé une approche dans laquelle l'identification est faite par une méthode inverse basée sur un modèle direct de résolution de l'ETR par la Méthode des Ordonnées Discrètes (MOD). Les mousses investiguées sont constituées de zircone partiellement stabilisée (PS ZrO₂), d'OB-SiC, et de céramiques réticulées (RPC), ayant des PPI de 10, 20 et 65. Ces travaux ont notamment permis l'ajustement de la corrélation liant β à *p* et *d*_{nom} établie dans les travaux de Hsu et Howell [1992] (voir équation 6.5).
- Mital *et al.* [1996] ont également proposé une méthode inverse permettant l'identification du coefficient d'extinction et de l'albédo de diffusion à partir des mesures en régime permanent des luminances sortantes de mousses céramiques chauffées à haute température. Le modèle direct est cette fois-ci basé sur l'approximation de l'ETR via un modèle à 2 flux et un modèle homogène de matériau gris diffusant isotropiquement. Ces travaux ont permis l'établissement d'une corrélation du même type que celle résultant des travaux de Hsu et Howell [1992].
- Baillis *et al.* [2000] ont développé une méthode d'identification de α , σ et Φ à partir de différentes configurations de mesure de transmittance et de réflectance (directionnelles-hémisphériques, directionnelles-directionnelles, ou combinaison des deux), pour des mousses de carbone. Le modèle direct est alors basé sur les lois de l'optique géométrique et de la théorie de la diffraction. Les mêmes auteurs [Baillis *et al.*, 2002] ont ensuite usé de la même approche du point de vue expérimental pour identifier

les propriétés radiatives de mousses polyuréthane. Cette fois-ci, le modèle direct utilisé pour résoudre l'ETR est basé sur la MOD.

Cette énumération n'est bien sûr pas exhaustive, et l'on peut trouver dans la littérature d'autres approches par méthodes inverses.

Comparée aux méthodes d'identification directe du coefficient d'extinction évoquées précédemment, celles-ci présentent l'avantage de permettre l'identification de l'ensemble des propriétés radiatives homogénéisées (β , α , σ et Φ). Toutefois, ces dernières nécessitent l'utilisation d'un modèle direct pour résoudre le transfert radiatif, ce qui implique certains inconvénients : au-delà du fait que ces modèles peuvent être gourmands en temps de calcul, ils peuvent également être sujets à un grand nombre d'hypothèses plus ou moins fortes ou de conditions limites (texture du matériau, géométrie 1D, 2D, isotropie de difusion, gestion de la réflexion aux parois). De plus, la variété des textures de mousses pouvant être étudiées via ces méthodes est limitée par celle des échantillons réels.

3.5.4 Méthodes numériques de prédiction des propriétés radiatives homogénéisées à partir d'images 3D

Les méthodes expérimentales visant à obtenir les propriétés radiatives homogénéisées des matériaux de type mousse à cellules ouvertes sont, comme nous venons de le voir, souvent indirectes et dépendantes d'un modèle direct. De plus, l'étude de la dépendance des propriétés radiatives homogénéisées aux paramètres texturaux est limitée, car la variété des géométries investiguées est souvent limitée par celle des échantillons réels. Les méthodes numériques de prédiction des propriétés radiatives des mousses permettent de répondre à cette problématique. Ces méthodes peuvent être distinguées en plusieurs catégories, en fonction de la manière dont la texture des mousses est prise en compte. Nous allons détailler dans cette section ces différentes approches, tout en précisant les atouts et les désavantages que chacune d'entre elles présentent.

3.5.4.a Modèles théoriques à partir de cellules polyédrales

L'une des approches privilégiées consiste à modéliser le matériau cellulaire par un arrangement de cellules régulières idéalisées. Les formes de ces cellules idéales, que nous allons énumérer dans cette section peuvent être variées :

Plusieurs auteurs ont modélisé les mousses via un assemblage de cellules cubiques de type Dul'nev. Dans un tel modèle, la mousse est considérée comme un assemblage de cellules unitaires cubiques constituées de 12 brins (voir figure 3.10 (a)).

Ainsi, KAMIUTO [1997] a étudié la pertinence de l'utilisation de telles cellules, en remplaçant les brins par des cylindres et les jonctions par des sphères pour calculer analytiquement la contribution radiative de telles cellules. Lu *et al.* [1998] ont également étudié le transfert de chaleur convectif dans des mousses métalliques modélisées par des cellules cubiques de type Dul'nev. Zhao *et al.* [2008] ont de même utilisé cette modélisation de la structure pour déterminer un facteur de vue analytique afin de prédire la conductivité thermique radiative équivalente de mousses métalliques.



FIGURE 3.10 - Description des différents types de cellules idéales utilisés.

La cellule unitaire d'une mousse peut également être assimilée à un polyèdre. Un des exemples les plus fameux est la structure de Kelvin [Weaire, 1997, 2009] (voir figures 3.10 (b)), constituée par un arrangement de tétracaédécaèdres, qui correspond à la structure idéale d'une mousse. Glicksman et al. [1987], ainsi que Kuhn et al. [1992] ont ainsi modélisé la structure de la mousse comme des arrangements aléatoires de cellules dodécaédriques régulières constitués de brins opaques cylindriques. Kuhn *et al.* [1992] ont calculé à partir de cette structure simplifiée une extinction spécifique effective dérivée de calculs issus de la théorie de Mie, ainsi qu'une conductivité thermique radiative. Les données nécessaires à ces calculs sont l'indice complexe de réfraction du matériau, la porosité et les dimensions géométriques des éléments de structure (brins, parois...). Doermann et Sacadura [1996] ont amélioré ensuite ce type d'approche en modélisant les brins ainsi que leurs jonctions de manière plus précise en se basant sur une analyse microscopique de mousses de carbone à pores ouverts. Dans les travaux de Zhao et al. [2004] et de Zhao et al. [2008], un modèle analytique basé sur les lois de l'optique géométrique, la théorie de la diffraction, et la géométrie de la mousse est développé pour prédire le transfert radiatif. Dans cette étude, les mousses métalliques à pores ouverts sont considérées comme étant constituées par des ligaments formant un réseau de cellules dodécaédriques orientées aléatoirement. La taille de cellule (fortement liée au diamètre des ligaments) ainsi que la porosité constituent alors les paramètres clés jouant sur les propriétés radiatives.

Plus récemment, une approche numérique pour le calcul de facteurs de forme du même type, basée sur l'approche théorique de la référence [Zhao *et al.*, 2008], a été proposée par Contento *et al.* [2014b]. Les mêmes auteurs ont également utilisé cette approche pour développer de nouveaux modèles de prédiction des propriétés radiatives prenant en compte des représentations de Kelvin de mousses métalliques à pores ouverts [Contento *et al.*, 2014a]. Coquard et Baillis [2005], ainsi que Coquard *et al.* [2008] ont proposé un modèle plus complexe en considérant différentes formes de cellules (cubiques, dodéca-édriques ou encore tétracaédécaédriques) pour calculer respectivement les propriétés radiatives homogénéisées de mousses métalliques et céramiques. Loretz *et al.* [2008a] ont mené une étude visant à comparer des modèles analytiques basés sur différents types de

cellules et de brins dans le but de déterminer les modèles et les géométries associées se rapprochant le plus de mousses à pores ouverts. Les résultats tendent à privilégier l'usage de cellules tétracaédécaédriques ainsi que la prise en compte de la géométrie des brins et de leurs jonctions.

Ce type de modélisation de la texture de la mousse présente l'avantage de fournir plus ou moins directement des solutions pour les approches analytiques, ce qui représente un gain indéniable en terme de temps de calcul. De même, pour l'ensemble des approches utilisant ce type de modèles, en considérant une maille périodique, il est dans ce cas possible de ne prendre en compte que quelques cellules pour calculer les propriétés radiatives homogénéisées d'une mousse. Contrairement aux approches expérimentales évoquées dans les sections précédentes, l'influence de la morphologie des brins et des nœuds sur les propriétés radiatives peut être directement évaluée. Néanmoins, ces méthodes altèrent fortement la nature stochastique caractéristique des mousses réelles. Nous verrons par la suite en section 3.5.4.c que ce dernier point peut parfois nuire à la précision des calculs des propriétés radiatives.

3.5.4.b Modèles numériques basés sur la reconstruction 3D obtenue par tomographie

Plus récemment, les progrès en imagerie 3D [Baruchel *et al.*, 2000] ont mené au développement de méthodes numériques prenant en compte la texture réelle des mousses via l'acquisition des images tomographiques de la mousse (voir section 2.3).

Ainsi, Loretz *et al.* [2008b] ont mis au point une méthode basée sur le même principe que les techniques d'identification directe de β à partir de la loi de Beer Lambert, à la différence que la transmittance n'est pas mesurée, mais est estimée à partir des images tomographiques des mousses (Al et de Ni-Cr). Pour cela, "l'ombre" de chaque tranche (plans x0y à l'épaisseur *z*, ou image tomographique) est projetée et cumulée. Après la projection de chaque tranche, la transmittance en *z* est égale au ratio des pixels non ombragés sur la surface totale des plans considérés. Ensuite, le coefficient d'extinction est obtenu par identification avec la loi de Beer-

La méthode basée sur la texture réelle du matériau la plus marquante est peut-être celle proposée par Tancrez et Taine [2004]. À partir de la reconstruction de l'interface solide/fluide (qui est réalisée dans notre cas par un algorithme de Marching Cubes, voir section 4.1.1), ils ont développé une méthode d'identification des propriétés radiatives homogénéisées (β , α , σ et Φ) à partir des fonctions de distribution radiative (dénotée par la suite méthode RDFI, pour Radiative Distribution Function Identification). Ces distributions correspondent au concept des distributions de longueurs de cordes, bien connu dans le domaine des sciences du matériau [Méring et Tchoubar, 1968; Torquato, 2002]. Elle ne présuppose donc aucun modèle radiatif quelconque, mis à part que le milieu doit pouvoir être considéré comme un milieu semi-transparent homogène dans lequel la loi de Beer-Lambert est respectée. Cette méthode peut s'appliquer à tout type de géométrie, dès lors que l'hypothèse de l'optique géométrique y est valide. Pour calculer les fonctions de distribution, une approche de type Monte Carlo par lancer de rayons est employée. Cette approche a été ensuite largement utilisée, notamment dans les travaux de Zeghondy et al. [2006a] et Zeghondy et al. [2006b], ainsi que ceux de Petrasch et al. [2007], pour la détermination de propriétés radiatives de milieux poreux. Haussener et al. ont par ailleurs appliqué cette méthode pour la caractérisation de mousses en Si-SiC [Haussener *et al.*, 2010], ou encore de lits de particules semi-transparents de $CaCO_3$ [Haussener *et al.*, 2009]. Coquard et Baillis [2004] et Coquard *et al.* [2011] ont développé une méthode similaire, ensuite améliorée par Randrianalisoa et Baillis [2010], également basée sur une approche de type Monte Carlo par lancer de rayons. Plus récemment, Coquard *et al.* [2012] ont développé une méthode de calcul multi-échelles des propriétés radiatives basée sur cette technique et prenant également en compte la micro-rugosité de surface acquise par ailleurs via microscopie à balayage électronique stéréoscopique.

Contrairement aux approches modélisant les mousses via l'emploi de cellules idéalisées, ces méthodes présentent l'avantage de ne faire aucune hypothèse sur la texture des matériaux étudiés. Toutefois, celles-ci nécessitent des images de qualité, du temps de calcul, et la variété des textures que l'on peut caractériser est également limitée par celle des échantillons réels.

3.5.4.c Choix de la méthode

Les méthodes basées sur les reconstructions de matériaux réels à partir d'images tomographiques présentent l'avantage indéniable de ne faire aucune hypothèse sur la texture des mousses. En revanche, celles-ci ne permettent pas l'étude de l'influence de la texture sur les propriétés radiatives. À l'inverse, une bonne maîtrise de la texture des mousses est offerte par l'utilisation de modèles de cellules idéalisées. Néanmoins, quelques études montrent que l'utilisation de telles représentations peut parfois avoir un impact sur les propriétés radiative calculée, en comparaison avec l'usage de la texture réelle tomographiée. Parmi elles, on peut citer les travaux de Cunsolo et al. [2015], qui ont récemment évalué l'influence de l'utilisation de structures idéalisées (cellules de Kelvin et de Weaire-Phelan) par rapport à l'utilisation de la géométrie réelle sur la prédiction des propriétés radiatives. Ces travaux montrent que l'utilisation de cellules de Weaire-Phelan est satisfaisante lorsque la morphologie des brins est bien prise en compte, ce qui en soi peut représenter une difficulté étant donné le caractère aléatoire de la morphologie des brins présentés par une mousse (voir section 2.4.6). Cela est davantage vrai si l'on ne dispose pas d'un outil numérique puissant tel que le logiciel iMorph. De plus, de telles méthodes altèrent fortement la nature stochastique des milieux poreux. Zhao et al. [2004] ont démontré que, dans certains cas, l'utilisation de modèles périodiques avec des cellules de type polyédrales pouvait mener à un désaccord avec les données expérimentales.

La méthode RDFI, parce qu'elle n'est pas dépendante d'un modèle de transfert radiatif quelconque, parce qu'elle peut être utilisée sur tout type de représentation de la texture, et dont l'usage est répandu et validé dans de nombreux travaux, retiendra donc notre attention dans ce travail de thèse.

En ce qui concerne la manière de représenter le matériau, l'utilisation d'une méthode permettant de combiner les avantages des deux familles d'approches numériques précédemment exposées (maîtrise et variété de la texture, réalisme de la texture) est nécessaire. Toutefois, cette méthode ne doit pas hériter de leurs inconvénients respectifs (hypothèses sur la texture de la mousse et sur la morphologie des brins, absence de contrôle et de variété pour la texture). Une méthode numérique de génération de mousses répondant à ces deux critères principaux sera donc développée au chapitre 5, qui débutera par un bref état de l'art de ce type de techniques.

3.5.5 Méthodes numériques de prédiction de l'absorptance normale

Nous venons de voir que les méthodes numériques de prédiction des propriétés radiatives homogénéisées sont abondantes. Ce n'est pas le cas des méthodes numériques permettant la prédiction des propriétés radiatives mesurables telles que la réflectance normale-hémisphérique $R_{\rm NH}$, la transmittance normale-hémisphérique $T_{\rm NH}$, et l'absorptance normale $A_{\rm N}$, définies en section 3.3. Ce manque d'intérêt se traduit par une littérature relativement pauvre sur le sujet et s'explique par les raisons suivantes : ce sont en effet les seules propriétés radiatives accessibles par voie expérimentale directe sur des échantillons de mousses, alors que leur calcul implique la prise en compte de la géométrie complexe de la mousse ainsi que le déploiement de méthodes numériques lourdes.

Pourtant, comme nous l'avons vu, la connaissance de R_{NH} , T_{NH} et A_N revêt une importance particulière à nos yeux dans la mesure où ces propriétés jouent un rôle important sur les performances thermiques des absorbeurs solaires volumétriques (voir chapitre 1). Même si nous pouvons aisément les mesurer sur des échantillons réels, le développement d'une méthode permettant leur prédiction sur des échantillons numériques apparaît crucial, davantage encore pour l'étude de l'influence de la texture des mousses sur de telles propriétés (rendue possible par la technique de génération numérique de mousses).

On peut tout de même trouver dans la littérature quelques travaux permettant le calcul de ces propriétés : Rozenbaum et al. [2000] ont étudié l'influence de la texture sur l'émissivité spectrale de matériaux céramiques poreux reconstruits en 3D via la méthode des champs gaussiens aléatoires. Pour cela, une approche de type lancer de rayons par méthode de Monte Carlo (MCRT, pour Monte Carlo Ray Tracing) a été développée. Par la suite, Rousseau et al. [2007a] ont utilisé une approche semblable ayant pour objectif la détermination de l'émittance normale de verres de silice à bulles tomographiés. La procédure MCRT vise dans ce cas à reproduire numériquement la mesure de la réflectance normale-hémisphérique R_{NH} et de la transmittance normale-hémisphérique T_{NH} (qui donnent ensuite accès à l'émittance normale). La méthode consiste à lancer un grand nombre de rayons au sein de la reconstruction 3D de l'interface de l'échantillon (obtenue préalablement à partir des images tomographiques), puis à suivre leurs trajectoires jusqu'à leur sortie ou leur absorption, en traitant l'interaction entre les rayons et l'interface via un modèle de réflexion tenant compte des propriétés optiques du matériau. R_{NH} et T_{NH} sont finalement estimés à partir des flux radiatifs sortants de l'échantillon, euxmêmes calculés en collectant les rayons à leur sortie. Cette approche a par la suite été utilisée par les mêmes auteurs [Rousseau et al., 2011a] pour étudier l'influence de la texture de verres de silice à bulle sur les propriétés radiatives. Akolkar et Petrasch [2011] ont développé une approche similaire pour le calcul de l'absorptance normale A_N pour des mousses reconstruites à partir des images tomographiques. Dans ce travail, l'interaction entre les rayons et l'interface est traitée via une approximation de la loi de Fresnel.

L'usage de ce type de méthodes apparaît très adapté à notre problématique qui consiste à étudier l'influence des propriétés texturales de la mousse sur ses propriétés radiatives. De plus, nous disposons des reconstructions numériques de mousses (issues des images tomographiques ou d'échantillons numériquement générés), ainsi que de la connaissance des propriétés optiques effectives de la phase solide. Dans des travaux antérieurs à cette thèse, le logiciel iMorph a ainsi été enrichi d'un module de calcul, appelé iMorphRad, permettant le calcul par méthode MCRT des propriétés radiatives [Rousseau *et al.*, 2012]. Ce travail de thèse va donc être l'occasion d'enrichir ces travaux précédemment initiés, et de poursuivre le développement de cet outil, qui sera présenté en détail dans le chapitre suivant.

3.6 Conclusions

Ce chapitre a été l'occasion d'introduire l'ensemble des grandeurs radiatives qui nous intéressent. La définition des grandeurs énergétiques, telles que la luminance L, le flux d'énergie radiative P, a permis, via l'introduction de la notion de corps noir, de définir les propriétés radiatives aux interfaces que sont l'émissivité e_{λ} , l'absorptivité a_{λ} (spectrales et directionnelles), la réflectivité ρ_{λ}^{\cap} et la transmissivité τ_{λ}^{\cap} (spectrales et directionnelles-hémisphériques). L'écriture du bilan radiatif pour un matériau soumis a du rayonnement nous a permis d'introduire la loi de Kirchhoff et de souligner que le comportement radiatif d'un matériau opaque tel qu'une mousse de SiC est gouverné à l'échelle locale par sa réflectivité. Le modèle de réflectivité que nous utiliserons par la suite a ensuite été décrit : celui-ci correspond à la loi de Snell généralisée aux matériaux absorbants. Il fait par conséquent appel à l'indice de réfraction complexe du milieu \tilde{n} qui dans notre cas est une propriété effective du brin dont l'identification tient compte de son état de surface.

Ensuite, les propriétés radiatives analogues à celles définies aux interfaces, mais que l'on peut mesurer à l'échelle d'un échantillon macroscopique de mousse, T_{NH} , R_{NH} et A_N , ainsi que le spectromètre permettant leur acquisition, ont été introduits. La compréhension des liens entre ces propriétés radiatives macroscopiques et les propriétés optiques de la phase solide \tilde{n} , qui caractérisent les différentes échelles définies en section 1.4.2, est à présent permise via les définitions des grandeurs radiatives fournies en début de chapitre. L'écriture de l'ETR, dont l'importance a été soulignée au chapitre 1, permet ensuite l'introduction des propriétés radiatives caractérisant un milieu semi-transparent homogène : le coefficient d'extinction β , le coefficient d'absorption α , le coefficient de diffusion σ et la fonction de phase de diffusion Φ .

Nous avons vu au chapitre 1 que l'étude de l'influence de la texture sur les propriétés radiatives requiert le développement de méthodes permettant leur obtention. La seconde partie de ce chapitre a donc été l'occasion de dresser un état de l'art de ces méthodes. En ce qui concerne la détermination des propriétés radiatives homogénéisées, il apparaît que les méthodes d'identification à partir de mesures expérimentales de transmittance et de réflectance sont soumises à un trop grand nombre d'hypothèses. De plus, leur emploi limiterait cette étude aux textures des mousses réelles, dont la variété est insuffisante par rapport aux ambitions de ce travail de thèse. L'utilisation de modèles numériques permettant la prédiction des propriétés radiatives homogénéisées doit donc être privilégiée. Les approches existantes se divisent en deux familles au regard de la prise en compte de la texture des mousses :

 les méthodes modélisant la mousse par des arrangements de cellules unitaires idéalisées, - les méthodes utilisant la géométrie réelle de la mousse obtenue par tomographie.

Les premières facilitent l'étude de l'impact de la texture sur les propriétés radiatives, mais peuvent parfois introduire des biais dus à l'idéalisation du matériau, notamment si la morphologie des brins est mal prise en compte. Les secondes, à l'inverse, présentent l'avantage de ne faire aucune hypothèse sur la texture du matériau, et peuvent être directement utilisées sur des géométries réelles obtenues par tomographie. Pour la prédiction de propriétés radiatives homogénéisées, nous utiliserons donc la méthode RDFI, présentée par Tancrez et Taine [2004], qui fait partie de cette seconde catégorie. Cette méthode, qui présente l'avantage de ne supposer aucun modèle radiatif et qui peut s'appliquer à tout type de géométries, permet le calcul de β , α , σ et Φ à partir des distributions statistiques des longueurs d'extinction calculées par lancer de rayons. Elle sera présentée en détail et validée dans le chapitre 4. Néanmoins, nous retrouvons ici la même problématique que celle rencontrée par les méthodes d'identification à partir de mesures expérimentales : la variété des textures étudiées est limitée par celle des échantillons réels.

Pour étudier l'influence de la morphologie sur les propriétés radiatives, il est donc nécessaire d'obtenir des reconstructions de jeux de mousses dont les textures sont variées et maîtrisées, mais surtout les plus réalistes possibles. Les méthodes de génération de matériaux cellulaires virtuels permettent de répondre à cet objectif. Une technique de génération numérique de mousse sera donc développée au cours du chapitre 5.

Nous avons vu également que les propriétés radiatives mesurables R_{NH} , T_{NH} et A_N ont une influence directe sur les performances thermiques des absorbeurs solaires volumétriques. Pour étudier l'influence des paramètres texturaux sur ces propriétés, la possibilité de les mesurer expérimentalement sur des échantillons réels ne suffit pas. Afin de bénéficier des variétés texturales offertes par la méthode numérique de génération de mousses, une méthode de lancer de rayons par Monte Carlo (MCRT) permettant le calcul de R_{NH} , T_{NH} et A_N à partir de la reconstruction 3D de l'interface de la mousse a été également développée. Le développement de cette méthode au sein d'iMorph avait par ailleurs été initié lors de travaux antérieurs. Le chapitre suivant est donc consacré à la description précise des méthodes numériques que nous venons d'évoquer.

3.7 Références

- AKOLKAR, A. et PETRASCH, J. (2011). Tomography based pore-level optimization of radiative transfer in porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 54:4775 – 4783. 84
- BAILLIS, D., ARDUINI-SCHUSTER, M. et SACADURA, J. (2002). Identification of spectral radiative properties of polyurethane foam from hemispherical and bi-directional transmittance and reflectance measurements. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 73(2):297–306. 79
- BAILLIS, D., COCQUARD, R., RANDRIANALISOA, J., DOMBROVSKY, L. et VISKANTA, R. (2013). Thermal radiation properties of highly porous cellular foams. *Special Topics and Reviews in Porous Media*, 4(2):111–136. 76
- BAILLIS, D., RAYNAUD, M. et SACADURA, J. (2000). Determination of spectral radiative properties of open cell foam : model validation. *Journal of thermophysics and heat transfer*, 14(2):137–143. 79
- BAILLIS, D. et SACADURA, J.-F. (2000). Thermal radiation properties of dispersed media : theoretical prediction and experimental characterization. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 67(5):327 363. 76
- BARUCHEL, J., BUFFIERE, J. et MAIRE, E. (2000). *X-Rray tomography in material science*. Hermes science publications. 82
- BOHREN, C. F. et HUFFMAN, D. R. (2008). *Absorption and scattering of light by small particles*. John Wiley and Sons. 66, 67, 77
- BORN, M. et WOLF, E. (1999). Principles of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light 7th Edition. 66, 67
- BOYARD, N. (2016). *Heat transfer in polymer composite materials and their forming processes (In Press)*, chapitre 12. Thermal radiative properties of some polymers reinforced or not with fibers structures. Wiley. 58
- BREWSTER, M. Q. (1992). *Thermal Radiative Transfer and Properties*. Wiley, New York. 77, 78
- CHAI, J. C., LEE, H. S. et PATANKAR, S. V. (1994). Finite volume method for radiation heat transfer. *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*, 8(3):419–425. 76
- CHANDRASEKHAR, S. (1960). *Radiative Transfer*. Dover books on advanced mathematics. Dover Publications. 72, 74, 75
- CHRISTIANSEN, C. (1883). Absolute bestimmung des emissions-und absorptionsvermögens für wärme. *Annalen der Physik*, 255(6):267–283. 75
- CONTENTO, G., OLIVIERO, M., BIANCO, N. et NASO, V. (2014a). The prediction of radiation heat transfer in open cell metal foams by a model based on the lord kelvin representation. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 76:499 – 508. 81
- CONTENTO, G., OLIVIERO, M., BIANCO, N. et NASO, V. (2014b). Prediction of radiative heat transfer in metallic foams. *International Journal of Thermal Sciences*, 76:147–154. 81

- COQUARD, R. et BAILLIS, D. (2004). Radiative characteristics of opaque spherical particles beds : A new method of prediction. *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*, 18(2): pp. 178 – 186. 83
- COQUARD, R. et BAILLIS, D. (2005). Modeling of heat transfer in low-density eps foams. *J. Heat Transfer*, 128(6):538–549. 81
- COQUARD, R., BAILLIS, D. et RANDRIANALISOA, J. (2011). Homogeneous phase and multiphase approaches for modeling radiative transfer in foams. *International Journal of Thermal Sciences*, 50(9):1648–1663. 83
- COQUARD, R., LORETZ, M. et BAILLIS, D. (2008). Conductive heat transfer in metallicceramic open-cell foams. *Adv. Eng. Mater.*, 10:323–337. 81
- COQUARD, R., ROUSSEAU, B., ECHEGUT, P., BAILLIS, D., GOMART, H. et IACONA, E. (2012). Investigations of the radiative properties of Al-NiP foams using tomographic images and stereoscopic micrographs. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 55(5-6):1606–1619. 68, 83
- CUNSOLO, S., OLIVIERO, M., HARRIS, W. M., ANDREOZZI, A., BIANCO, N., CHIU, W. K. et NASO, V. (2015). Monte Carlo determination of radiative properties of metal foams : Comparison between idealized and real cell structures. *International Journal of Thermal Sciences*, 87:94–102. 83
- DIETRICH, B., FISCHEDICK, T., HEISSLER, S., WEIDLER, P., WÖLL, C. et KIND, M. (2014). Optical parameters for characterization of thermal radiation in ceramic sponges - experimental results and correlation. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 79:655 – 665. 78, 79
- DOERMANN, D. et SACADURA, J. F. (1996). Heat transfer in open cell foam insulation. *J. of Heat Transfer*, 118(1):88–93. 81
- DOMBROVSKY, L., BAILLIS, D. et RANDRIANALISOA, J. (2011). Some physical models used to identify and analyze infrared radiative properties of semi-transparent dispersed materials. *Journal of Spectroscopy and Dynamics*, 1(7):1–7. 76
- DOMBROVSKY, L. A. et BAILLIS, D. (2010). *Thermal radiation in disperse systems : An engineering approach.* Begell House New York. 76
- DUBOT, F. (2015). *Développement de techniques de diagnostic non intrusif par tomographie optique*. Thèse de doctorat, École de technologie supérieure, Université du Québec, Université de Nantes. 75
- GIBSON, L. J. et ASHBY, M. (1997). *Cellular solids, structure and properties, second edition*. Cambridge University Press. 78
- GLICKSMAN, L., SCHUETZ, M. et SINOFSKY, M. (1987). Radiation heat transfer in foam insulation. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 30(1):187–197. 81
- HAKOUME, D. (2015). *Influence des conditions de mise en forme sur les propriétés radiatives de polymères semi-cristallins*. Thèse de doctorat, Université de Nantes. 70
- HAKOUME, D., DOMBROVSKY, L. A., DELAUNAY, D. et ROUSSEAU, B. (2014). Spectroscopic diagnostics of morphological changes arising in thermal processing of polypropylene. *Applied optics*, 53(12):2702–2710. 70

- HAMMERSLEY, J. M. et HANDSCOMB, D. (1964). Monte carlo methods. *In Monte Carlo Methods*, pages 134–141. Springer. 75
- HAUSSENER, S., CORAY, P., LIPIŃSKI, W., WYSS, P. et STEINFELD, A. (2010). Tomographybased heat and mass transfer characterization of reticulate porous ceramics for hightemperature processing. *Journal of Heat Transfer*, 132(2):023305. 83
- HAUSSENER, S., LIPIŃSKI, W., PETRASCH, J., WYSS, P. et STEINFELD, A. (2009). Tomographic characterization of a semitransparent-particle packed bed and determination of its thermal radiative properties. *Journal of Heat Transfer*, 131:072701–1–11. 83
- HENDRICKS, T. J. et HOWELL, J. R. (1996). Absorption/scattering coefficients and scattering phase functions in reticulated porous ceramics. *Journal of Heat Transfer*, 118(1):79–87. 79
- HOWELL, J. (1998). The monte carlo method in radiative heat transfer. *Journal of Heat Transfer*, 120(3):547–560. 75
- HOWELL, J. R. (1968). Application of monte carlo to heat transfer problems. *Advances in heat transfer*, 5(1):1–54. 75
- HOWELL, J. R., SIEGEL, R. et PINAR MENGÜC, M. (2011). *Thermal Radiation Heat Transfer Fifth Edition*. CRC Press. 58, 66, 69, 72, 74
- HSU, P. F. et HOWELL, J. R. (1992). Measurements of thermal conductivity and optical properties of porous partially stabilized zirconia. *Experimental Heat Transfer*, 5(4):293–313. 79
- HULST, H. C. et VAN DE HULST, H. (1957). *Light scattering by small particles*. Courier Corporation. 77
- JEANS, J. (1917). The equations of radiative transfer of energy. *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society*, 78(1):28–36. 75
- KAMIUTO, K. (1997). Study of dul'nev's model for the thermal and radiative properties of open-cellular porous materials. *JSME International Journal Series B*, 40(4):577–582. 80
- KUHN, J., EBERT, H.-P., ARDUINI-SCHUSTER, M., BÜTTNER, D. et FRICKE, J. (1992). Thermal transport in polystyrene and polyurethane foam insulations. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 35(7):1795 1801. 81
- LI, B.-W., TAO, W.-Q. et LIU, R.-X. (1997). Ray effect in ray tracing method for radiative heat transfer. *International journal of heat and mass transfer*, 40(14):3419–3426. 75
- LORETZ, M., COQUARD, R., BAILLIS, D. et MAIRE, E. (2008a). Metallic foams : Radiative properties/comparison between different models. *Journal of Quantitative Spectroscopy* and Radiative Transfer, 109(1):16–27. 81
- LORETZ, M., MAIRE, E. et BAILLIS, D. (2008b). Analytical modelling of the radiative properties of metallic foams : contribution of X-Ray Tomography. *Advanced Engineering Material*, 10(4):352–360. 82
- LU, T., STONE, H. et ASHBY, M. (1998). Heat transfer in open-cell metal foams. *Acta Materialia*, 46(10):3619 3635. 80

- MÉRING, J. et TCHOUBAR, D. (1968). Interprétation de la diffusion centrale des rayons X par les systèmes poreux. I. *Journal of Applied Crystallography*, 1(3):153–165. 82
- MEY, S., CALIOT, C., FLAMANT, G., KRIBUS, A. et GRAY, Y. (2014). Optimization of high temperature sic volumetric solar absorber. *Energy Procedia*, 49:478 487. Proceedings of the SolarPACES 2013 International Conference. 72, 78
- MITAL, R., GORE, J. et VISKANTA, R. (1996). Measurements of radiative properties of cellular ceramics at high temperatures. *Journal of thermophysics and heat transfer*, 10(1):33– 38. 79
- MODEST, M. F. (2003). *Radiative Heat Transfer (Second Edition)*. Academic Press. 58, 65, 66, 69, 71, 72, 75
- PETRASCH, J., WYSS, P. et STEINFELD, A. (2007). Tomography-based Monte-Carlo determination of radiative properties of reticulate porous ceramics. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 105(2):180–197. 82
- RAITHBY, G. et CHUI, E. (1990). A finite-volume method for predicting a radiant heat transfer in enclosures with participating media. *ASME. J. Heat Transfer.*, 112(2):415–423. 76
- RANDRIANALISOA, J. et BAILLIS, D. (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. 83
- RAZZAQUE, M., HOWELL, J. et KLEIN, D. (1984). Coupled radiative and conductive heat transfer in a two-dimensional rectangular enclosure with gray participating media using finite elements. *Journal of Heat Transfer*, 106(3):613–619. 76
- RAZZAQUE, M., KLEIN, D. et HOWELL, J. (1983). Finite element solution of radiative heat transfer in a two-dimensional rectangular enclosure with gray participating media. *Journal of Heat Transfer*, 105(4):933–936. 76
- ROUSSE, D. R. (2000). Numerical predictions of two-dimensional conduction, convection, and radiation heat transfer. i. formulation. *International Journal of Thermal Sciences*, 39(3):315–331. 76
- ROUSSE, D. R., GAUTIER, G. et SACADURA, J.-F. (2000). Numerical predictions of twodimensional conduction, convection, and radiation heat transfer. ii. validation. *International Journal of Thermal Sciences*, 39(3):332 – 353. 76
- ROUSSEAU, B. (2001). Origines des propriétés thermoradiatives d'oxydes noirs : optimisation d'un émetteur infrarouge. Thèse de doctorat. 65, 69
- ROUSSEAU, B., de SOUSA MENESES, D., ECHEGUT, P., DI MICHIEL, M. et THOVERT, J.-F. (2007a). Prediction of the thermal radiative properties of an x-ray tomographied porous silica glass. *Applied Optics*, 46(20):4266–4276. 84
- ROUSSEAU, B., DE SOUSA MENESES, D., ECHEGUT, P. et THOVERT, J.-F. (2011a). Textural parameters influencing the radiative properties of a semitransparent porous media. *International Journal of Thermal Sciences*, 50(2):178–186. 84
- ROUSSEAU, B., GOMART, H., MENESES, D. D. S., ECHEGUT, P., RIEU, M., DUGAS, R., LE-NORMAND, P. et ANSART, F. (2011b). Modelling of the radiative properties of an opaque porous ceramic layer. *Journal of electroceramics*, 27(2):89–92. 68

- ROUSSEAU, B., MICHIEL, M. D., CANIZARES, A., MENESES, D. D. S., ECHEGUT, P. et THO-VERT, J. F. (2007b). 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. 66, 67
- ROUSSEAU, B., ROLLAND, J. Y., ECHEGUT, P., BRUN, E. et VICENTE, J. (2012). Numerical prediction of the radiative behavior of metallic foams from the microscopic to macro-scopic scale. *Journal of Physics : Conference Series*, 369(1):012003. 85
- ROZENBAUM, O. (1999). Étude de l'influence de la texture sur l'émissivite spectrale de matériaux poreux semi-transparents à haute température. Thèse de doctorat. 65, 69
- ROZENBAUM, O., MENESES, D. D. S., ECHEGUT, P. et LEVITZ, P. (2000). Influence of the texture on the radiative properties of semitransparent materials. comparison between model and experiment. *High Temperatures High Pressures*, 32(1):61–66. 84
- SACADURA, J. (2011). Thermal radiative properties of complex media : theoretical prediction versus experimental identification. *Heat Transfer Engineering*, 32(9):754–770. 72
- SACADURA, J. et BAILLIS, D. (2002). Experimental characterization of thermal radiation properties of dispersed media. *International Journal of Thermal Sciences*, 41(7):699 707. 76
- SHEFFLER, M. et COLOMBO, P. (2005). *Cellular Ceramics : Structure, Manufacturing, Properties and Applications*. Wiley. 78
- TAN, H.-P., YI, H.-L., WANG, P.-Y., RUAN, L.-M. et TONG, T. W. (2004). Ray tracing method for transient coupled heat transfer in an anisotropic scattering layer. *International journal of heat and mass transfer*, 47(19):4045–4059. 75
- TANCREZ, M. et TAINE, J. (2004). Direct identification of absorption and scattering coefficients and phase function of a porous medium by a Monte Carlo technique. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 47(2):373–383. 82, 86
- TORQUATO, S. (2002). *Random Heterogeneous Materials : Microstructure and Macroscopic Properties*. Springer-Verlag, New-York. 82
- VISKANTA, R. et MENGÜÇ, M. P. (1989). Radiative transfer in dispersed media. *Appl. Mech. Rev.*, 42(9):241–259. 76
- WEAIRE, D. (1997). The Kelvin Problem. CRC Press. 81
- WEAIRE, D. (2009). Kelvin's ideal foam structure. *Journal of Physics : Conference Series*, 158:012005. 81
- ZEGHONDY, B., IACONA, E. et TAINE, J. (2006a). Determination of the anisotropic radiative properties of a porous material by radiative distribution function identification (RDFI). *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 49(17-18):2810–2819. 82
- ZEGHONDY, B., IACONA, E. et TAINE, J. (2006b). Experimental and {RDFI} calculated radiative properties of a mullite foam. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 49(19–20):3702 – 3707. 82

- ZHAO, C., LU, T. et HODSON, H. (2004). Thermal radiation in ultralight metal foams with open cells. *International journal of heat and mass transfer*, 47(14):2927–2939. 78, 79, 81, 83
- ZHAO, C. Y., TASSOU, S. A. et LU, T. J. (2008). Analytical considerations of thermal radiation in cellular metal foams with open cells. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 51(3-4):929–940. 80, 81

Chapitre 4

Méthodes numériques de prédiction des propriétés radiatives développées

Sommaire

4.1	Techniques de lancer de rayons (ray tracing)		
	4.1.1	Reconstruction 3D de l'interface par Marching-Cube (iMorph) 94	
	4.1.2	Définition d'un rayon	
	4.1.3	Propagation d'un rayon et détection des intersections 96	
	4.1.4	Interaction rayonnement-matière	
4.2	Calcu	Calcul de l'absorptance normale ${\rm A}_{\rm N}$ via un algorithme de lancer de rayons	
	par m	éthode de Monte Carlo (MCRT)97	
	4.2.1	Validation du code MCRT 99	
4.3	Analy	se statistique du transport de rayons 103	
	4.3.1	Calcul de la réflectivité locale moyenne ρ_m et de la distribution des	
		angles d'incidence θ_i	
	4.3.2	Calcul des profils de l'énergie absorbée selon z	
4.4	Métho	ode d'identification des propriétés radiatives homogénéisées à par-	
	tir des	s fonctions de distribution radiatives (RDFI)	
	4.4.1	Identification du coefficient d'extinction 107	
	4.4.2	Identification de coefficient d'absorption	
	4.4.3	Identification de la fonction de phase de diffusion 109	
	4.4.4	Validation de la méthode RDFI	
4.5	Conclusions		
4.6	Références		

Au chapitre précédent, les propriétés radiatives des mousses ont été définies, puis nous avons établi l'inventaire des méthodes numériques permettant leur prédiction. Ce nouveau chapitre sera l'occasion de présenter en détail celles que nous avons retenues : le calcul de la réflectance normale-hémisphérique R_{NH}, de la transmittance normalehémisphérique T_{NH} et de l'absorptance normale A_N, par lancer de rayons via une méthode de Monte Carlo, dénotée par la suite MCRT (pour Monte Carlo Ray Tracing); une méthode d'identification des propriétés radiatives homogénéisées (coefficient d'extinction β , coefficient d'absorption α , coefficient de diffusion σ et fonction de phase de diffusion Φ) basée elle aussi sur une technique de lancer de rayons, dénotée ici RDFI (pour Radiative Distribution Function Identification). Ces deux méthodes se basent sur la reconstruction 3D de l'interface de la mousse dont la phase solide est caractérisée de manière homogène par les propriétés optiques n et k, qui garantissent l'opacité du matériau. Ce chapitre constitue donc une synthèse des approches développées par Tancrez et Taine [2004] ou encore Coquard et Baillis [2004] pour l'identification de β , α , σ et Φ , ainsi que des méthodes introduites par Rousseau et al. [2007a] pour la prédiction de R_{NH}, T_{NH} et A_N. Ces derniers travaux avaient abouti notamment à développer un code de prédiction de R_{NH}, T_{NH} et A_N sous la forme d'un module du logiciel iMorph (appellé iMorphRad, licence CeCILL) dont le développement sera poursuivi dans cette thèse. Avant de voir comment les rayons sont lancés et collectés spécifiquement à chaque méthode afin de calculer les grandeurs radiatives précédemment citées, nous présenterons donc les techniques utilisées pour propager les rayons et le modèle employé pour la gestion de leur interaction avec la phase solide. Ensuite nous décrirons précisément les méthodes MCRT puis RDFI, qui seront également validées par rapport à la mousse de référence.

4.1 Techniques de lancer de rayons (ray tracing)

Depuis de nombreuses années, les algorithmes de lancer de rayons sont largement utilisés afin de générer des images de synthèse (rendering) mais également pour traiter des problèmes de transferts radiatifs. La simplicité et l'élégance de ces techniques permettent une modélisation relativement simple des phénomènes de réflexion, de réfraction et d'ombrage, d'autant plus lorsque l'hypothèse de l'optique géométrique est vérifiée, comme c'est le cas dans cette étude. Ces méthodes sont également particulièrement adaptées aux calculs spectraux ainsi qu'à la prise en compte de géométries complexes. Ces possibilités ont donc naturellement retenu notre attention pour la prédiction des propriétés radiatives spectrales des mousses.

4.1.1 Reconstruction 3D de l'interface par Marching-Cube (iMorph)

Les algorithmes de lancer de rayons développés lors de ces travaux nécessitent la connaissance de la reconstruction 3D de l'interface solide/fluide. À partir de l'étape de binarisation (décrite en section 2.3.2) appliquée à l'ensemble de l'image 3D, la reconstruction de cette interface est rendue possible par un algorithme de Marching-Cubes [Lorensen et Cline, 1987]. Cet algorithme, rapide et robuste, permet la reconstruction d'une surface polygonale approximant une isosurface dans un champ scalaire tridimensionnel. Le champ scalaire correspond dans notre cas à l'image 3D brute en niveaux de gris, et la

valeur du seuil choisi précédemment définit l'isosurface (l'interface solide/fluide). Brièvement, l'algorithme consiste à balayer l'image 3D en prenant simultanément 8 valeurs définissant un cube. Chaque sommet de ce cube, en fonction du seuil, peut faire partie soit de la phase solide, soit de la phase fluide. La configuration des phases aux sommets du cube détermine alors une configuration de facettes polygonales (appelées également éléments de surface dans la suite de ce manuscrit) qui sera à même d'approximer l'isosurface dans le cube. Comme il y a seulement 2 états possibles (solide/fluide) et 8 sommets, le nombre de configurations de facettes différentes à stocker en mémoire est égal à $2^8 = 256$. En supprimant les nombreux cas symétriques, le nombre de configurations de facettes différentes (représentées en 4.1 (b)) se réduit à 14.



FIGURE 4.1 – Reconstruction de l'interface par Marching Cube : (a) sélection d'un seuil de niveau de gris pour la binarisation (phase solide en rouge), (b) configurations possibles pour l'agencement des facettes reconstruites dans un voxel (images tirées du site Nvidia), (c) reconstruction 3D de l'échantillon.

Le positionnement des sommets des facettes le long des arêtes du cube est calculé avec la valeur du gradient du champ scalaire, elle-même donnée par les 2 valeurs du champ scalaire aux extrémités de l'arête. Une attention particulière a été portée pour générer des surfaces régulières et dépourvues de trous ou de sommets disjoints. La surface 3D reconstruite de notre échantillon réel est représentée en figure 4.1 (c). Ici, la zone dans laquelle le Marching-Cube a été appliqué correspond à une zone cubique de 400 voxels de côté, centrée dans l'image 3D brute. La même méthode sera utilisée pour reconstruire des échantillons de mousses virtuellement générées.

4.1.2 Définition d'un rayon

Dans les méthodes basées sur les techniques de lancer de rayons, le rayonnement est modélisé par la propagation selon les lois de l'optique géométrique de rayons (ou paquet de photons). Dans les algorithmes développés dans ce travail, un rayon est considéré comme un objet présentant les attributs suivants :

- un vecteur position **r**,
- un vecteur direction **u**,
- l'énergie radiative qu'il véhicule, *e_r*, d'unité arbitraire,
- un compteur du nombre d'impacts subis le long de son chemin optique N_{imp} .

Dans ce travail, les rayons se déplacent dans la phase fluide des mousses considérée totalement transparente (air). Leur propagation est de ce fait rectiligne, et la tâche principale réside dans la détection des intersections avec les facettes de l'interface représentant la phase solide.

4.1.3 Propagation d'un rayon et détection des intersections

Les algorithmes de lancer de rayons peuvent être très gourmands en temps de calcul si aucune précaution n'est prise, ce qui constitue d'ailleurs leur principal défaut. L'efficacité d'un algorithme de lancer de rayons est basée sur celle de la procédure permettant la détection et le calcul des intersections avec les surfaces qu'il va rencontrer. Cette étape peut en effet parfois représenter jusqu'à 95% du temps de calcul [Amanatides et Woo, 1987] si aucune stratégie de détection optimisée n'est effectuée. Plusieurs approches ont donc été développées pour répondre à ce problème, que l'on peut séparer en 2 familles.

Premièrement, les méthodes utilisant des volumes englobants hiérarchisés (hierarchical bounding volumes) [Amanatides et Woo, 1987], dont l'idée générale consiste à définir autour de chaque objet complexe un volume englobant plus simple (sphères, parallélépipèdes). Avant de s'engager dans des calculs d'intersection avec la géométrie complexe de l'objet, on détermine si le rayon impacte bien le volume englobant, ce qui nécessite beaucoup moins de calculs. À partir de ce principe, il devient possible de définir une hiérarchisation de volumes englobants pour les géométries les plus complexes. Ainsi, un objet auquel correspond un volume englobant peut lui-même être constitué de plusieurs éléments possédant leurs volumes englobants propres. Les tests d'intersections avec les sous-volumes ne seront alors réalisés que si ceux des volumes supérieurs dans la hiérarchie sont positifs.

La seconde approche (traversal voxel), consiste à partitionner l'espace en régions, contenant chacune une liste de l'ensemble des objets qui y sont inscrits. Une fois qu'un rayon est lancé, la première étape consiste à calculer dans la région où il se situe l'ensemble des intersections avec les objets éventuellement contenus dans cette région. Si des intersections sont détectées, la première d'entre elles sur la trajectoire du rayon est alors retenue et le calcul inutile d'autres intersections évité. Si aucune intersection n'est détectée, le procédé est répété dans la région suivante le long de la trajectoire du rayon, et ainsi de suite jusqu'à trouver le premier impact avec un objet. Le temps de calcul est alors drastiquement réduit car seules les objets situés le long de la trajectoire du rayon sont pris en compte. Il existe plusieurs types de partitions de l'espace dont les plus notables sont les octrees [Glassner, 1984], ou les grilles régulières [Fujimoto et Iwata, 1985]. La technique des octrees permet de réduire le nombre des régions à sonder, mais complique la détermination des régions interceptées par la trajectoire du rayon. À l'inverse, les partitions de type grille utilisent un nombre bien plus important de régions, mais l'obtention de ces régions est simplifiée.

Cette dernière approche a été retenue pour réaliser la propagation des rayons dans ce travail. La partition de l'espace de type grille est en effet bien plus adaptée dans notre cas, car la reconstruction de l'interface 3D (à partir des images 3D binarisées de la mousse) via l'algorithme de Marching Cube consiste à stocker le maillage le représentant dans une structure de donnée également de type image 3D. Chaque voxel de cette image contient (ou non) une ou plusieurs facettes du maillage (voir les différentes configurations produites par le Marching Cube en section 4.1).

L'algorithme utilisé pour la détection des intersections d'un rayon avec ces facettes est une version de type traversal voxel améliorée développée initialement dans les travaux de Amanatides et Woo [1987]. La traversée des voxels est alors réalisée de la manière suivante : on teste d'abord la présence de facettes dans le voxel où se trouve le rayon (voxel courant). Si il n'y a pas de facette dans ce voxel (ce qui revient à simplement regarder la valeur d'un entier comptant le nombre de facettes dans ce voxel), on "saute" directement au voxel suivant, déterminé très simplement à l'aide de r et **u**. Si le voxel courant contient une ou plusieurs facettes, la propagation du rayon se fait donc de manière rectiligne à l'aide de son vecteur direction **u** et d'un pas d'avancement *m*, utilisé pour calculer pas à pas la nouvelle position (\mathbf{r}_{new}) du rayon à partir de sa position initiale (\mathbf{r}_{old}) comme suit :

$$\begin{cases} \mathbf{r}_{i,new} = \mathbf{r}_{i,old} + \mathbf{u}_i \times m, \\ \mathbf{r}_{j,new} = \mathbf{r}_{j,old} + \mathbf{u}_j \times m, \\ \mathbf{r}_{k,new} = \mathbf{r}_{k,old} + \mathbf{u}_k \times m. \end{cases}$$
(4.1)

 \vec{u} doit de ce fait être normalisé à l'initialisation du rayon.

4.1.4 Interaction rayonnement-matière

La réflexion du rayon sur un élément de surface de la phase solide suit un modèle spéculaire, correspondant au cas de l'optique géométrique. Dans ce cas, le modèle de réflexion spéculaire consiste simplement à calculer la réflectivité ρ donnée par la loi de Snell [Born et Wolf, 1999]. Le calcul de ρ est détaillé en section 3.2.2 et dans les travaux de Rousseau *et al.* [2007b]. Celui-ci nécessite la connaissance de la normale sortante (vers la phase fluide) de la facette impactée par le rayon, de la direction de ce dernier, et des indices de réfraction complexes de l'air (*n*=1, *k*=0) et du solide.

Une fois la réflectivité calculée à partir des informations véhiculées par le rayon, le rayon incident ("père") est supprimé, et remplacé par un nouveau rayon "fils" qui hérite de l'identifiant de son prédécesseur. Les autres attributs du rayon sont alors modifiés comme suit : le nombre d'impacts est incrémenté, l'énergie transportée est remplacée par sa propre valeur multipliée par la réflectivité calculée, et enfin le vecteur matérialisant la direction du rayon est remplacé via une simple transformation correspondant à une réflexion spéculaire.

L'implémentation que nous avons réalisée fournit également la possibilité à l'utilisateur de fixer une valeur de réflectivité qui ne dépend pas de l'angle d'incidence, dénoté ρ_f , en substitution de la valeur calculée via la loi de Snell.

4.2 Calcul de l'absorptance normale A_N via un algorithme de lancer de rayons par méthode de Monte Carlo (MCRT)

L'algorithme présenté dans cette section permet le calcul de la réflectance normale hémisphérique, $R_{\rm NH}$, et de la transmittance normale hémisphérique, $T_{\rm NH}$. L'approche développée consiste à reproduire numériquement les mesures spectroscopiques présentées en section 3.3.2. Pour cela, nous poursuivrons le développement d'un algorithme de lancer de rayons par méthode de Monte Carlo (méthode MCRT), initié dans les travaux de Rousseau *et al.* [2007a] pour déterminer l'émittance normale de verres de silice à bulles tomographiés. Il a été par la suite utilisé par les mêmes auteurs [Rousseau *et al.*, 2011] pour étudier l'influence de la texture de ces mêmes verres sur leurs propriétés radiatives, puis implémenté au sein du logiciel iMorph (iMorphRad) pour le calcul des propriétés radiatives des mousses [Rousseau *et al.*, 2012]. Cette approche nécessite la connaissance de la reconstruction 3D de la mousse (à partir d'images tomographiques ou numériquement générées), ainsi que celle de ses propriétés optiques effectives ($\tilde{n} = n + ik$). La contribution de ce travail de thèse au module iMorphRad sera constituée par l'ajout du calcul d'indicateurs statistiques permettant une compréhension plus fine du transfert radiatif au sein des mousses. Nous allons dans un premier temps exposer le principe de la méthode MCRT, puis nous définirons et développerons les indicateurs que nous venons d'évoquer.

L'objectif de la méthode est de calculer les flux radiatifs φ_{λ} sortant d'un échantillon numérique de mousse au travers des différentes faces de la zone cubique (appelée par la suite Region Of Interest, ou ROI) dans laquelle l'interface fluide/solide est contenue. Nous allons à présent décrire comment ces flux sont calculés, puis comment les propriétés radiatives R_{NH} , T_{NH} et A_N en sont ensuite déduites. La formulation intégrale de la méthode est décrite dans un article publié [Guévelou *et al.*, 2016] résultant de ces travaux. L'indice λ signifie ici que l'ensemble de la méthode décrite ci-dessous permet de calculer une grandeur spectrale, ou monochromatique. En d'autres termes, si l'on souhaite déterminer R_{NH} , T_{NH} ou A_N sur l'ensemble d'un spectre, il convient de réaliser un calcul par longueur d'onde souhaitée. À chaque nouvelle longueur d'onde, on confère à la phase solide les *n* et *k* lui correspondant.

Un grand nombre (dénoté par la suite N_r) de rayons sont lancés à partir d'une zone de tir que nous appellerons spot d'entrée. La position d'un rayon est tirée aléatoirement et uniformément sur la surface du spot d'entrée dont la forme et la taille peuvent être paramétrées. En ce qui concerne les directions de ces rayons, le spot peut être collimaté avec un angle d'incidence paramétrable, ou décollimaté. Malgré ces options, l'ensemble des simulations menées lors de ce travail de thèse seront faites avec un spot collimaté d'incidence normale, circulaire et inscrit à la face carrée de la ROI cubique, de manière à reproduire les conditions expérimentales caractéristiques d'une mesure par spectrométrie infrarouge. L'énergie transportée par chaque rayon est initialisée à une valeur unitaire. Celle-ci n'a pas d'importance étant donné que les bilans radiatifs sont normalisés par rapport à l'énergie totale apportée au système via le spot. Le flux entrant fourni par le spot, qui correspond à cette quantité d'énergie totale fournie au système, sera dénoté $\varphi_{I,\lambda}$.

Dans la suite de cette description, nous considérerons la configuration suivante : la face d'entrée à laquelle est appliquée le spot sera la face 0; la face opposée à cette face d'entrée sera la face 5; les faces latérales restantes seront les faces 1, 2, 3 et 4. Cette configuration est illustrée par la figure 4.2 (a).

Ensuite, la trajectoire de chaque rayon est suivie au sein des voxels contenant la reconstruction 3D de l'interface de la mousse. Cette tâche est effectués via les méthodes décrites dans les sections précédentes : les rayons sont propagés de manière rectiligne dans la phase fluide considérée totalement transparente via une méthode de type traversal voxel (décrite en section 4.1.3). L'interaction d'un rayon avec la phase solide suit un modèle spéculaire dont la réflectivité ρ est donnée par la loi de Snell (voir section 4.1.4). Lors de chaque événement de réflexion, le rayon perd une proportion d'énergie égale à 1- ρ par rapport à l'énergie qui est la sienne avant l'impact. Cette quantité d'énergie est


FIGURE 4.2 – Propagation et collecte du rayonnement au sein de la reconstruction 3D de la mousse : (a) positionnement du spot et des faces de la ROI, (b) coupe 2D et visualisation des trajectoires des rayons contribuant aux différentes grandeurs mesurées (bleu : rayons contribuant à $R_{\rm NH}$, vert, à la $T_{\rm NH}$, orange pour les rayons absorbés par la phase solide).

considérée absorbée par la phase solide et peut être stockée en mémoire pour chaque élément de surface. Nous verrons d'ailleurs que cette possibilité est essentielle pour le calcul des profils de l'énergie absorbée détaillé en section 4.3.2.

Les rayons subissent de multiples réflexions jusqu'à ce que : (i) ils sortent de l'échantillon numérique via la face soumise au rayonnement (face 1), la face opposée (face 5) ou les faces latérales de la ROI (faces 1, 2, 3 ou 4) ; ou (ii) ils soient absorbés (la valeur de l'énergie qu'ils transportent devient inférieure à un critère d'extinction). Dès qu'un rayon sort de l'échantillon numérique, l'énergie qu'il transporte contribue au calcul du flux radiatif au travers de la face concernée. Ainsi les flux au travers de chaque face $\varphi_{0,\lambda}$, $\varphi_{1,\lambda}$, $\varphi_{2,\lambda}$, $\varphi_{3,\lambda}$, $\varphi_{4,\lambda}$ et $\varphi_{5,\lambda}$ sont calculés. À partir de ces flux, il est désormais possible de calculer les flux réfléchis $\varphi_{r,\lambda} = \varphi_{0,\lambda}$, et transmis $\varphi_{t,\lambda} = \varphi_{1,\lambda} + \varphi_{2,\lambda} + \varphi_{3,\lambda} + \varphi_{4,\lambda} + \varphi_{5,\lambda}$. Enfin à partir de ces derniers, nous obtenons $R_{NH} = \varphi_{r,\lambda}/\varphi_{I,\lambda}$ et $T_{NH} = \varphi_{t,\lambda}/\varphi_{I,\lambda}$, puis finalement $A_N = 1 - R_{NH} - T_{NH}$. La figure 4.2 (b) montre différents cas de figure pour la sortie d'un rayon et la contribution aux grandeurs radiatives qui en découle. L'organigramme représenté en figure 4.3 récapitule les différentes étapes de traitement que subit un rayon.

4.2.1 Validation du code MCRT

4.2.1.a Convergence de l'algorithme

Afin de s'assurer de la validité de la méthode MCRT, les variances des estimateurs de Monte Carlo que représentent $R_{\rm NH}$ et $T_{\rm NH}$ ont été calculées pour des simulations réalisées sur la reconstruction 3D de la mousse de référence avec un nombre de rayons utilisés (N_r) croissant. Plusieurs calculs successifs on été réalisés avec un nombre de rayons croissant : 10, 10², 10³, 10⁴, 10⁵ et enfin 10⁶. La figure 4.4 montre l'évolution de la variance de $R_{\rm NH}$ et $T_{\rm NH}$ en fonction du nombre de rayons utilisés.

L'évolution de la variance de $R_{\rm NH}$ et $T_{\rm NH}$ montre que l'intervalle de confiance de 99 %



FIGURE 4.3 – Description de l'algorithme MCRT.



FIGURE 4.4 – Évolution de la variance de R_{NH} et T_{NH} en fonction du nombre de rayons utilisés.

pour chacun de ces estimateurs est atteint dès que l'on utilise 10^4 rayons. Par prudence, nous utiliserons tout de même N_r = 10^5 rayons pour l'ensemble des calculs menés dans la suite de ce travail de thèse.

4.2.1.b Application à une lame opaque optiquement polie

Afin de valider le code sur un échantillon plan dans un premier temps, un calcul MCRT a été réalisé avec $N_r = 10^5$ rayons d'incidence normale sur une surface plane. Par la suite, nous désignerons le résultat de ce calcul comme étant l'absorptance normale $A_{N,b}$ du matériau bulk. La valeur obtenue pour $A_{N,b}$ pour les propriétés optiques *n* et *k* de l' α -SiC à $\omega = 2500$ cm⁻¹ est égale à 0,893. Cette valeur a été comparée avec celle fournie par la relation liant l'émissivité d'un bulk E_b théorique (à l'équilibre thermodynamique local, la loi de Kirchhoff stipule que $E_b = A_{N,b}$, voir section 3.1.4) aux propriétés optiques du matériau le constituant [Howell *et al.*, 2011] :

$$\mathcal{E}_b = \frac{4n}{(n+1)^2 + k^2} = \mathcal{A}_{\mathrm{N},b}.$$
(4.2)

 E_b est égale à la valeur de $A_{N,b}$ calculée via le code MCRT, ce qui valide cet outil pour un échantillon plan. Cette validation a également été réalisée pour 8 autres couples *n* et *k* synthétiques (couples introduits en chapitre 6, tableau 6.4) permettant de simuler des matériaux opaques très absorbants ou très réfléchissants (valeurs de réflectivité ρ_m variées, cette notion étant définie en section 4.3.1). Le tableau 4.1 compare les valeurs E_b théoriques calculées avec les résultats obtenus via le calcul MCRT sur échantillon plan avec les mêmes *n* et *k*.

Couple n°	nombre d'onde	n	k	ρ_m	$E_b = A_{N,b}$ théorique	A _{N,b} MCRT
	cm^{-1}					
1	2500	1,70	0,57	0,137	0,893	0,893
2	synthétique	1,5	0,5	0,114	0,923	0,923
3	synthétique	2,5	1	0,269	0,754	0,754
4	synthétique	2	2	0,400	0,615	0,615
5	synthétique	2,5	3	0,529	0,470	0,470
6	synthétique	2,5	4	0,637	0,354	0,354
7	synthétique	2,5	5	0,718	0,268	0,268
8	synthétique	2	6	0,809	0,178	0,178
9	synthétique	1,5	8	0,905	0,085	0,085

TABLEAU 4.1 – Comparaison entre $E_b = A_{N,b}$ théorique et le calcul MCRT de $A_{N,b}$ pour diverses réflectivités moyennes :

Cette comparaison montre un accord parfait entre la simulation sur l'échantillon plan et la valeur de $A_{N,b}$, et ce, pour n'importe quelle valeur de ρ_m .

4.2.1.c Application à la mousse de référence en SiC

Afin de valider le code MCRT sur une mousse, les réflectances et transmittances normales hémisphériques, R_{NH} et T_{NH} , ont été calculées, à la fois pour la reconstruction 3D obtenue à partir de la µ-tomographie de la mousse de référence (voir figure 5.10 (a)) ainsi que pour la mousse virtuelle la reproduisant (voir figure 5.10 (b)). Pour ces calculs, les valeurs de *n* et *k* identifiés de 250 à 25000 cm⁻¹ à partir de mesures de réflectivité normale sur une collection de brins extraits de la mousse via la méthode décrite en annexe B (voir également la section 3.2) ont été utilisés. Parallèlement, des mesures de R_{NH} et T_{NH} ont été réalisées à température ambiante. Les sphères intégrantes ainsi que le spectromètre utilisés sont décrits plus précisément en section 3.3.2. Le rayon incident est collimaté, dépolarisé et possède un diamètre de 6 mm. La distribution de l'énergie incidente est uniforme sur la surface du faisceau. Ces propriétés correspondent bien au spot numérique utilisé pour la simulation MCRT (voir section 4.2). La comparaison entre l'absorptance normale spectrale mesurée et les simulations, à la fois sur une mousse réelle reconstruite à partir des images tomographiques et sur celles virtuellement générées, montre une bonne concordance pour une majeure partie du spectre (voir figure 4.5).



FIGURE 4.5 – Comparaison entre : (1) le spectre de l'absorptance normale mesurée, A_N, à T = 300 K pour la mousse d' α -SiC de référence (échantillon cubique de 12 mm de côté, de p = 0,7), (2) calcul MCRT du spectre de A_N (N_{rays} = 10⁶, diamètre du faisceau incident = 10 mm) sur la reconstruction 3D obtenue à partir de la µ-tomographie de la mousse de référence (voir figure 5.10 (a)), (3) calcul MCRT du spectre de A_N (N_{rays} = 10⁶, diamètre du faisceau incident = 10 mm) sur la reconstruction 3D de l'échantillon virtuellement généré (voir figure 5.10 (b), en section 5.3.2.a).

La bande de Restrahlen due au phonon le plus élevé caractéristique de l' α -SiC est bien reproduite, mais avec un léger désagrément pour les nombres d'ondes situés aux alentours de 1000 cm⁻¹. Pour cette gamme spectrale, l'allure du spectre dépend des valeurs exactes des paramètres utilisés pour simuler le poids optique du plasmon sur-amorti, généralement appliqués pour des échantillons d' α -SiC fortement dopés [Klein *et al.*, 1972]. La forte absorption révélée par le spectre est typique d'un plasmon sur-amorti pour les nombres d'ondes les plus élevés ([1000-25000] cm⁻¹), comme il est attendu pour les matériaux faiblement conducteurs.

Le calcul MCRT du spectre de A_N réalisé sur la reconstruction 3D de l'échantillon de la mousse de référence à été ensuite comparé à celui réalisé sur un échantillon plan. La figure 4.6 représente la superposition de ces deux spectres.



FIGURE 4.6 – Comparaison entre le calcul MCRT du spectre de A_N ($N_{rays} = 10^6$, diamètre du faisceau incident = 10 mm) sur la reconstruction 3D de la mousse de référence (voir figure 5.10 (en rouge)) et le calcul MCRT du spectre de A_N ($N_{rays} = 10^6$, diamètre du faisceau incident = 10 mm) sur un échantillon plan (en bleu).

On observe qu'un gain non négligeable est obtenu sur l'ensemble du spectre de A_N pour la reconstruction 3D de la mousse de référence. Une mousse peut être vue comme un assemblage de 3D de lames (brins) opaques. Le gain est expliqué par la pénétration du rayonnement au sein de la mousse qui favorise les multiples réflexions sur ces brins, et augmente de ce fait la proportion de rayonnement absorbée par l'échantillon.

4.3 Analyse statistique du transport de rayons

L'algorithme MCRT permet également de disposer de nombreuses données statistiques liées au transport du rayonnement au sein d'une mousse. Nous verrons dans le chapitre suivant que ces informations permettent une meilleure compréhension des bilans radiatifs permettant le calcul de R_{NH} , T_{NH} et A_N , ainsi que leur dépendance aux propriétés texturales. Cette brève section vise à décrire quelles données sont collectées, et comment elles le sont.

Le chemin optique parcouru par un rayon est défini par la trajectoire que celui-ci a suivi depuis son point d'émission au niveau du spot jusqu'à : (i) sa sortie du système par l'une des faces de la ROI; (ii) son extinction par absorption (lorsque la valeur de l'énergie qu'il transporte devient inférieure au critère d'extinction). La figure 4.2 (b) illustre quelques chemins optiques dans ces différents cas. L'analyse statistique du transport consiste dans ce travail à stocker en mémoire et à restituer un maximum d'informations sur la totalité des chemins optiques produit lors d'un calcul MCRT.

Les paramètres stockés en mémoire pour un chemin optique donné sont les suivants :

- la nature de l'issue du chemin optique : 6 cas sont à différencier (sorties par la face 0, 1, 2, 3, 4, ou 5, voir schéma d'une ROI), ou bien une extinction au sein de la ROI,
- le nombre d'impacts (réflexions) N_{*imp*} subis par le rayon sur le chemin optique,
- la série de distances des libres parcours moyens entre 2 réflexions sur la phase solide,
- la série de valeurs des réflectivités locales ρ_i calculées par le modèle à chaque événement de réflexion,
- l'énergie déposée à chaque impact (quantité calculée grâce à la valeur de ρ_i correspondante). Celle-ci est stockée en mémoire au niveau de la facette.

4.3.1 Calcul de la réflectivité locale moyenne ρ_m et de la distribution des angles d'incidence θ_i

La réflectivité locale moyenne ρ_m est une grandeur statistique calculée lors de chaque application de la méthode MCRT. Celle-ci correspond à la moyenne, sur l'ensemble des événements de réflexion d'un rayon sur l'interface ayant eu lieu au cours d'un calcul MCRT, de la réflectivité donnée par la loi de Snell (voir section 3.2.2). La connaissance de cette grandeur nous sera utile pour l'établissement d'une loi liant l'absorptance normale A_N aux paramètres texturaux de la mousse présentée en section 6.3.5.

Considérons le chemin optique d'un rayon donné, au cours duquel celui-ci a subi N_{imp} réflexions successives. Ce chemin optique est représenté en figure 4.7.



FIGURE 4.7 – Calcul de la réflectivité moyenne d'interface $\rho_{m,path}$ le long d'un chemin optique donné.

La réflectivité locale moyenne associée à ce chemin $\rho_{m,path}$ est donnée par :

$$\rho_{m,path} = \frac{1}{N_{imp}} \sum_{1}^{N_{imp}} \rho_i \tag{4.3}$$

avec N_{imp} = 4 dans la configuration décrite par la figure 4.7.

Pour calculer la valeur de ρ_m relative à un calcul MCRT réalisé avec un grand nombre de rayons, la moyenne de l'ensemble des ρ_i obtenus à chaque événement de réflexion

ayant eu lieu au long de la totalité des chemins optiques sera faite. Ce calcul est par conséquent mené indépendamment de la nature de l'issue du chemin optique des rayons (absorption, faces de sortie, etc). ρ_m représente donc une grandeur statistique dépendant des propriétés optiques de la phase solide ainsi que de la distribution des angles d'incidence θ_i sur la phase solide. Ces derniers constituent en effet un paramètre d'entrée pour le calcul de la réflectivité spéculaire via la loi de Snell donnant les valeurs successives de ρ_i .

L'étude du lien entre ρ_m et la texture de la mousse constitue un point crucial qui sera également abordé en section 6.3.5. Comme nous venons de l'évoquer, ρ_m dépend de la texture de la mousse uniquement au travers de la distribution des angles d'incidence des rayons θ_i . Celle-ci peut être calculée en stockant en mémoire l'angle d'incidence du rayon sur l'élément de surface de l'interface à chaque événement de réflexion ayant eu lieu au cours d'un calcul MCRT. De plus, en considérant le nombre d'impacts N_{*imp*} subis par le rayon, il est possible de calculer les contributions de chaque impact à la distribution des angles d'incidence. Il est alors possible d'obtenir une distribution des angles d'incidence prenant seulement en compte les rayons impactant une première fois la phase solide, ou bien une deuxième fois, etc.

4.3.2 Calcul des profils de l'énergie absorbée selon z

La profondeur à laquelle pénètre le rayonnement au sein d'une mousse constitue une caractéristique importante des absorbeurs volumétriques. Lors d'un calcul MCRT, nous avons vu que l'énergie absorbée par chaque facette faisant partie de l'interface est accumulée et stockée en mémoire. La figure 4.8 montre (pour un échantillon d'épaisseur *z* réduite) la reconstruction 3D de la mousse réelle sur laquelle l'énergie absorbée par chaque facette a été affichée avec une échelle arbitraire.



FIGURE 4.8 – Énergie absorbée (échelle de couleur arbitraire) sur la reconstruction 3D de la mousse réelle de référence (MCRT avec N_r = 3 × 10⁵, *n* et *k* de l' α -SiC à 2500 cm⁻¹). Schéma du plan de collecte permettant le calcul de $e_{abs}(z)$.

Il est donc possible de relever, pour chaque valeur de la profondeur z, l'énergie totale

ayant été absorbée par les facettes interceptées par le plan (x0y) en cette abscisse z. Ce plan est représenté en figure 4.8. Par souci de clarté pour la représentation de ces profils, l'énergie absorbée sur 4 plans z successifs est additionnée.

Chaque point de $e_{abs}(z)$ correspond donc à l'énergie absorbée par les facettes contenues dans les voxels des plans ($x \ 0 \ y$) aux abscisses z, z+1, z+2, z+4 (si z est la profondeur exprimée en voxel), ou, en d'autre termes, à l'énergie absorbée par la mousse entre z et $z + 4 \times R_{vox} \mu m$ (avec R_{vox} la résolution voxélique en μm , si z est la profondeur exprimée en μm). Enfin, chaque valeur est normalisée par rapport à l'ensemble de l'énergie absorbée par la mousse lors du calcul MCRT, qui n'est autre que l'absorptance normale A_N . Chaque point des profils $e_{abs}(z)$ représente donc la fraction de l'absorptance venant des événements d'absorption ayant eu lieu entre entre z et $z + 4 \times R_{vox} \mu m$. De la même manière que pour la distribution des angles d'incidence précédemment introduite, il est également possible de calculer les contributions de chaque impact dans les profils $e_{abs}(z)$ présentés ci-dessus. Ainsi, on obtient des profils $e_{abs}(z)$ pour tous les premiers impacts, pour tous les seconds impacts, etc.

L'ensemble de ces profils permettent une bonne compréhension de la manière dont l'énergie est absorbée par la mousse. Pour obtenir des informations exploitables de manière plus quantitative, les profils cumulés de l'énergie totale absorbée selon z, dénotés $e_{abs,c}(z)$, peuvent être également calculés simplement en cumulant les profils $e_{abs}(z)$ selon l'axe z. Dans ce dernier cas, les profils $e_{abs,c}(z)$ ne sont pas normalisés par rapport à l'ensemble de l'énergie totale absorbée, mais plutôt par rapport à l'ensemble de l'énergie envoyée dans la mousse via le spot. De cette manière, les profils $e_{abs,c}(z)$ permettent de visualiser l'ensemble de l'énergie absorbée par rapport à l'ensemble de l'énergie incidente, ainsi que la profondeur à partir de laquelle la majorité du rayonnement est absorbé. Si l'on se place aux z élevés, $e_{abs,c}(z)$ correspond dans ce cas à l'absorptance normale de l'échantillon de mousse.

4.4 Méthode d'identification des propriétés radiatives homogénéisées à partir des fonctions de distribution radiatives (RDFI)

La méthode que nous allons à présent exposer permet l'identification des propriétés radiatives volumétriques (coefficients d'extinction β , d'absorption α et de diffusion σ , fonction de phase de diffusion Φ) à partir des fonctions de distribution radiatives. Celleci, que nous appellerons par la suite méthode RDFI (pour Radiative Distribution Fonction Identification) a été initialement développée par Tancrez et Taine [2004], puis reprise dans de nombreux travaux (Haussener *et al.* [2010]; Petrasch *et al.* [2007]; Zarrouati *et al.* [2013]; Zeghondy *et al.* [2006], cette liste étant non exhaustive). Elle s'applique aux milieux poreux, à partir du moment où ceux-ci peuvent être assimilés à un milieu semi-transparent homogène équivalent. La méthode se limite cependant aux milieux poreux dans lesquels la propagation du rayonnement suit les lois de l'optique géométrique. Cette hypothèse est valide dans le cadre de ce travail, dans la mesure ou le diamètre moyen de cellule *d_{nom}* est supérieur aux longueurs d'ondes de la gamme considérée. L'un des intérêts de cette approche est qu'elle fournit un critère quantitatif pour la validation de l'hypothèse de milieu homogène équivalent. Celui-ci permet de vérifier si le milieu peut être qualifié de Beerien, en d'autre termes, si celui-ci peut être assimilé à un milieu homogène équivalent dans lequel la loi de Beer-Lambert 3.34 est respectée. Le principe de la méthode sera premièrement exposé, puis nous l'illustrerons et la validerons en l'appliquant à l'échantillon de mousse de référence.

4.4.1 Identification du coefficient d'extinction

La méthode consiste à lancer un grand nombre de rayons, émis à partir de points M aléatoirement et uniformément distribués dans la phase fluide, au sein d'une zone de tir cubique suffisamment grande pour être représentative, et suffisamment petite pour être éloignée des bords du volume de l'échantillon total (voir figure 4.9 (a) et (b)). Leur direction est également choisie de manière aléatoire sur l'ensemble de la sphère (4π stéradian).



FIGURE 4.9 – (a) Schéma de la zone de tir pour la méthode RDFI, (b) coupe 2D de la zone avec les trajectoires des rayons.

Comme dans notre étude la phase fluide est considérée comme totalement transparente, les phénomènes d'extinction sont donc uniquement dépendants de la phase solide et de sa répartition dans l'espace. La principale hypothèse de la méthode consiste alors à considérer que l'extinction totale dans une direction donnée d'un rayon se propageant (dans cette même direction donnée) survient lors de son premier impact sur un élément de surface de la phase solide au point I . En effet, d'un point de vue physique, l'extinction totale du rayon dans la direction considérée ($\mathbf{u} = \overrightarrow{MI}$) a lieu, soit via un phénomène d'absorption par la phase solide, soit via un phénomène de diffusion par réflexion sur la phase solide. L'éventuel rayon réfléchi n'est pas traité, car il est implicitement considéré comme la propagation du rayonnement dans une autre direction (*i. e.* statistiquement pris en compte par un autre rayon tiré aléatoirement par la méthode). Pour chaque rayon r_j , la longueur du chemin optique menant à la collision (*i. e.* à l'extinction), $s_{e,j} = |\overrightarrow{MI}|$, est calculée et stockée en mémoire. La figure 4.10 donne le schéma de la trajectoire d'un rayon.

Pour un grand nombre de rayons (N_r), un ensemble de longueurs de chemins optiques $s_{e,j}$ est obtenu. À partir de cet ensemble, il est possible de calculer la distribution des longueurs de cordes caractérisant le milieu poreux, grandeur bien connue dans le domaine des sciences du matériau [Méring et Tchoubar, 1968]. En regard de l'hypothèse établie précédemment, cette distribution est ici assimilée à une fonction de distribution normalisée d'extinction, dénotée $F_e(s)$ et s'exprimant comme suit :



FIGURE 4.10 – Trajectoire d'un rayon jusqu'au premier impact avec la phase solide et définition des angles.

$$F_{e}(s) = \frac{1}{N_{r}} \sum_{j=1}^{N_{r}} \delta(s - s_{e,j}), \qquad (4.4)$$

avec *s*, l'abscisse à partir du point M, et δ la distribution de Dirac. La fonction de distribution cumulée d'extinction, $G_e(s)$, est ensuite obtenue par intégration de $F_e(s)$:

$$G_e(s) = \int_0^s F_e(s') \, ds'.$$
(4.5)

 $F_e(s)$, ainsi que $G_e(s)$, sont représentées pour une application de la méthode RDFI à la mousse de référence en section suivante (figure 4.11 et figure 4.12 (a)).

À partir des hypothèses précédentes, il est possible de considérer $G_e(s)$ statistiquement équivalente à la décroissance de la luminance dans un milieu semi-transparent homogène caractérisé par un coefficient d'extinction β , le long d'un chemin optique d'abscisse curviligne *s*, qui est traduite par la loi de Beer-Lambert (voir équation 1.1). Ainsi, β peut être identifié à partir de la relation suivante :

$$\frac{L(s)}{L(0)} = 1 - G_e(s) = exp(-\beta s)$$
(4.6)

La méthode RDFI consiste donc à identifier le coefficient d'extinction β via la méthode des moindres carrés des 2 expressions équivalentes (équations 1.1 et 4.6). Le β identifié ainsi correspond donc à celui du milieu semi-transparent continu équivalent.

4.4.2 Identification de coefficient d'absorption

L'identification du coefficient d'absorption α est également possible via cette méthode. Toutefois, elle nécessite la connaissance des propriétés optiques effectives de la phase solide, et plus précisément de la dépendance spectrale de l'indice de réfraction complexe \tilde{n} , et leur prise en compte via un modèle de réflexion. Celui-ci sera le même que celui utilisé pour la méthode MCRT (voir sections 4.1.4 et 3.2.2). En considérant ce modèle de réflexion, l'angle d'incidence sur la facette (déterminée avec la direction du rayon et la normale de la facette) ainsi que les propriétés effectives de la phase solide, la réflectivité de surface ρ est calculée au point de premier impact sur la phase solide. Ensuite, une variable aléatoire x_{rand} comprise entre 0 et 1 est générée puis comparée à ρ . Si $x_{rand} > \rho$, on considère que le rayon est absorbé au point d'impact, et son chemin optique $s_{a,j} = |MI|$ est stocké en mémoire. De manière similaire à $F_e(s)$, on peut ensuite construire la fonction de distribution normalisée d'absorption $F_a(s)$ qui s'écrit :

$$F_a(s) = \frac{1}{N_r} \sum_{j=1}^{N_r} \delta(s - s_{a,j}).$$
(4.7)

Comme pour $G_e(s)$, la fonction de distribution cumulée d'absorption $G_a(s)$ est ensuite obtenue par intégration de $F_a(s)$:

$$G_a(s) = \int_0^s F_a(s') \, ds'.$$
(4.8)

Ensuite, le coefficient d'absorption α peut être identifié via le fitting par méthode des moindres carrés des deux expressions équivalentes suivantes [Zeghondy *et al.*, 2006] :

$$1 - G_a(s) \Leftrightarrow \frac{\alpha}{\beta}(exp(-\beta s)).$$
(4.9)

Le coefficient de diffusion α peut enfin être déduit de la relation triviale $\beta = \alpha + \sigma$. F_{*a*}(*s*) et G_{*a*}(*s*) sont également représentées pour l'application de la méthode RDFI à la mousse de référence en section suivante (figure 4.11 et 4.12 (a)).

4.4.3 Identification de la fonction de phase de diffusion

La fonction de phase de diffusion est définie comme étant la probabilité pour un rayon de direction **u** d'être diffusé dans la direction **u**' (voir sa définition en section 3.4). Dans la méthode RDFI, la réflexion du rayon sur un élément de surface solide constitue le seul événement possible de diffusion. Le modèle utilisé pour le calcul de ρ fournit la direction du rayon réfléchi (**u**_{*r*}, correspondant ici à **u**', étant donné que la diffusion a lieu essentiellement par réflexion). Les angles d'incidence θ_i et de diffusion (par réflexion) θ_s sont donc respectivement donnés par les produits scalaires $\theta_i = -\mathbf{n} \cdot \mathbf{u}$ et $\theta_r = \mathbf{n} \cdot \mathbf{u}_r$. La connaissance de ces angles permet la construction de la fonction de distribution de l'angle d'incidence $F_i(\theta_i)$ ainsi que celle de la fonction de distribution de l'angle de diffusion $F_s(\theta_s)$. Cette dernière donne par définition accès à la fonction de phase de la mousse [Tancrez et Taine, 2004]. L'angle de diffusion θ_s est illustré sur la figure 4.10. $F_s(\theta)$ représente alors le nombre de rayons dont l'angle de diffusion θ_s est compris dans l'intervalle [$\theta, \theta + d\theta$]. Dans ce cas, la fonction de phase de diffusion est donnée par [Coquard et Baillis, 2004] :

$$\Phi(\theta) = \frac{F_s(\theta)}{\frac{1}{4\pi} \int_0^{4\pi} F_s(\theta) \, \mathrm{d}\Omega}.$$
(4.10)

L'intégration dans l'équation 4.10 est réalisé sur toutes les directions de la sphère (4 π stéradians) avec d Ω = sin θ d θ d ϕ . Notons que si F_s(θ) est acquise en tenant compte de l'énergie des rayons (et non de leur simple nombre), l'équation 4.10 correspond à la définition usuelle de la fonction de phase exprimée en termes d'intensité radiative fournie par l'ouvrage de référence de Howell *et al.* [2011]. La fonction de phase est de plus normalisée comme suit :

$$\frac{1}{4\pi} \int_{4\pi}^{0} \Phi(\theta) \, \mathrm{d}\Omega = 1. \tag{4.11}$$

4.4.4 Validation de la méthode RDFI

La méthode RDFI a été appliquée à l'échantillon de mousse de SiC de référence de référence afin d'être validée. Avant d'en présenter les résultats, il est nécessaire de donner quelques précisions sur les différentes étapes de l'identification. Les fonctions de distribution normalisées d'extinction et d'absorption, respectivement F_e et F_a sont tracées sur la figure 4.11 pour l'échantillon de mousse de SiC de référence, avec $N_r=10^6$.



FIGURE 4.11 – Fonctions de distribution normalisées d'extinction F_e et d'absorption F_a pour l'échantillon de mousse de SiC de référence.

La figure 4.12 (a) montre les fonctions de distribution cumulées d'extinction $G_e(s)$ et d'absorption $G_a(s)$, ainsi que les fittings réalisés via les équations 4.6 et 4.9 par la méthode des moindres carrés, respectivement.

Le fitting permettant de retrouver β par identification avec la loi de Beer-Lambert est réalisé en contraignant la méthode des moindres carrés à respecter les conditions aux limites théoriques de la loi de Beer-Lambert (L(s = 0) = 1 et L($s \mapsto \infty$) = 0), ce qui revient à uniquement faire varier le paramètre β , pour parvenir à son identification. De la même manière, une fois β obtenu, on fait varier uniquement σ pour l'identifier à partir de G_a via l'équation 4.9.

L'application de la méthode RDFI est donc rigoureusement possible si et seulement si la réalisation de ces identifications respecte ces contraintes qui sont caractéristiques



FIGURE 4.12 – (a) Fonctions de distribution cumulées d'extinction G_e et d'absorption G_a pour l'échantillon de mousse de SiC de référence. Les fittings réalisés via les équations 4.6 et 4.9 sont représentés en pointillés. En (b), le tracé de $log(1 - G_e(s))$, dont la linéarité permet de s'assurer que le milieu sondé est bien Beerien.

d'un milieu semi-transparent homogène. En d'autres termes, le milieu doit être qualifié de Beerien.

La méthode RDFI, et plus particulièrement la fonction de distribution cumulée d'extinction fournit donc un critère quantitatif permettant de vérifier si un milieu est bien Beerien, et si l'identification des propriétés radiatives homogénéisées est réalisable. Ce critère quantitatif se traduit mathématiquement, d'une part par la qualité des conditions aux limites, et d'autre part par la qualité de l'exponentielle que l'on doit obtenir à partir de l'information statistique sur la géométrie de la mousse que représente G_e. Il peut se vérifier en traçant $log(1 - G_e(s))$, puis en s'assurant de la linéarité du résultat (voir figure 4.12 (b)). Si, par ailleurs, le nombre de rayons tirés est trop faible, ou que le nombre de rayons sortis de l'échantillon total sans avoir rencontré la surface de la mousse est trop élevé (volume de l'échantillon numérique trop limité, zone de tir trop proche des bords de l'échantillon total), l'échantillonnage statistique du milieu est faussé, et l'hypothèse de milieu Beerien ne peut être respectée. Pour cette raison, nous utiliserons toujours dans la suite de ce travail un minimum de $N_r=10^6$ rayons, et les résultats ne seront considérés comme étant valides que lorsque la proportion de rayons sortis sans avoir impacté la phase solide est inférieure à 2 %. Une étude de l'influence de la texture de la mousse sur ce nombre de sorties sera d'ailleurs menée en section 6.3.4.a.

La mousse d' α -SiC peut donc, au vu de la figure 4.12 (b), être considérée comme un milieu Beerien, et l'identification de β est facilitée par une très bonne correspondance entre la loi de Beer-Lambert et G_e. Le coefficient d'extinction β identifié pour la mousse de référence est égal à 10,81 cm⁻¹, donnant un libre parcours moyen d'extinction de β^{-1} égal à 925 µm. Cette valeur est proche de celle du diamètre nominal de cellule mesuré sur la mousse de référence ($d_{nom} = 1290$ µm, voir tableau 4.2). Le coefficient d'absorption à été calculé pour les valeurs de \tilde{n} de l' α -SiC à $\omega = 2500$ cm⁻¹. Cette longueur d'onde correspond à une partie régulière et étendue du spectre de réflectivité de l' α -SiC allant de l'infrarouge moyen au visible, caractéristique de la forte absorption le caractérisant. Le coefficient d'absorption α^{-1} égal à 1089 µm. On peut comparer cette valeur à celle caractérisant un bulk d' α -SiC, α_{bulk} , qui est fournie par l'expression suivante : $\alpha_{bulk} = 4\pi k/\lambda$.

Ici, α_{bulk} est égal à 6360 cm⁻¹, ce qui bien plus élevé que le coefficient d'absorption de la mousse que nous venons d'identifier. Ce fait est révélateur de la forte influence de la texture de la mousse sur ses propriétés radiatives. La valeur déduite du coefficient de diffusion ($\sigma = 1,62$ cm⁻¹) montre que l'absorption domine très fortement la diffusion.

Ces résultats ont été comparés à la corrélation initialement établie par Hsu et Howell [1992], puis ajustée par Hendricks et Howell [1996] (voir équation 6.5). Ce modèle donne $\beta = 11,30 \text{ cm}^{-1}$. Petrasch *et al.* [2007] ont trouvé des résultats comparables pour des mousses en SiC réticulées à T = 300 K (10 PPI, *p* = 0,9). Haussener *et al.* [2010] ont également trouvé des valeurs du même ordre de grandeur, pour des mousses de SiSiC à 20 PPI et $d_{nom} = 1270 \text{ µm}$.



FIGURE 4.13 – Fonction de phase de diffusion obtenue sur la mousse de référence avec un modèle de réflexion spéculaire.

La fonction de phase de diffusion témoigne d'un comportement fortement rétro-diffusant, ce qui est tout à fait logique étant donnée l'opacité du matériau. Ce résultat rejoint les conclusions de Haussener *et al.* [2010], mais aussi celles de Petrasch *et al.* [2007] dont les travaux concernent des mousses de SiC.

4.5 Conclusions

Ce chapitre a été l'occasion de détailler les développements numériques effectués au cours de cette thèse concernant la prédiction des propriétés radiatives. Deux approches ont été exposées : un code permettant la prédiction de la réflectance normale hémisphérique R_{NH} , de la transmittance normale hémisphérique T_{NH} , et de l'absorptance normale A_N , par lancer de rayons via une méthode de Monte Carlo (méthode MCRT) ; une méthode d'identification à partir des fonctions de distribution radiatives (méthode RDFI), elles aussi calculées par lancer de rayons, permettant la prédiction des propriétés radiatives homogénéisées (β , α , σ et Φ). Les algorithmes de lancer de rayons développés sont basés sur une approche de type traversal voxel optimisée, et nécessitent la reconstruction 3D de l'interface, réalisée par un algorithme de Marching-Cubes, ainsi que la connaissance des indices optiques effectifs de la phase solide.

Nous avons dans un premier temps démontré que la méthode MCRT permet bien de retrouver les valeurs de l'absorptance normale théorique dans le cas d'un échantillon plan, et ce, pour divers matériaux synthétiques. La méthode MCRT a été ensuite été appliquée sur la reconstruction 3D de l'interface de la mousse d' α -SiC de référence. Les résultats fournis par le code MCRT ont été confrontés aux mesures expérimentales réalisées sur l'échantillon réel dont est extrait la reconstruction 3D. Un bon accord est obtenu entre les données mesurées et celles issues de la simulation sur l'ensemble du spectre, validant ainsi la méthode sur une géométrie de type mousse. Cette étude a également permis de mettre en évidence le gain sur l'absorptance normale que procure naturellement ce type de géométrie par rapport à un échantillon plan.

Dans un second temps, la méthode RDFI est à son tour appliquée à la reconstruction de la mousse de référence. Il est démontré quantitativement que la mousse peut être considérée comme un milieu Beerien (dans lequel l'extinction peut être donnée par la loi de Beer). Les résultats obtenus par la méthode RDFI sont ensuite comparés, avec là aussi un bon accord avec ceux fournis par la littérature. Les propriétés radiatives calculées sur la reconstruction de l'échantillon numérique de la mousse de référence sont récapitulées dans le tableau suivant :

TABLEAU 4.2 – Propriétés radiatives de la mousse de référence :

$A_{\rm N} (\omega = 2500 \ {\rm cm}^{-1})$	0,94
β	$10,81 \text{ cm}^{-1}$
α	$9,18 \mathrm{cm}^{-1}$
σ	$1,62 \mathrm{cm}^{-1}$
ω_d	0,15

Le chapitre suivant consistera à présenter la méthode numérique de génération de mousses qui constitue le dernier outil requis pour la fonctionnalisation des propriétés radiatives des mousses.

4.6 Références

- AMANATIDES, J. et WOO, A. (1987). A fast voxel traversal algorithm for ray tracing. *In Proceedings of EuroGraphics*'87, pages pp. 3–9. 96
- BORN, M. et WOLF, E. (1999). Principles of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light 7th Edition. 97
- COQUARD, R. et BAILLIS, D. (2004). Radiative characteristics of opaque spherical particles beds : A new method of prediction. *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*, 18(2): pp. 178–186. 94, 109
- FUJIMOTO, A. et IWATA, K. (1985). Accelerated ray tracing. *In* KUNII, T., éditeur : *Computer Graphics*, pages 41–65. Springer Japan. 96
- GLASSNER, A. (1984). Space subdivision for fast ray tracing. *Computer Graphics and Applications, IEEE*, 4(10):15–24. 96
- GUÉVELOU, S., ROUSSEAU, B., DOMINGUES, G., VICENTE, J. et CALIOT, C. (2016). Representative elementary volumes required to characterize the normal spectral emittance of silicon carbide foams used as volumetric solar absorbers. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 93:118 – 129. 98
- HAUSSENER, S., CORAY, P., LIPIŃSKI, W., WYSS, P. et STEINFELD, A. (2010). Tomographybased heat and mass transfer characterization of reticulate porous ceramics for hightemperature processing. *Journal of Heat Transfer*, 132(2):023305. 106, 112
- HENDRICKS, T. J. et HOWELL, J. R. (1996). Absorption/scattering coefficients and scattering phase functions in reticulated porous ceramics. *Journal of Heat Transfer*, 118(1):79–87. 112
- HOWELL, J. R., SIEGEL, R. et PINAR MENGÜC, M. (2011). *Thermal Radiation Heat Transfer Fifth Edition.* CRC Press. 101, 110
- HSU, P. F. et HOWELL, J. R. (1992). Measurements of thermal conductivity and optical properties of porous partially stabilized zirconia. *Experimental Heat Transfer*, 5(4):293–313. 112
- KLEIN, M. V., GANGULY, B. N. et COLWELL, P. J. (1972). Theoretical and experimental study of Raman scattering from coupled LO-Phonon-Plasmon modes in silicon carbide. *Phys. Rev. B*, 6:2380–2388. 102
- LORENSEN, W. E. et CLINE, H. E. (1987). Marching cubes : A high resolution 3d surface construction algorithm. *SIGGRAPH Comput. Graph.*, 21(4):163–169. 94
- MÉRING, J. et TCHOUBAR, D. (1968). Interprétation de la diffusion centrale des rayons X par les systèmes poreux. I. *Journal of Applied Crystallography*, 1(3):153–165. 107
- PETRASCH, J., WYSS, P. et STEINFELD, A. (2007). Tomography-based Monte-Carlo determination of radiative properties of reticulate porous ceramics. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 105(2):180–197. 106, 112
- ROUSSEAU, B., de SOUSA MENESES, D., ECHEGUT, P., DI MICHIEL, M. et THOVERT, J.-F. (2007a). Prediction of the thermal radiative properties of an x-ray tomographied porous silica glass. *Applied Optics*, 46(20):4266–4276. 94, 98

- ROUSSEAU, B., DE SOUSA MENESES, D., ECHEGUT, P. et THOVERT, J.-F. (2011). Textural parameters influencing the radiative properties of a semitransparent porous media. *International Journal of Thermal Sciences*, 50(2):178–186. 98
- ROUSSEAU, B., MICHIEL, M. D., CANIZARES, A., MENESES, D. D. S., ECHEGUT, P. et THO-VERT, J. F. (2007b). 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. 97
- ROUSSEAU, B., ROLLAND, J. Y., ECHEGUT, P., BRUN, E. et VICENTE, J. (2012). Numerical prediction of the radiative behavior of metallic foams from the microscopic to macro-scopic scale. *Journal of Physics : Conference Series*, 369(1):012003. 98
- TANCREZ, M. et TAINE, J. (2004). Direct identification of absorption and scattering coefficients and phase function of a porous medium by a Monte Carlo technique. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 47(2):373–383. 94, 106, 109
- ZARROUATI, M., ENGUEHARD, F. et TAINE, J. (2013). Statistical characterization of nearwall radiative properties of a statistically non-homogeneous and anisotropic porous medium. *International journal of heat and mass transfer*, 67:776–783. 106
- ZEGHONDY, B., IACONA, E. et TAINE, J. (2006). Determination of the anisotropic radiative properties of a porous material by radiative distribution function identification (RDFI). *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 49(17-18):2810–2819. 106, 109

Chapitre 5

Génération numérique de mousses

Sommaire

5.1	Choix de la méthode 118					
5.2	Méthode de génération 120					
	5.2.1	Ensemencement 120				
	5.2.2	Segmentation de Voronoï des cellules				
	5.2.3	Extraction du squelette de la phase solide				
	5.2.4	Mise en forme des brins par éléments structurants 126				
	5.2.5	Ajustement de la porosité 127				
5.3	Appli	cation de la méthode de génération aux mousses de SiC et validation129				
	5.3.1	Validation du générateur				
	5.3.2	Paramètres de génération				
5.4	Conc	lusions				
5.5	5 Références					

Les enjeux de ce travail de thèse, les propriétés texturales et radiatives des mousses qui nous intéressent, ainsi que les méthodes nous permettant de les caractériser ont été précisément définis dans les chapitres précédents. Malgré les possibilités qu'offrent l'ensemble de ces outils, l'étude des liens entre la texture et les propriétés radiatives des mousses reste toutefois compromise par la faible diversité des géométries des mousses qui sont à notre disposition. Plus particulièrement dans le cadre de ce travail, le procédé industriel de fabrication des mousses de carbure de silicium par réplication fait que les géométries obtenues sont conditionnées par celles des mousses de polyuréthane utilisées en tant que précurseurs (voir section 2.2). Or, le procédé de fabrication par bullage de celles-ci ne permet pas un contrôle aisé des propriétés texturales résultantes. L'obtention de jeux de mousses dont les propriétés texturales (porosité, taille de cellules,...) varient graduellement, et si possible de manière indépendante, afin de pouvoir isoler leurs contributions respectives sur le comportement radiatif, est de ce fait une tâche irréalisable. Quand bien même une bonne maîtrise des procédés serait acquise, fabriquer un grand nombre de mousses pour ensuite acquérir leurs reconstructions 3D numériques via la µ-tomographie par rayons X impliquerait des coûts non négligeables.

Notre objectif est donc de disposer d'une méthode numérique permettant la génération de mousses virtuelles qui viendront se substituer aux reconstructions 3D d'échantillons réels obtenus par tomographie. Cette méthode doit donc procurer un bon contrôle des propriétés texturales, afin de pouvoir générer les jeux de mousses décrits ci-dessus. Les échantillons virtuels doivent de plus présenter des textures réalistes. Ce chapitre est consacré à la présentation de la méthode de génération développée pour répondre à ces objectifs (GenFoam, C++). Quelques exemples des techniques de génération de mousses virtuelles existantes seront tout d'abord exposées. Ceux-ci nous permettront d'orienter le développement de notre méthode. Les différentes étapes mises en œuvre lors du processus de génération seront ensuite exposées. Finalement, nous validerons la méthode en générant un échantillon de mousse virtuelle ayant pour but d'imiter au mieux l'échantillon de la mousse de référence. Nous montrerons par la même occasion les possibilités que le générateur peut nous offrir.

5.1 Choix de la méthode

Dans de nombreux domaines dépassant le cadre de l'étude des propriétés radiatives, les techniques de génération de matériaux virtuels (fibres, mousses, lits de particules...) peuvent être rencontrées. Le contrôle de la texture des matériaux générés constitue le principal intérêt de ce type d'approche. Cette possibilité permet généralement l'obtention de jeux d'échantillons dont la variété rend possible l'étude des influences respectives des propriétés texturales sur une grandeur physique donnée. En ce qui concerne la génération de mousses virtuelles, ces méthodes se différencient des modélisations basées sur des cellules polyédrales car celles-ci procurent un degré de réalisme accru et n'altèrent pas le caractère stochastique des mousses réelles. Parmi les approches qui peuvent être trouvées dans la littérature, nous pouvons tirer quelques exemples représentatifs :

Wang et Pan [2008] ont utilisé un modèle de génération et de croissance aléatoire pour reproduire les microstructures observées sur des mousses à cellules ouvertes. La méthode consiste à réaliser un ensemencement aléatoire des nœuds de la mousses, puis, via un

processus aléatoire, de les lier ou non avec les nœuds voisins afin de construire les brins de la mousse. La figure 5.1 (a) montre un plan de la mousse ainsi obtenue.



FIGURE 5.1 – Différentes techniques de génération de mousses virtuelles : (a) Wang et Pan [2008], (b) Dyck et Straatman [2016] et (c) Zhao et Tang [2016].

Plus récemment, Dyck et Straatman [2015, 2016] ont développé un modèle de génération numérique par ensemencement de sphères. Les diamètres de ces sphères sont tirés aléatoirement à partir d'une distribution normale pour respecter la distribution de taille de cellules de la mousse réelle cible. Les positions des sphères sont ensuite comprimées puis ajustées par une loi de contact pour construire la phase porale (voir figure 5.1 (b)). Zhao et Tang [2016] ont développé une méthode de génération à partir d'un modèle de croissance de bulles dont les positions initiales sont contraintes. La génération est stoppée lorsque la porosité souhaitée est atteinte. La mousse virtuelle obtenue via ce procédé est représentée en figure 5.1 (c).

Toutes ces approches (énumération évidemment non exhaustive) permettent l'obtention de mousses virtuelles aux propriétés texturales plus ou moins contrôlées. Toutefois, l'usage de méthodes similaires dans le cadre de ce travail de thèse semble délicat pour plusieurs raisons : les textures obtenues sont visuellement éloignées de celles de la mousse de référence (voir figure 4.1) ; la morphologie des brins, ainsi que des paramètres texturaux plus fins tels que la forme ou la connectivité moyenne des cellules semblent difficilement contrôlables.

Pour atteindre ces objectifs, nous devons donc privilégier les méthodes permettant l'obtention d'un réseau de cellules à la fois caractéristique des mousses réelles, et facilement contrôlable. Le diamètre de cellule d_{nom} , les distributions associées CSD, CCDD, ainsi que la connectivité moyenne des cellules C_m seront ainsi maîtrisées.

Les approches basées sur l'utilisation de la tesselation de Voronoï, qui permettent de répondre à cette première étape, sont utilisées dans de nombreux travaux pour la génération de mousses virtuelles [Coquard *et al.*, 2013; Randrianalisoa *et al.*, 2013; Redenbach, 2009]. Celle-ci correspond à la segmentation d'un espace réalisée à partir d'un ensemble de points discrets, également appelés graines. La distribution de ces graines dans l'espace, ou ensemencement, assure le contrôle de la segmentation associée. Nous choisirons donc cette dernière approche, puis évaluerons différents ensemencements dans le but de se rapprocher du réseau de cellules présenté par la mousse de référence. Ensuite, à partir des arêtes associées à ce réseau, une étape de mise en forme des brins sera mise en œuvre pour finaliser la génération. Celle-ci permettra en outre l'obtention de la porosité souhaitée avec une bonne précision.

5.2 Méthode de génération

5.2.1 Ensemencement

La première étape du processus de génération de mousses virtuelles consiste à réaliser un ensemencement (ou distribution) des positions des centres (appelés également dans cette partie "graines") des futures cellules au sein d'un volume. Cette étape va conditionner fortement la texture de la mousse générée, dans la mesure où tous les paramètres texturaux, et plus spécialement d_{nom} , la CSD, la CCDD, ainsi que la connectivité moyenne des cellules (définis en section 2.4), seront dépendants de cet arrangement initial. Le degré de régularité du matériau cellulaire généré, traduit par la dispersion de la CSD ou de la CCDD, peut être également contrôlé par l'ensemencement. Plusieurs types de distributions vont être détaillés dans cette section, afin de donner un inventaire le plus large possible des possibilités qu'offre la méthode de génération. La pertinence de l'utilisation de ces différentes techniques pour la génération de mousses céramiques sera ensuite discutée.

5.2.1.a Les différents types d'ensemencements

L'approche la plus basique consiste à réaliser un ensemencement totalement aléatoire. Dans ce cas, les coordonnées x_g , y_g et z_g des positions de chaque graine sont tirées aléatoirement. Le seul paramètre que l'on contrôlera via cette méthode est la densité de cellules, que l'on obtient en connaissant le volume fictif de génération et le nombre initial de graines. Les positions des centres de cellules ainsi ensemencés sont montrées par la figure 5.2 (a).



FIGURE 5.2 – Position des graines pour différents types d'ensemencement réalisés : (a) purement aléatoire, (b) cubique régulier, (c) tétraédrique régulier, (d) cubique perturbé, (e) tétraédrique perturbé, (f) tétraédrique avec perturbation amortie.

Les centres de cellules peuvent être également distribués de manière régulière dans le volume de génération. Plusieurs types de réseaux réguliers ont été testés. Dans ce manuscrit, nous en étudierons deux : les réseaux cubique et tétraédrique. Pour le réseau cubique, les centres de cellules sont disposés de manière régulière le long des trois axes x, y et z, avec un pas d'espacement, que nous appellerons ici le paramètre de maille l_{lat} . Dans le cas du réseau tétraédrique, les centres de cellules doivent être distribués sur un réseau représentant un pavage de triangles équilatéraux de côté l_{lat} dans le plan défini par les axes x et y. Ensuite, ce pavage est répété dans le plan (x,y) suivant, mais décalé de $l_{lat}/2$ suivant x et d'une demi-hauteur du triangle selon y. Les positions des centres distribués suivant ces deux maillages réguliers sont également en illustrées en figure 5.2 (b) et (c), avec le schéma des mailles correspondantes (en rouge).

Pour reproduire des disparités de tailles à partir d'un ensemencement régulier, nous proposons de perturber aléatoirement selon les trois axes chaque position de graine. 3 degrés de perturbations, dénotés $d_{p,x}$, $d_{p,y}$ et $d_{p,z}$ sont aléatoirement tirés avec une amplitude dont la valeur sera dénotée p_g puis appliqués respectivement à x_g , y_g et z_g . Les positions des graines perturbées sont donc prises aléatoirement et sont comprises dans les intervalles suivants $x_g \pm p_g/2$, $y_g \pm p_g/2$ et $z_g \pm p_g/2$. Ces ensemencements sont qualifiés ici de pseudo-aléatoires. Pour ne pas perdre les propriétés du réseau régulier initial, les valeurs des perturbations doivent être grandement inférieures à l_{lat} . Les ensemencements pseudo-aléatoires correspondant aux réseaux cubiques et tétraédriques réalisés avec un rapport entre $p_g/l_{lat} = 2/5$ sont exposés en figure 5.2 (d) et (e). Sur cette figure, les perturbations $d_{p,x}$, $d_{p,y}$ et $d_{p,z}$ sont respectivement représentées par les flèches rouges, vertes et bleues.

Pour se rapprocher un peu plus de la réalité, nous proposons de propager le déplacement de manière amortie d'une graine à ses graines voisines. Cette fois-ci, chaque perturbation d'un centre entraîne également un déplacement de ses plus proches voisins. Les déplacements appliqués à chaque voisin correspondent au même déplacement que celui initialement fourni à la graine centrale, mais d'amplitude divisée par 2. Cette approche nécessite donc l'indexation de chaque centre de cellule ensemencé et la liste de ses voisins les plus proches. Ces informations peuvent être acquises via l'utilisation des procédures issues de iMorph qui permettent de construire le graphe représentant le réseau des cellules et de leur interconnexions (voir section 2.9). La construction de ce graphe nécessite cependant l'identification des voxels des différentes cellules (segmentation des cellules) et des zones de contact qui les séparent. L'ensemble des centres de l'ensemencement sera déplacé de cette manière.

5.2.1.b Influence du choix du réseau de l'ensemencement sur la texture

Dans cette section nous allons à présent discuter de l'impact de chaque technique d'ensemencement sur la texture des mousses virtuelles obtenues. Nous verrons que chacune d'entre elles offre plus ou moins de contrôle sur la texture. Il apparaît trivial que l'utilisation d'un ensemencement aléatoire ne permet au mieux que le contrôle du nombre de cellules par unité de volume. Par conséquent, une valeur moyenne de d_{nom} peut être ciblée mais avec des disparités de taille et des morphologies de cellules peu réalistes.

Dès lors, l'utilisation d'un maillage régulier se justifie : celui-ci permet de contrôler précisément la valeur de distance moyenne entre les centres de cellules (pic de la CCDD) via le choix d'une valeur appropriée pour le paramètre de maille du réseau l_{lat} . De plus, la connectivité moyenne des cellules de la mousse générée peut être contrôlée. Les brins constituant le "négatif" de l'ensemencement dessinent en effet des cellules régulières elles aussi, dont la connectivité moyenne est estimable (par exemple C_m =6 pour un ensemencement cubique simple, 10 pour un ensemencement tétraédrique). Néanmoins, la régularité des réseaux de cellules ainsi généré est peu réaliste si notre objectif est l'imitation de mousses réelles. Ce type d'ensemencement reste toutefois très intéressant pour étudier les possibilités qu'offre l'utilisation de structures poreuses régulières en tant qu'absorbeurs solaires volumétriques.

Une approche plus appropriée consiste alors à conserver la maîtrise procurée par les maillages réguliers, tout en donnant un caractère aléatoire à l'ensemencement. L'utilisation de maillages pseudo-aléatoires permet de répondre à cette attente. La connectivité moyenne C_m des cellules de la mousse générée dépend du type de maillage choisi. Le choix d' un paramètre de maille l_{lat} adapté pour le maillage régulier initial permet ensuite de contrôler la distance moyenne inter-cellules l_{int} , et indirectement la taille moyenne de cellule d_{nom} (respectivement, les positions des pics des distributions CSD et CCDD). La dispersion de ces distributions pourra enfin également être contrôlée par le choix d'une valeur de l'amplitude des perturbations p_g .

Cette dernière technique, qui offre déjà un contrôle satisfaisant des mousses virtuelles, peut toutefois produire des morphologies de cellules assez déformées, présentant des brins très courts (ou trop longs). Ce cas de figure se produit lorsque deux perturbations aléatoires de cellules directement voisines (dans l'ensemencement régulier initial) ont lieu de manière convergente (ou divergente, respectivement). L'arrangement local des cellules n'est alors pas réaliste lorsque l'on compare celui-ci aux structures de cellules du template de polyuréthane, qui est soumis à des lois d'équilibre (tensio-actif / loi de Plateau) lors de sa stabilisation. Pour cette raison, nous utiliserons donc la dernière technique d'ensemencement présentée, qui consiste à appliquer également la perturbation aléatoire aux graines voisines. Une approche idéale aurait consisté à appliquer des calculs de minimisation des tensions interfaciales sur le graphe représentant l'arrangement des graines. Cette dernière approche sera donc retenue pour générer l'ensemble des mousses virtuelles non régulières caractérisées dans la suite de ces travaux, et notamment avec des paramètres adaptés pour valider dans un premier temps le générateur.

5.2.2 Segmentation de Voronoï des cellules

Une fois les centres de cellules distribués selon l'une des techniques précédentes, le calcul de la tesselation (ou segmentation) de Voronoï associée à cette distribution permet de segmenter les voxels en domaines correspondant à chaque cellule de la mousse. Les techniques de type Voronoï sont bien connues de la communauté des milieux poreux pour la génération de matériaux cellulaires virtuels. Dans ce travail de thèse, la segmentation de Voronoï sera réalisée par le biais de 2 algorithmes. Le premier permet de calculer une image 3D contenant ce que nous appellerons la carte de distance : chaque voxel de la carte de distance contient la valeur de la distance le séparant du voxel centre de l'ensemencement le plus proche. Pour réaliser ce calcul de manière efficace, nous proposons d'utiliser l'algorithme de Fast Marching, pour simuler la propagation d'un front, simultanément depuis chaque centre de cellule ensemencé. La vitesse de ce front étant égale à 1, le temps d'arrivée de ce front en chaque point du domaine correspond à la distance entre ce point et le voxel centre de l'ensemencement le plus proche. Dans un second temps, nous utiliserons un algorithme de ligne de partage des eaux (ou Watershed), pour la segmentation des domaines propagés représentés par la carte des distances.

5.2.2.a Calcul de la carte des distances par Fast-Marching

Les méthodes de Fast-Marching, développées initialement par Sethian [1996], sont utilisées pour de nombreuses applications liées à la propagation d'interface. Les problèmes faisant intervenir des interfaces se propageant sont variés : ils incluent par exemple l'étude des vagues, des fronts de flammes ou de l'évolution de la surface d'objets [Sethian, 1999]. Dans ce dernier cas, nous pouvons citer en exemple les travaux de thèse de Konukoglu [2009] qui s'attachent au suivi de la propagation de tumeurs cancéreuses. Ces techniques peuvent également être appliquées à des problématiques qui à priori semblent éloignés de la propagation d'interfaces, telles que la recherche de chemins optimaux ou la construction des chemins géodésiques les plus courts à partir d'une surface. De telles approches s'avèrent d'un grand intérêt, par exemple pour la recherche de chemins optimaux pour les véhicules sous-marins autonomes [Petres et al., 2007]. Dans ce dernier cas, l'algorithme de Fast-Marching est alors utilisé afin de générer une carte de distance (en tout point d'un espace discret) par rapport à un point de départ fixé (dans notre cas, les points de départ sont l'ensemble des centres ensemencés). La figure 5.3 (a) montre un plan 2D de la carte des distances en niveaux de gris dans le cas d'un centre de cellule situé dans ce plan, puis dans le cas d'un ensemencement multiple de centres, tous situés dans le même plan (figure 5.3 (b)).



FIGURE 5.3 – (a) Carte des distances (plus un voxel est sombre, plus la distance qui le sépare du centre le plus proche est faible). Les cercles blancs représentent les zones d'iso-distance. (b) Carte des distances pour un ensemencement de plusieurs centres situés dans le plan.

La méthode Fast-Marching a été retenue pour sa simplicité, sa rapidité, mais aussi car elle permet, de par son schéma numérique de résolution, de reproduire numériquement le procédé de fabrication par bullage (nucléation, puis croissance simultanée des cellules) à l'origine de la mousse template de polyuréthane. Son usage n'étant pas justifié s'il se limite à la réalisation d'une segmentation de Voronoï, nous verrons par la suite que cet algorithme est utilisé à diverses reprises dans le procédé de génération numérique de mousses. De plus, l'algorithme est déjà utilisé au sein d'iMorph : couplé à des algorithmes servant à déterminer des chemins minimaux, il permet de calculer la tortuosité moyenne des mousses étudiées [Vicente *et al.*, 2006], ou encore d'identifier les voxels connexes dans l'objectif de déterminer les morphologies locales de la phase solide.

5.2.2.b Segmentation des cellules par Watershed

La carte des distances précédemment calculée va être à présent utilisée pour segmenter le volume de génération en sous-domaines correspondants aux cellules de la mousse. Cette segmentation est rendue possible par un algorithme de ligne de partage des eaux ou watershed [Vincent et Soille, 1991]. Ce type d'algorithme, issu de la communauté du traitement d'image, permet la segmentation d'images à niveaux de gris. Le principe de la méthode consiste à considérer l'image à niveaux de gris comme un relief topographique, puis à en calculer les lignes de partage des eaux au sens géographique du terme. Dans cette analogie, les domaines segmentés sont alors assimilés aux bassins versants correspondants. L'une des techniques utilisée pour calculer les lignes de partage des eaux consiste à réaliser une inondation fictive de l'image en niveaux de gris en définissant des sources d'eau à l'endroit des minima locaux. La figure 5.4 détaille le processus de segmentation par watershed dans le cas d'un plan de section de la carte des distances 3D générée par Fast-Marching pour un ensemencement quelconque de quelques centres de cellules. Dans le plan de section (voir figure 5.4 (a)), les niveaux de gris faibles (zones sombres) représentent les voxels dont la valeur de distance est faible (régions proches des centres de cellules).



FIGURE 5.4 – Segmentation par watershed de la carte de distance : illustration pour un cas 2D.

À l'inverse, les zones claires correspondent aux voxels dont la distance au centre de cellule le plus proche est la plus élevée. Si l'on s'intéresse à présent à une seule ligne de voxels du plan de section (voir figure 5.4 (a), encadré rouge), il est possible de représenter les valeurs de distance comme un profil d'altitudes (voir figure 5.4 (b)). Le processus de watershed consiste alors à inonder le relief en créant une source d'eau au point le plus bas (voir figure 5.4 (b,i)), les voxels inondés reçoivent un label (représenté dans la figure par une couleur) définissant le domaine lié à la source. Lorsque le niveau atteint un nouveau minimum (voir figure 5.4 (b,ii)), un nouveau label, définissant un nouveau domaine, est attribué aux voxels inondés. Lorsque deux domaines d'indices différents se rencontrent, une digue fictive les conserve distincts (segments noirs, voir figure 5.4 (b,iii)). Ces séparations correspondent alors aux frontières de la segmentation finalement obtenue (voir figure 5.4 (c)). Le déroulement du processus de watershed dans la carte des distances tridimensionnelle est tout à fait similaire au cas 2D exposé ci-dessus. Les positions des sources d'eau fictives correspondent dans ce cas à celles des centres des cellules de l'ensemencement (voxels dont la valeur de distance est nulle).

L'algorithme de watershed original est connu pour présenter un biais près de la zone de plateau (zone de rencontre entre deux cellules). Pour surmonter ce défaut, un algorithme de watershed amélioré, amplement décrit dans la thèse de Brun [2009] a été utilisé. Cette implémentation est basée sur celle de Meyer [1991], et utilise une file de priorités sur les valeurs réelles (virgule flottante) des distances. La labellisation des voxels est déterminée en utilisant les labels des voxels voisins dont les domaines sont déjà affectés.

5.2.3 Extraction du squelette de la phase solide

Une fois la segmentation effectuée, le volume de génération du matériau cellulaire virtuel se présente sous la forme d'un arrangement compact de cellules possédant chacune un label unique. La suite du processus de génération nécessite la reconstruction d'une image 3D contenant les différents éléments structurels qui composent la mousse correspondant à cette segmentation : les cellules, les cols (ou parois si on considère une mousse à cellules fermées), les brins et les nœuds (voir figure 2.2). Cette identification utilise les lois de plateau (voir section 2.4.6) sur la segmentation. Pour cela, une procédure détermine, pour chaque voxel, le nombre de labels différents parmi ses voisins. Une nouvelle image 3D est créée, dans laquelle chaque voxel possède l'une des quatre étiquettes suivantes :

- VOID, si les labels des 26 voisins, ainsi que celui du voxel lui même sont identiques, car cet environnement correspond à un voxel constituant la porosité de la mousse,
- WALL, si parmi les 27 labels, 2 valeurs différentes sont trouvées. Ce cas correspond aux cols entre 2 cellules, ou à la paroi dans le cas d'une mousse à cellules fermées,
- STRUT, si parmi les 27 labels, 3 valeurs différentes sont trouvées. L'interface entre 3 cellules définit la position des brins de la mousse,
- NODE, si parmi les 27 labels, 4 valeurs différentes sont trouvées. Les voxels où 4 cellules différentes se rejoignent définissent les nœuds, ou jonctions entre les brins.

Cette nouvelle image 3D constitue le squelette structurel du matériau cellulaire virtuel (Fig. 5.5 (c)).



FIGURE 5.5 – Extraction du squelette : (a) segmentation de Voronoï obtenue via l'algorithme de watershed, (b) affectation des labels (VOID en noir, WALL en rouge, STRUT en blanc et NODE en vert), (c) représentation 3D du squelette filaire des brins obtenu.

5.2.4 Mise en forme des brins par éléments structurants

Une fois la structure (cellules, parois/cols, brins, nœuds) "filaire" de la mousse virtuelle obtenue, une étape supplémentaire de croissance est nécessaire afin d'obtenir des brins dont la morphologie est réaliste. Le principe de la méthode de croissance va consister à utiliser un élément structurant sphérique dont le volume sera contrôlé le long de chaque brin. Dans ces travaux, le choix de modéliser les brins à l'aide d'un élément structurant sphérique est gouverné par les résultats de l'analyse SEM [Rousseau *et al.*, 2013] réalisée sur la mousse de référence, qui démontre une section transversale des brins relativement circulaire. Ce résultat est d'ailleurs corroboré par l'utilisation de l'outil de caractérisation des sections de brins (iMorph, voir section 2.4.6).

Afin de mettre en forme un brin donné, la connaissance des coordonnées des voxels des 2 nœuds le délimitant, ainsi que celles des voxels interceptés par la droite les reliant (axe du brin), est nécessaire afin de positionner l'élément structurant le long du brin. Pour acquérir la connaissance de ces coordonnées, l'utilisation de l'image de la structure labellisée (voxels STRUT, Fig. 5.5, (c)) ne peut être directement utilisée. En effet, dans cette image, l'axe du brin est représenté par des agglomérats de voxels rendant imprécis le positionnement de l'élément structurant. L'algorithme de Bresenham [Bresenham, 1965] qui permet la détermination rapide des points d'un espace discret approximant au mieux une droite entre deux points de cet espace, sera donc utilisé. La figure 5.6 montre l'application de l'algorithme de Bresenham pour un cas en 2 dimensions (les voxels des 2 nœuds se situent ici dans le même plan).



FIGURE 5.6 – Identification des voxels d'un brin via l'algorithme de Bresenham.

Ainsi, un brin est défini par une liste de voxels fournis par l'algorithme. Afin d'obtenir l'ensemble des listes définissant tous les brins présents dans le volume de génération, une nouvelle labellisation, des nœuds cette fois-ci, est nécessaire. Chaque nœud doit en effet recevoir un identifiant unique, et connaître également la liste des identifiants uniques des nœuds auxquels il est attaché via ses propres brins. Ceci est fait grâce à la routine reconstruisant le réseau des centres de cellules et leurs connections, utilisée dans iMorph pour le calcul de la connectivité moyenne des cellules (décrite en section 2.9). Une fois cette identification réalisée, les coordonnées des 2 nœuds de chaque couple formant un brin sont utilisées pour déterminer la liste des voxels via la méthode précédemment exposée.

Une fois que toutes les listes des voxels définissant l'ensemble des brins sont obtenues, chacun d'entre eux est construit individuellement. Pour un brin donné, l'élément structurant est construit (tous les voxels intersectés par celui-ci sont définis comme faisant partie de la phase solide) pour chaque voxel de la liste définissant le brin. Le diamètre de l'élément structurant sphérique (correspondant à la section transversale du brin généré) est alors contrôlé le long du brin par un simple profil polynomial du second degré, défini de manière à ce que l'on obtienne un diamètre maximal (d_{max}) aux extrémités du brin, et minimal (d_{min}) en son centre. Le choix de l'ordre 2 pour le polynôme permet d'obtenir une unique concavité le long du brin. Soit $d_b(x)$ le diamètre du brin en fonction de l'abscisse curviligne x portée par le brin, et l_b la longueur du brin (automatiquement calculée pour le brin en cours de traitement). $d_b(x)$ peut alors s'exprimer comme suit :

$$d_b(x) = d_{min} + \frac{(d_{max} - d_{min}) \times (x - l_b/2)^2}{l_b^2/4}.$$
(5.1)

La figure 5.7 montre l'allure de brins profilés ainsi avec différentes valeurs pour le ratio d_{min}/d_{max} .



FIGURE 5.7 – Brins profilés pour divers ratios d_{min}/d_{max} .

Cette méthode de mise en forme peut être étendue à d'autre types d'éléments structurants pour obtenir d'autres géométries pour les sections transversales des brins (triangulaires, carrées). Cependant, l'élément structurant sphérique est le plus simple à utiliser car il ne nécessite pas d'être orienté par rapport à l'axe du brin. Compte tenu de la morphologie des brins de la mousse de référence, (voir section 2.4.6), nous nous limiterons donc dans cette étude à l'utilisation d'éléments structurants sphériques.

5.2.5 Ajustement de la porosité

Une fois les brins profilés obtenus, une dernière étape permet de contrôler finement la porosité de la mousse générée. Cette possibilité revêt une grande importance car la porosité de l'échantillon après les différentes étapes de génération que nous venons de décrire n'est que très difficilement contrôlable. Celle-ci dépend à la fois de la densité de brins et de leur mise en forme. La porosité étant le paramètre textural principal d'une mousse, il est donc essentiel de pouvoir la contrôler finement, tout en conservant la maîtrise des autres paramètres texturaux préalablement fixés.

L'approche choisie pour résoudre cette problématique s'inspire du procédé industriel de fabrication des mousses SiC. Lors de l'imprégnation du template de polyuréthane, le

procédé offre un relatif contrôle sur l'épaisseur du dépôt de la solution de céramique, permettant *in fine* le contrôle de la porosité de la mousse. L'idée consiste donc, une fois toutes les étapes précédentes réalisées, à permettre une dilatation homothétique contrôlable de la phase solide (brins profilés). Une telle méthode est employée dans les travaux de Akolkar et Petrasch [2011] pour obtenir une variation de porosité à partir des images tomographiques d'une mousse. Pour ce faire, l'algorithme de Fast-Marching est de nouveau utilisé pour calculer une carte des distances en niveaux de gris. Cette fois-ci, pour chaque voxel de la phase fluide, la distance séparant ce voxel du voxel de l'interface fluide/solide le plus proche est calculée. L'application du Fast-Marching est réalisée de la même manière que pour la croissance des cellules, à la différence que, cette fois-ci, les voxels initialisés en tant que points de départ en début de procédure sont les voxels de l'interface.

La procédure nécessite donc dans un premier temps l'identification des voxels constituant cette interface. Cette identification est réalisée de manière similaire à l'identification des parois entre les différentes cellules réalisée précédemment (5.2.3). Cette fois-ci le volume de génération contient seulement 2 labels correspondant respectivement aux phases fluide et solide. Une fois les voxels de l'interface détectés, ceux-ci constituent les points de départ de l'algorithme de Fast-Marching. Celui-ci, une fois utilisé permet donc de déposer simultanément des strates de niveaux de gris de manière homothétique, dont les valeurs correspondent aux distances séparant ces voxels par rapport à ceux de l'interface (voir figure 5.8).



FIGURE 5.8 – Plan 2D issu de la carte des distances à l'interface en niveaux de gris permettant le contrôle de la porosité.

Les niveaux de gris de la nouvelle carte des distances permettent, au moment de la sélection du seuil de niveau de gris choisi lors de l'étape de binarisation (voir section 2.3.2), de contrôler la porosité de la mousse virtuelle. Cette étape de binarisation permet de séparer la phase fluide de la phase solide en choisissant un seuil de niveau de gris. Ainsi, la plus petite variation de porosité qu'il est possible d'atteindre en passant d'un seuil de niveau de gris au suivant correspond à la proportion du volume de l'ensemble des voxels du niveau de gris supérieur, par rapport au volume de l'échantillon total. Cette proportion correspond aux voxels faisant partie d'une zone d'équidistance à l'interface, et est par conséquent grossièrement proportionnelle à la surface spécifique S_s de la mousse. Plus celle-ci est élevée, moins la précision du contrôle de la porosité offert par le choix d'un niveau de gris est importante. Néanmoins, il est possible sur la majorité des échantillons que nous générerons de contrôler la porosité avec une précision de l'ordre de \pm 0,01, ce qui est amplement satisfaisant. Grâce à cette technique, il est désormais possible, à partir d'un échantillon de mousse issu de la méthode de génération, d'obtenir un jeu de mousses dont les porosités évoluent graduellement. Ce point précis constituait jusqu'alors l'un des verrous liés aux méthodes de fabrication industrielle.

5.3 Application de la méthode de génération aux mousses de SiC et validation

Les échantillons des mousses générés doivent présenter une texture réaliste. Pour s'assurer à la fois de l'ergonomie du générateur, ainsi que du degré de réalisme des mousses virtuelles obtenues, nous avons utilisé celui-ci pour générer un échantillon numérique dont les paramètres texturaux et l'aspect se rapprochent le plus possible de l'échantillon de référence (voir section 2.4).

5.3.1 Validation du générateur

Dans cette section, nous allons générer un échantillon de mousse avec pour objectif de se rapprocher au plus près de la texture réelle d'une mousse de SiC, caractérisée en section 2.4. Ensuite, nous calculerons via iMorph les propriétés texturales de la mousse virtuelle ainsi obtenue, puis nous les comparerons à celles de la mousse réelle.

5.3.2 Paramètres de génération

Afin d'obtenir des échantillons de mousse virtuelle d'une taille fictive et de résolution voxélique comparables à celles de la reconstruction 3D de l'échantillon réel ($\approx 1 \text{ cm}^3$, 400 \times 400 \times 400 voxels de 24.14 µm/voxel), le volume de génération a été fixé également à 400 \times 400 voxels, pour une résolution de 25 µm/voxel). La connectivité moyenne C_m mesurée sur la mousse de référence est égale à 11. Le réseau de base choisi pour la technique d'ensemencement avancée retenue sera donc tétraédrique. Le paramètre de maille l_{lat} est fixé de manière à obtenir une distance moyenne inter-cellules l_{int} de 1380 µm. L'amplitude des perturbations p_g est choisi de manière à respecter la dispersion de la CCDD. Le rapport d_{min}/d_{max} est fixé à 1/3. Cette valeur permet, une fois la mise en forme des brins et l'ajustement de la porosité réalisés, de reproduire la morphologie des brins observée sur l'échantillon de référence. Une fois les images générées, la porosité de l'échantillon est ajustée à 0,7, via la sélection d'un seuil de niveau de gris adéquat dans iMorph. Cette dernière étape, associée aux paramètres de l'ensemencement, permet d'ajuster finalement d_{nom} et d_b aux valeurs mesurées sur la mousse de référence. Le tableau 5.1 récapitule les paramètres utilisés pour la génération de la mousse.

5.3.2.a Analyse morphologique comparative

La figure 5.9 compare les reconstructions 3D de la mousse de référence et de la mousse virtuelle.



TABLEAU 5.1 – Paramètres de génération de la mousse virtuelle :

FIGURE 5.9 – Comparaison des reconstructions 3D de la mousse de référence (a) et de la mousse virtuelle (b).

Visuellement, les deux échantillons semblent assez proches. Afin de s'assurer de leur bonne similitude, les propriétés texturales de la mousse virtuelle ont également été caractérisées via iMorph. Sur le plan des propriétés texturales de premier ordre (porosité et surface spécifique), les valeurs obtenues sont très proches de celles de la mousse de référence. La figure 5.10 compare ensuite les CSD et CCDD calculées sur les deux mousses.



FIGURE 5.10 – Comparaison des CSD et des CCDD calculées pour la mousse de référence (noir) et la mousse virtuelle (rouge).

Sur ces paramètres texturaux plus fins, un accord satisfaisant est également trouvé. Les connectivités moyennes des cellules sont proches. Le rapport d_{min}/d_{max} fixé à 1/3, couplé au contrôle de porosité, permet d'obtenir un diamètre moyen de brin similaire à celui de la mousse réelle. Cette comparaison sur des paramètres texturaux constitue une validation de la méthode de génération. Les paramètres de génération utilisés dans cette

section seront dans la suite de ce manuscrit utilisé pour générer des jeux de mousses les plus réalistes possibles.

Pour valider l'usage de la méthode numérique de génération dans le cadre de l'étude des propriétés radiatives, un calcul MCRT de l'absorptance normale A_N a été réalisé sur l'échantillon virtuel. Le spectre de A_N calculé sur la mousse virtuelle est représenté sur la figure 4.5, en section 4.2.1. Le bon accord avec le spectre calculé sur la reconstruction 3D de l'échantillon de mousse de référence montre que, du point de vue radiatif, l'usage de la méthode numérique de génération est satisfaisant.

Fluctuations de porosité

La figure 5.11 présente les profils de porosité 2D (notion définie et calculée pour la mousse réelle de référence en section 2.4.1) établis selon les les axes *x*, *y* et *z*.



FIGURE 5.11 – Évolution de la porosité "2D" le long des axes x y et z pour l'échantillon de mousse virtuelle.

Si l'on compare les profils de porosité 2D obtenus pour la mousse réelle de référence avec ceux de la mousse virtuelle, plusieurs remarques peuvent être faites. Premièrement, l'amplitude des fluctuations de porosité est bien plus importante pour la mousse virtuelle (jusqu'à \pm 0,1 sur les valeurs de porosité contre \pm 0,4 pour la mousse réelle). L'allure de ces fluctuations est également bien plus régulière, parfois quasi-sinusoïdale. Ces deux premières informations sont révélatrices d'un degré de régularité induit par l'ensemencement plus important dans le cas de notre mousse virtuelle, ainsi que par la non prise en compte de l'anisotropie des cellules et de leurs orientations. Pour aller plus loin, il faudrait contrôler l'anisotropie et l'orientation des cellules via un tenseur local appliqué lors du calcul de la carte des distances (Fast-Marching anisotrope). Enfin, on peut observer que le profil selon l'axe *x* présente une amplitude et une fréquence moins fortes. Ceci témoigne d'une légère anisotropie induite par la méthode de génération qui, bien que théoriquement isotrope, induit des alignements de brins selon *x*.

Pour étudier l'influence de la texture des mousses virtuelles sur l'allure des profils de porosité 2D, ceux-ci ont été calculés pour le jeu de mousses utilisé pour les calculs de volumes élémentaires représentatifs (VER) que l'on doit prendre en compte pour la détermination des propriétés radiatives (voir section 6.2, tableau 6.1). La figure 5.12 (a) montre les profils de porosité 2D pour les échantillons à 12 PPI et porosité 0,48, 0,67 et 0,89 (échantillons a1, a2 et a3), et la figure 5.12 (b), pour les échantillons à 12, 23 et 40 PPI pour une porosité de 0,67 (échantillons a2, b2 et c2).



FIGURE 5.12 – Influence des propriétés texturales de la mousse sur les profils de porosité 2D : (a) influence de la porosité, (b) influence du PPI.

On observe pour l'ensemble des échantillons virtuels le caractère quasi-sinusoïdal précédemment évoqué. Ces profils de porosité sont soumis à l'influence des deux paramètres texturaux principaux. À PPI fixé, la porosité influe sur l'amplitude des oscillations : moins la mousse est poreuse, plus les amplitudes des fluctuations de porosité 2D sont importantes par rapport à la valeur de porosité moyenne. Ceci est dû au fait que les fluctuations de porosité concernent une fraction volumique de solide bien moins importante à haute porosité. En ce qui concerne l'influence du PPI lorsque la porosité est fixée, on remarque la valeur du PPI peut être estimée directement à partir de la fréquence de la sinusoïde. Lorsque le PPI est élevé, la régularité des profils est moindre. Nous verrons que ces fluctuations ont une incidence sur l'établissement des volumes élémentaires représentatifs requis pour déterminer de manière fiable l'absorptance normale.

5.4 Conclusions

La méthode numérique de génération de mousses développée dans ce travail de thèse (GenFoam, C++) est constituée de plusieurs étapes que nous pouvons rappeler :

- L'ensemencement des positions des centres de cellules (section 5.2.1). Plusieurs types de réseaux peuvent être utilisés : aléatoire, cubique régulier, cubique perturbé, tétraédrique régulier, tétraédrique perturbé, et enfin tétraédrique perturbé au second ordre. Le choix de la valeur du paramètre de maille du réseau choisi pour l'ensemencement permet le contrôle du diamètre moyen de cellule d_{nom} (et par conséquent du PPI). L'amplitude des perturbations appliquée permet de contrôler la dispersion des distributions de diamètre de cellules. Enfin, le type de la maille élémentaire choisie permet de jouer sur la valeur de connectivité moyenne C_m des cellules.
- La segmentation de Voronoï de l'ensemencement (section 5.2.2). Celle-ci est réalisée via un algorithme de ligne de partage des eaux (watershed) appliqué à une carte des distances. Cette dernière est générée à partir des centres des cellules ensemen-

cées par un algorithme de Fast-Marching. L'association de ces deux étapes assure une croissance simultanée et isotrope des cellules.

- L'extraction du squelette (section 5.2.3). Cette étape offre la possibilité d'identifier les divers éléments constituant la structure d'une mousse (cellules, cols, brins et nœuds), ainsi que leur indexation sous la forme d'un graphe. Cette indexation est nécessaire pour l'étape suivante de processus de génération.
- La croissance par élément structurant des brins (section 5.2.4) permet ensuite de contrôler la morphologie des brins. L'élément structurant utilisé est une sphère dont le rayon est contrôlé le long de l'abscisse de chaque brin. La morphologie des brins observée sur une mousse réelle peut alors être reproduite.
- Le contrôle final de la porosité de l'échantillon (section 5.2.5). Cette ultime étape réutilise l'algorithme de Fast-Marching à partir de l'interface profilé des brins pour produire des couches successives en niveaux de gris. Ainsi, lors de l'étape de binarisation de l'échantillon (voir section 2.3.2), il devient possible d'ajuster précisément la porosité de l'échantillon de mousse virtuelle à la valeur choisie, mais également d'obtenir des déclinaisons de valeurs de porosité pour un même échantillon de base.

Afin de s'assurer que la texture d'une mousse virtuellement générée est réaliste, un échantillon a été généré avec pour objectif l'obtention d'une texture la plus proche possible de celle de la mousse de référence. Ensuite, les paramètres texturaux du premier ordre (p, d_{nom}) ainsi que du second ordre (CSD, CCDD, C) ont été calculés et comparés à ceux de la mousse de référence. Une fois le paramètre de maille choisi de manière adéquate, il a été démontré qu'un maillage tétraédrique perturbé au second ordre doit être utilisé pour obtenir un accord satisfaisant sur d_{nom} , la CSD, la CCDD et C. Le tableau 5.2 récapitule les résultats de l'analyse morphologique comparative précédemment réalisée.

Propriété	Mousse réelle	Mousse virtuelle
p	0,7	0,7
PPI	23	21
d_{nom} (μ m)	1290 ± 140	1260 ± 160
$S_{s} (m^{2}/m^{3})$	2810	2940
C _m	11,0	9,7
l_{int} (μ m)	1330 ± 380	1310 ± 360

TABLEAU 5.2 – Comparaison entre les paramètres texturaux de la mousse réelle et ceux de la mousse virtuelle :

Cette méthode numérique de génération de mousses permet donc de répondre aux objectifs principaux fixés par le chapitre 3 : disposer de jeux de mousses présentant une grande variété de texture réalistes, tout en garantissant le contrôle aisé des paramètres texturaux principaux. Celle-ci va à présent être utilisée dans le chapitre suivant, afin d'étudier l'influence de la texture des mousses sur leurs propriétés radiatives.

5.5 Références

- AKOLKAR, A. et PETRASCH, J. (2011). Tomography based pore-level optimization of radiative transfer in porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 54:4775 – 4783. 128
- BRESENHAM, J. E. (1965). Algorithm for computer control of a digital plotter. *IBM Systems journal*, 4(1):25–30. 126
- BRUN, E. (2009). *De l'imagerie 3D des structures à l'étude des mécanismes de transport en milieux cellulaires*. Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille. 125
- COQUARD, R., RANDRIANALISOA, J. et BAILLIS, D. (2013). Computational prediction of radiative properties of polymer closed-cell foams with random structure. *Journal of Porous Media*, 16(2):137–154. 119
- DYCK, N. J. et STRAATMAN, A. G. (2015). A new approach to digital generation of spherical void phase porous media microstructures. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 81:470 – 477. 119
- DYCK, N. J. et STRAATMAN, A. G. (2016). Radiative property characterization of spherical void phase graphitic foam. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 92:1201 1204. 119, XIX
- KONUKOGLU, E. (2009). *Modeling glioma growth and personalizing growth models in medical images*. Thèse de doctorat, Université de Nice Sophia-Antipolis. 123
- MEYER, F. (1991). Un algorithme optimal de ligne de partage des eaux. Actes du 8 congrès AFCET Reconnaissance des Formes et Intelligence Artificielles, pages 847–859. 125
- PETRES, C., PAILHAS, Y., PATRON, P., PETILLOT, Y., EVANS, J. et LANE, D. (2007). Path planning for autonomous underwater vehicles. *Robotics, IEEE Transactions on*, 23(2):331–341. 123
- RANDRIANALISOA, J., COQUARD, R. et BAILLIS, D. (2013). Microscale direct calculation of solid phase conductivity of voronoi's foams. *Journal of Porous Media*, 16(5):411 426. 119
- REDENBACH, C. (2009). Microstructure models for cellular materials. *Computational Materials Science*, 44(4):1397–1407. 119
- ROUSSEAU, B., GUÉVELOU, S., DOMINGUES, G., VICENTE, J., CALIOT, C. et FLAMANT, G. (2013). Prediction of the radiative properties of reconstructed α-sic foams used for concentrated solar applications. *In MRS Online Proceedings Library*, volume 1545. 126
- SETHIAN, J. A. (1996). A fast marching level set method for monotonically advancing fronts. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 93(4):1591–1595. 123
- SETHIAN, J. A. (1999). Level set methods and fast marching methods : evolving interfaces in computational geometry, fluid mechanics, computer vision, and materials science, volume 3. Cambridge university press. 123
- VICENTE, J., TOPIN, F. et DAURELLE, J.-V. (2006). Open celled material structural properties measurement : from morphology to transport properties. *Materials transactions*, 47(9): 2195–2202. 123
- VINCENT, L. et SOILLE, P. (1991). Watershed in digital spaces : An efficient algorithm based on immersion simulations. *IEEE Transactions on pattern analysis and machine intelligence*, 13(6):583–598. 124
- WANG, M. et PAN, N. (2008). Modeling and prediction of the effective thermal conductivity of random open-cell porous foams. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 51(5-6):1325–1331. 118, 119, XIX
- ZHAO, Y. et TANG, G. (2016). Monte carlo study on extinction coefficient of silicon carbide porous media used for solar receiver. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 92:1061 – 1065. 119, XIX

Chapitre 6

Optimisation des propriétés radiatives des absorbeurs solaires volumétriques

Sommaire

6.1	Étude de la validité des méthodes d'identification directes du coefficient							
	d'exti	nction						
6.2	Étude	e des Volumes Élémentaires Représentatifs (VER)						
	6.2.1	Définition et principe de la méthode 142						
	6.2.2	Étude de l'influence des propriétés texturales sur les VER 144						
	6.2.3	Conclusions de l'étude des VER 150						
6.3	Étude	e des liens entre propriétés texturales et radiatives						
	6.3.1	Campagne de simulations						
	6.3.2	Étude des propriétés texturales du jeu de mousses 153						
	6.3.3	Influence de la porosité p sur l'absorptance normale $A_N \dots 156$						
	6.3.4	Influence des propriétés texturales sur les propriétés radiatives ho- mogénéisées 163						
	635	Étude statistique liée au calcul MCRT						
6.4	Parar	nètres texturaux retenus pour une performance thermique de l'ab-						
0.1	sorbe	eur optimale						
	6.4.1	Lois comportementales 181						
	6.4.2	Définition d'une texture optimale						
	6.4.3	Influence de la texture sur la sélectivité spectrale						
6.5	Conc	lusions						
6.6	Référ	ences						

Les chapitres précédents ont permis l'introduction de l'ensemble des outils numériques développés ou utilisés pour mener à bien ce travail de thèse, à savoir :

- le logiciel iMorph, qui permet la caractérisation fine des propriétés texturales de mousses, présenté en chapitre 2,
- des méthodes numériques permettant l'estimation des propriétés radiatives macroscopiques (R_{NH}, T_{NH} et A_N, via la méthode MCRT) et l'identification des propriétés radiatives homogénéisées (β , α , σ et Φ , via la méthode RDFI), présentées en chapitre 4,
- une méthode numérique de génération de mousses permettant l'obtention de textures variées, maîtrisées et réalistes, développée en chapitre 5.

Ces outils vont dans ce dernier chapitre être exploités de manière à répondre à l'objectif principal de ces travaux : déterminer les liens existant entre les paramètres texturaux des mousses et leurs propriétés radiatives, afin d'être en mesure de proposer une texture de mousse optimisant l'efficacité de conversion solaire-chaleur des absorbeurs solaires volumétriques.

Le plan de cet ultime chapitre sera donc le suivant : dans un premier temps, nous étudierons rapidement l'applicabilité, dans le cas de mousses à brins opaques, des méthodes d'identification du coefficient d'extinction directement à partir de mesures expérimentales de transmittance. Les conclusions de cette étude nous permettront de justifier l'emploi de la méthode RDFI, plus lourde à mettre en œuvre. Ensuite, nous étudierons l'impact de la texture des mousses sur les Volumes Élémentaires Représentatifs (VER) que nous devons prendre en compte pour déterminer avec fiabilité l'absorptance normale A_N via la méthode MCRT. Nous étudierons en parallèle le VER nécessaire pour la détermination de la porosité, qui constitue le critère généralement utilisé dans la littérature pour s'assurer de la représentativité d'un échantillon du point de vue radiatif. Le lien avec les volumes minimaux requis pour l'utilisation de la méthode RDFI sera également étudié. Ces investigations permettront d'une part, de s'assurer de la validité des campagnes de calculs réalisées dans la suite de ce chapitre, et d'autre part, de fournir des spécifications d'ordre pratique à l'expérimentateur, notamment sur la taille minimale des échantillons qu'il caractérise.

Puis, l'utilisation à grande échelle des outils numériques permettra la mise en place d'une grande campagne de simulation. Un jeu de 96 échantillons de mousses (8 mousses "mères" à 8 valeurs de PPI différentes (de 10 à 45), avec 12 déclinaisons de porosité (de 0,4 à 0,95) pour chacune d'entre elles) sera généré. Pour chacun de ces échantillons, nous calculerons :

- l'ensemble des propriétés texturales
- $-\,$ les propriétés radiatives mesurables (R_{NH}, T_{NH} et A_N), ainsi qu'un ensemble de données statistiques liées au transport du rayonnement,
- les propriétés radiatives homogénéisées (β , α , σ et Φ).

Les propriétés radiatives seront calculées pour les propriétés optiques effectives n et k caractérisant un brin d' α -SiC pour $\omega = 2500$ cm⁻¹, le nombre d'onde le plus représentatif du comportement radiatif global de l' α -SiC, mais également pour une gamme de couples n et k synthétiques caractérisant des matériaux fictifs opaques, mais plus ou moins réfléchissants. L'ensemble des résultats fournis par cette campagne constituera ensuite une base de données dont nous pourrons extraire de robustes corrélations liant les propriétés radiatives aux paramètres texturaux caractérisant les mousses, ainsi qu'aux propriétés

optiques intrinsèques de la phase solide. Nous verrons qu'il est également possible de favoriser la pénétration du rayonnement au sein de la mousse en observant la dépendance à la texture des profils d'énergie déposée selon la profondeur de l'échantillon. Enfin, nous conclurons ce chapitre en proposant des paramètres texturaux permettant l'optimisation des performances thermiques des absorbeurs solaires volumétriques

6.1 Étude de la validité des méthodes d'identification directes du coefficient d'extinction

Nous avons abordé en section 3.5.3.a un ensemble de méthodes permettant l'identification directe du coefficient d'extinction β via la loi de Beer-Lambert, généralement à partir de mesures de transmittance normale-normale T_{NN} . Avant de développer des méthodes d'identification plus poussées, les outils numériques développés dans ce travail de thèse nous donnent l'opportunité de mettre à l'épreuve de telles méthodes pour le cas de mousses opaques constituées de matériaux plus ou moins réfléchissants et de propriétés texturales variées.

Dans la plupart des travaux développant une telle approche, β est identifié à partir d'une unique valeur de transmittance normale-normale T_{NN} , ce qui ne permet pas de juger si la décroissance exponentielle de T_{NN} en fonction de l'épaisseur *z* répond bien à un comportement Beerien (notion définie en section 4.4). Ici, la manipulation d'échantillons numériques va nous permettre de disposer d'échantillons dont l'épaisseur sera précisément contrôlée, ce qui est souvent très difficile à obtenir pour des mousses réelles via les techniques d'usinage classiques.

Le code MCRT a donc été ici utilisé pour calculer successivement les transmittances normales-normales T_{NN} sur des échantillons d'épaisseurs variables issus d'une mousse générée numériquement. La mousse générée présente une porosité p de 0,8, un diamètre de cellule d_{nom} de 740 µm donnant une valeur de PPI de 35, ainsi qu'une surface spécifique S_s égale à 4250 m²/m³. Des tranches d'épaisseurs croissantes ont été définies dans l'échantillon de base. Le pas choisi pour l'augmentation de l'épaisseur entre deux tranches successives a été choisi de manière à correspondre à la valeur de d_{nom} . La figure 6.1 montre une partie des échantillons numériques ainsi définis.

Les transmittances normales-normales T_{NN} ont ensuite été calculées via la méthode MCRT pour chacun de ces échantillons. L'interaction entre le rayonnement et la matière fait ici intervenir des valeurs de réflectivité à l'interface fixées ρ_f (voir définition en section 4.1.4). L'ensemble des calculs ont été répétés pour des valeurs de ρ_f variées (0,4, 0,5, 0,6, 0,7, 0,8 et 0,9) qui permettent d'étendre les résultats de cette étude à des matériaux plus ou moins réfléchissants. Chaque calcul a été effectué avec $N_{ray}=10^5$, répartis de manière homogène dans un spot circulaire de diamètre très inférieur à la face de l'échantillon. La forme du spot reproduit ainsi des conditions expérimentales classiques de mesure de transmittance, et nous permet d'écarter d'éventuels effets de bord indésirables. L'énergie absorbée sur les échantillons de mousses est représentée en figure 6.1, ce qui permet de visualiser la forme du spot.

Il s'est rapidement avéré que, dans le cas de matériaux opaques, même très réfléchis-



FIGURE 6.1 – Jeu d'échantillons d'épaisseurs croissantes issus de la mousse numériquement générée ((a), $z = 740 \mu m$, (b), $z = 1480 \mu m$, (c), $z = 2220 \mu m$, (d), $z = 2960 \mu m$, (e), $z = 3700 \mu m$ et (f), $z = 4440 \mu m$). Les taches circulaires correspondent à l'énergie absorbée par la mousse et permettent de visualiser la forme du spot.

sants et de faible épaisseur, les valeurs de transmittances normales-normales sont très faibles (inférieures à 0,01 pour des épaisseurs supérieures à 2 mm), trop pour espérer une quelconque identification de $T_{NN} = f(z)$ avec la loi de Beer-Lambert. Cette constatation montre que l'utilisation de cette méthode pour des mousses à brins opaques, quelle que soit la réflectivité du matériau, est à proscrire. Nous nous sommes alors posé la question suivante : est-il possible d'utiliser ce type d'approche pour les mousses constituées de matériaux opaques en considérant les valeurs de transmittance normale-hémisphérique T_{NH} ? Cela revient à considérer valide la loi de Beer-Lambert pour T_{NH} , ce qui en soi, nécessite d'être mis à l'épreuve.

Comme les calculs de T_{NN} et T_{NH} sont simultanément réalisés (les informations portées par un rayon (direction ou nombre d'impacts) permettent de déterminer si celui-ci contribue à T_{NN} ou T_{NH} , voir section 4.1.2), les résultats pour la même campagne que celle précédemment décrite pour T_{NN} sont disponibles pour T_{NH} . Les valeurs de T_{NH} obtenues sur le jeu d'épaisseurs sont représentées en figure 6.2. Pour chaque évolution de T_{NH} en fonction de l'épaisseur de l'échantillon z, une identification par la méthode des moindres carrés est menée pour identifier β via la loi de Beer-Lambert. Les valeurs de T_{NH} obtenues pour les tranches d'épaisseurs les plus faibles (échantillons (a) et (b)) n'ont pas été pris en compte pour s'assurer que les volumes sondés soient un minimum représentatifs.

Deux approches peuvent être menées pour l'identification de β . Nous allons à présent



FIGURE 6.2 – Évolutions des transmittances normales hémisphériques T_{NH} en fonction de l'épaisseur de l'échantillon z pour les différentes valeurs de ρ_f . Identification de β avec la loi de Beer-Lambert avec (a) respect des conditions aux limites (T(z = 0) = 1 et $T(z \mapsto \infty) = 0$) et (b) identification non contrainte par les conditions aux limites.

comparer les β fournis par chacune d'entre elles à la valeur de β_{RDFI} , le coefficient d'extinction par ailleurs déterminé sur le même échantillon (cubique) via la méthode RDFI ($\beta_{RDFI} = 14.3 \text{ cm}^{-1}$). Ces deux méthodes d'identification sont les suivantes :

- − la première consiste à contraindre la loi de Beer-Lambert à respecter des conditions aux limites théoriques valides (T(*z* = 0) = 1 et T(*z* → ∞) = 0, figure 6.2 (a)). On observe alors que les valeurs calculées de T_{NH} ne sont pas correctement interceptées par la loi de Beer-Lambert. La correspondance entre les points et le modèle est même très mauvaise. Le coefficient d'extinction est ici légèrement dépendant de la réflectivité d'interface ρ_f, et les valeurs obtenues sont relativement éloignées de celle obtenue par la méthode RDFI (parallèlement appliquée à l'échantillon) β_{RDFI} = 14.3 cm⁻¹.
- La seconde approche consiste à identifier β via la loi de Beer-Lambert par la méthode des moindres carrés également, mais sans respecter cette fois-ci les conditions limites précédemment évoquées figure 6.2 (b)). Les valeurs calculées de T_{NH} sont dans ce cas correctement interceptées par la loi de Beer-Lambert, mais les conditions aux limites sont d'un point de vue théorique aberrantes. Les coefficients d'extinction β sont alors encore plus éloignés de celui trouvé par la méthode RDFI.

Conclusions sur l'applicabilité de la méthode

Nous pouvons conclure de ces observations que l'application de ce type de méthodes directes, malgré les possibilités offertes par les outils numériques à notre disposition (échantillon d'épaisseurs contrôlées plus facilement que via une quelconque technique d'usinage), est rendue impossible pour des échantillons de mousses à brins opaques, mêmes très réfléchissants. Ceci est dû, d'une part aux les très faibles valeurs de T_{NN} , et d'autre part à l'impossibilité de respecter les conditions aux limites théoriques de la loi de Beer-Lambert lorsque l'on applique la méthode à T_{NH} pour pallier le précédent obstacle. La décroissance de T_{NH} semble en effet ne pas suivre dans ce cas le comportement Beerien que l'on observe pour les fonctions de distributions cumulées d'extinction $G_e(s)$ utilisées dans la méthode RDFI. Ce résultat est logique compte tenu du caractère directionnel de la loi de Beer-Lambert. La méthode RDFI peut, en revanche, être vue comme une identification de β à partir de la loi de Beer-Lambert construite pour un milieu donné à partir d'un échantillonnage dans toutes les directions possibles de valeurs ponctuelles de transmittances normales-normales. Elle est de ce fait plus performante que les tentatives réalisées précédemment et sera privilégiée dans notre travail pour la détermination des propriétés radiatives homogénéisées. Les conclusions sur ces méthodes d'identifications directes de β méritent toutefois d'être étendues à d'autres textures de mousses (notamment aux grandes porosités et tailles de cellules fournissant des valeurs de T_{NH} et T_{NN} plus importantes) ainsi qu'à des mousses dont les brins seraient semi-transparents, ce qui ne sera pas fait ici.

6.2 Étude des Volumes Élémentaires Représentatifs (VER)

La validité des méthodes expérimentales ou numériques destinées à la caractérisation des propriétés (texturales ou radiatives) des mousses est dépendante de la représentativité des échantillons sondés. L'estimation de cette représentativité nécessite la détermination des Volumes Élémentaires Représentatifs (VER) dont la taille est dépendante des paramètres texturaux des mousses étudiées. La présente section vise donc premièrement à définir la notion de VER ainsi que la méthode permettant de les acquérir. Ensuite l'influence des propriétés texturales des mousses sur les tailles des VER relatifs à la détermination de la porosité et du calcul de l'absorptance normale A_N sera étudiée. Les enseignements de cette étude, qui a fait par ailleurs l'objet d'une publication récemment acceptée [Guévelou *et al.*, 2016] (sous presse), permettront de fournir des spécifications sur le dimensionnement des échantillons de mousses caractérisés expérimentalement ou via des méthodes numériques. Des considérations sur les VER requis pour l'application de la méthode RDFI seront également fournies.

6.2.1 Définition et principe de la méthode

Pour une propriété donnée, le VER est défini comme étant le plus petit volume requis pour obtenir une mesure donnant une valeur représentative de l'échantillon entier. Pour assurer la validité de la caractérisation (par mesure expérimentale ou méthode numérique) d'une propriété quelconque d'un matériau poreux, la détermination du VER correspondant à cette propriété est nécessaire. On peut trouver dans la littérature que dans le cas des matériaux représentés par un arrangement périodique de cellules idéalisées, le VER peut être obtenu en choisissant une ou plusieurs de ces cellules unitaires [Contento et al., 2014]. Pour les milieux poreux aléatoires, ce qui est le cas des mousses (qu'elles soient réelles ou numériquement générées), la détermination du VER nécessite une étude plus poussée. La méthode classique pour déterminer le VER pour une propriété donnée consiste à réaliser des mesures (ou des calculs) de celle-ci pour un volume donné V à différentes positions (N_{ν} positions) tirées aléatoirement dans l'échantillon entier. Si le volume V est trop petit pour être considéré comme représentatif, alors les valeurs des N_v résultats connaîtront une certaine dispersion caractérisée par un écart-type. Le volume V doit alors être augmenté, puis la mesure pour N_v différentes positions doit être répétée. L'écart-type entre les différentes réalisations tend alors à diminuer. En choisissant un seuil minimal de tolérance pour l'écart-type, on peut ensuite déterminer le VER pour la propriété considérée. Cette méthode est également décrite de manière précise pour la porosité dans les travaux de thèse de Brun [2009].

Afin d'illustrer cette méthode, et avant de l'étendre à d'autres propriétés physiques et à d'autres mousses, le VER relatif à la porosité a été caractérisé pour l'échantillon de mousse de référence. La procédure décrite précédemment a été appliquée à la reconstruction 3D issue des images tomographiques. Chacune des réalisations du calcul de la porosité a été faite suivant la méthode décrite en section 2.4.1. Les N_v volumes choisis pour chaque réalisation sont cubiques. Le côté de ces cubes sera dénoté par la suite *l*. La figure 6.3 (a) représente les N_v volumes dont les positions des centres sont tirées aléatoirement au sein du volume total de l'échantillon. 10 réalisations sont faites pour chaque valeur de *l*, qui croît par pas de 30 voxels (725 μ m avec la résolution des images tomographiques de 24 μ m / voxel).



FIGURE 6.3 – (a) Tirage aléatoire des N_v volumes cubiques au sein de l'échantillon entier (rouges : l = 30 voxels (725 µm), bleus : l = 60 voxels (1450 µm)), (b) dispersion des valeurs de porosité associées en fonction de l et (c) décroissance des écarts-types associés en fonction de l.

La figure 6.3 (b) montre les dispersions des valeurs de porosité obtenues à chaque réalisation, en fonction de *l*. La figure 6.3 (c) montre, également en fonction de *l*, les écartstypes associés. Un seuil, déterminé par un écart-type critique de 0,02 est fixé et permet d'estimer une valeur de *l* égale à 2500 µm. Ce résultat signifie que lorsqu'une mesure de la porosité est effectuée en prenant en compte un volume de 2500 µm de côté, la porosité est obtenue avec une précision de \pm 0,02. La valeur de ce seuil est discutée dans les travaux de Brun [2009]. Une précision de \pm 0,01 peut être obtenue pour *l*=3000µm.

Dans la littérature, le VER déterminé pour la porosité est généralement utilisé afin de s'assurer de la bonne représentativité des résultats des méthodes de détermination des propriétés radiatives. Par exemple, Petrasch et al. [2007], ou encore Coquard et al. [2012] ont utilisé l'approche précédemment décrite avec des calculs de porosité pour vérifier l'hypothèse de milieu continu homogène équivalent. Ces études ont été respectivement réalisées pour des mousses céramiques réticulées (porosités $p \in [0,90 - 0,93]$, diamètre nominal de cellule d_{nom} = 2,5 mm), et des mousses d'Al-NiP ($p \in [0,94 - 0,95], d_{nom} \in$ [0,25 - 1,0] mm). Une fois les VER vérifiés, des méthodes de prédiction des propriétés radiatives homogénéisées (α , σ et Φ) à partir des reconstructions 3D ont été utilisées. Dans d'autres études utilisant la même approche afin de vérifier la représentativité des échantillons [Mendes et al., 2014; Parthasarathy et al., 2012], il a été démontré que la taille du VER pour la porosité (côté de la zone cubique *l*) correspond typiquement à 4 fois le diamètre moyen de cellule d_{nom} . Cependant, ce résultat a été obtenu relativement à des calculs de porosité et pour des géométries de mousses dont la variété est limitée. Le rapport entre le VER pour la porosité et d_{nom} peut par conséquent être différent pour d'autres géométries. Al-Raoush et Papadopoulos [2010] ont en effet montré que le VER pour la porosité ne devait pas être utilisé pour la caractérisation d'autres propriétés texturales (pour la distribution de taille de particule et la connectivité inter-particulaire de sols poreux). Il existe d'autre part un manque d'informations dans la littérature quand à la définition d'un VER spécifique à la détermination de l'absorptance normale A_N . Les travaux d'Akolkar et Petrasch [2011] utilisent en effet le VER de porosité comme défini plus haut pour la détermination de A_N .

6.2.2 Étude de l'influence des propriétés texturales sur les VER

6.2.2.a Jeu de mousses virtuelles

À partir de toutes ces considérations, il semble utile d'utiliser les outils numériques à notre disposition afin d'étudier l'influence des paramètres texturaux principaux des mousses (porosité, PPI) sur les VER de porosité et de l'absorptance normale. Pour ce faire, un jeu de mousses garantissant une variété de textures importante a été généré. 3 valeurs de PPI (12, 23 et 40) ont été obtenues en utilisant 3 valeurs différentes pour le paramètre de maille du réseau tétraédrique l_{lat} . Pour chacune des 3 mousses ainsi obtenues, 6 valeurs de porosité (p = 0,38, 0,48, 0,58, 0,67, 0,77, et 0,89) ont été obtenues par dilatation des brins. Ce contrôle de la porosité a été fait en choisissant les seuils de niveaux de gris adéquats lors de l'étape de binarisation. De larges échantillons numériques ont été générés ($800 \times 800 \times 800$ voxels) requérant d'importantes ressources en RAM (10 Go) et environ 5 heures de calculs par valeur de PPI. En choisissant une résolution voxélique de 25 µm/voxel, la taille fictive des échantillons numériques obtenus est de $2 \times 2 \times 2$ cm. La figure 6.4 montre des ROI de 400 × 400 × 400 voxels issues de ces échantillons (pour les 3 valeurs de PPI et de porosité p = 0,48, 0,67, et 0,89).



FIGURE 6.4 – Mousses extraites du jeu utilisé pour la détermination des VER. Les ROI représentées ici ont un volume de 1 cm³ ($400 \times 400 \times 400$ voxels).

Les surfaces spécifiques S_s , ainsi que les diamètres moyens de cellules d_{nom} ont été calculés puis reportés en tableau 6.1.

Foam	PPI	p_f	S _s	d_{nom}	A_{Nf}	$l_{ m A_N}$	l_p
			$(m^2.m^{-3})$	(mm)		(mm)	(mm)
	12	0,38	2012	1,22	0,92	2,0	6,2
	23	0,38	2762	0,97	0,92	1,6	3,5
	40	0,38	4816	0,49	0,92	0,9	2,0
al	12	0,48	2270	1,32	0,93	2,4	5,5
b1	23	0,48	2968	1,05	0,93	2,0	3,3
c1	40	0,48	5302	0,54	0,93	1,2	1,9
	12	0,58	2163	1,43	0,94	3,0	5,2
	23	0,58	2937	1,12	0,94	2,2	3,0
	40	0,58	5319	0,58	0,94	1,3	1,8
a2	12	0,67	2222	1,52	0,95	4,0	5,0
b2	23	0,67	2865	1,18	0,95	2,8	3,0
c2	40	0,67	5274	0,61	0,95	1,3	1,7
	12	0,77	1920	1,63	0,96	4,6	3,8
	23	0,77	2570	1,24	0,96	3,4	2,1
	40	0,77	4680	0,65	0,96	1,8	1,4
a3	12	0,89	1722	1,74	0,97	5,2	3,1
b3	23	0,89	1937	1,31	0,96	4,0	1,6
c3	40	0,89	3736	0,68	0,97	2,2	1,1

TABLEAU 6.1 – Propriétés texturales, A_N , et tailles des côtés de VER (pour A_N et p) pour l'ensemble du jeu de mousses virtuelles :

6.2.2.b VER pour l'absorptance normale $A_{\rm N}$

La détermination des VER pour l'absorptance normale $\rm A_N$ a ensuite été réalisée via la méthode statistique précédemment décrite.

Détails sur les calculs réalisés

Pour chacun des 18 échantillons de mousse, 20 valeurs de *l* ont été testée. Pour chaque valeur de l, N_v = 30 réalisations du code MCRT sur des ROI aléatoirement positionnées au sein des grands échantillons numériques (800 × 800 × 800 voxels) ont été réalisées. La valeur d'absorptance normale obtenue par une réalisation MCRT pour une ROI cubique d'arête *l* sera notée par la suite A_{N,l}. Au total, la détermination des VER pour l'absorptance normale sur les 18 échantillons a ainsi nécessité 10800 réalisations du calcul de l'absorptance normale par le code MCRT. Afin de parvenir à réaliser de manière automatique ces séries de calculs, une procédure permettant le tirage de zones aléatoires, le chargement du maillage, la réalisation MCRT, le stockage des résultats puis le passage à la réalisation suivante a été développée. Une fois le nombre de réalisations par valeur de *l* souhaité atteint, la procédure passe à la valeur de *l* suivante. Tous ces calculs ont été réalisés avec les propriétés optiques n et k correspondant à la longueur d'onde $\lambda = 4 \mu m$ $(\omega = 2500 \text{ cm}^{-1})$, qui est située dans la bande de forte absorption de l' α – SiC (à T = 300 K), et donc fortement représentative de son comportement radiatif. Chaque réalisation MCRT a été réalisée avec $N_r = 10^5$ rayons, uniformément distribués sur un spot collimaté de forme circulaire inscrit à la face de la ROI cubique aléatoirement déterminée. Il est également important de noter que les larges échantillons numériques générés ($800 \times 800 \times 800$ voxels) permettent d'assurer des degrés de liberté satisfaisants pour le tirage aléatoire de ROI, et ce même lorsque *l* devient important.

Comportement radiatif d'un échantillon de mousse

Avant d'étudier les liens entre les propriétés texturales et radiatives des mousses, une meilleure compréhension de leur comportement radiatif est nécessaire. Dans ce but, les évolutions de R_{NH} , T_{NH} et A_N , moyennées sur les $N_v = 30$ réalisations en fonction de l, pour l'échantillon b2, est reportée en figure 6.5.



FIGURE 6.5 – R_{NH} (carrés bleus), T_{NH} (triangles rouges) et A_N (cercles noirs) moyennés sur les N_v = 30 réalisations MCRT en fonction de *l* pour l'échantillon de mousse b2 (23 PPI, *p* = 0.67), à T = 300 K et ω = 2500 cm⁻¹.

On peut remarquer que R_{NH} et T_{NH} convergent respectivement vers une valeur minimale et 0. Cela signifie que, pour une épaisseur critique, le caractère rétrodiffusant de la mousse reste le même, même si l'épaisseur de l'échantillon augmente, tandis qu'il n'y a plus de transmission au travers de la mousse. Ce comportement est typique d'un milieu isotherme et optiquement épais pour lequel l'absorptance normale reste la même quelle que soit l'épaisseur. Dans ce cas, la valeur de A_N est uniquement gouvernée par la valeur de R_{NH} . Cette propriété, fortement liée à la détermination du VER pour A_N , est partagée par toutes les mousses étudiées dans cette section. Dans le cas d'un milieu optiquement épais, la dispersion des valeurs d'absorptance normale obtenues sur les 30 réalisations correspond à celle des valeurs de R_{NH} . En effet, la forte absorption de l' α -SiC fait que la majeure partie du rayonnement est absorbée au sein des premières rangées de cellules. Ainsi, les valeurs de R_{NH} dépendent fortement de la géométrie de la face exposée au rayonnement. Le VER pour A_N dépendra donc à la fois du nombre de cellules incluses dans la face irradiée, ainsi que du nombre de rangées de cellules que comprend la zone caractérisée.

Établissement des VER

Les décroissances des écarts-types des valeurs de $A_{N,l}$ obtenues sur les 30 réalisations sont reportées en fonction de *l* sur la figure 6.6 (a), (b) et (c), respectivement pour les mousses de porosités égales à 0,48, 0,67 et 0,89.



FIGURE 6.6 – Évolutions des écarts-types sur les N_v valeurs $A_{N,l}$ de l'absorptance normale en fonction de la valeur du côté du cube *l*.

La convergence des valeurs $A_{N,l}$ est illustrée par les lignes noires pointillées représentant une valeur minimale de dispersion de 0,02. Lorsque l'écart-type devient inférieur à ce seuil, une valeur finale représentative de l'absorptance normale, dénotée ici $A_{N,f}$, peut alors être obtenue en calculant la moyenne des 30 réalisations $A_{N,l}$. La valeur de l permettant aux écart-types de satisfaire le seuil minimal de 0,02 rend possible l'estimation de la valeur de l'arête du VER (l_{A_N}) cubique qu'il convient de prendre en compte afin d'assurer la représentativité des échantillons caractérisés. Le choix de la valeur de 0,02 correspondant à un écart-type satisfaisant par rapport aux valeurs des écarts-types subsistant aux grandes valeurs de l. Cette valeur de seuil signifie qu'une valeur d'absorptance normale calculée dans un volume cubique de côté l_{A_N} (une réalisation $A_{N,l}$) peut être donnée avec une précision de \pm 0,02. Les valeurs de $A_{N,f}$ fournies dans le tableau 6.1 sont encore plus représentatives, car elles sont données par la moyenne de l'ensemble des 30 réalisations $A_{N,l}$, une fois le VER atteint.

Les écarts-types subsistants sont incompressibles et peuvent être observés sur toutes les mousses du jeu. Compte tenu des très faibles valeurs de la variance des estimateurs de Monte Carlo que représentent R_{NH} et T_{NH}, ces écart-types subsistants ne peuvent pas être liés à un nombre de rayons lancés N_r insuffisant. Comme nous l'avons vu, l'absorptance est principalement gouvernée par la réflectance. Le matériau étant très absorbant, celle-ci est elle-même majoritairement influencée par la fraction de rayons impactant la phase solide au niveau de la surface d'entrée, qui est irradiée à la normale par le spot. Ces rayons sont alors nécessairement renvoyés vers l'extérieur de l'échantillon pour contribuer à R_{NH}. Cette grandeur dépend alors quasiment exclusivement de la fraction de solide (ou porosité "2D") présentée par la face éclairée. Or nous avons vu, en section 5.3.2.a, que les mousses numériquement générées sont sujettes à des fluctuations de porosité 2D non négligeables. Comme les positions des ROI (cubiques et orientées selon les axes x y et z) sont aléatoirement tirées, ces fluctuations, qui constituent un artefact lié à la méthode de génération, se répercutent sur les dispersions des valeurs de R_{NH} et donc in fine, sur les écarts-types résiduels des dispersions des valeurs de A_{N,l}. Comme il est observé en section 5.3.2.a, moins la mousse est poreuse, plus les fluctuations de porosité 2D sont importantes. La répercussion de ces fluctuations sur les écarts-types résiduels peut être observée sur la figure 6.6, où celles-ci sont plus élevées pour les mousses les moins poreuses. Néanmoins le choix de la valeur du seuil à 0,02 permet de s'affranchir de cet artefact.

Analyse des résultats

On observe que des tendances sur les valeurs de VER l_{A_N} par rapport aux propriétés texturales principales (porosité, taille de cellule) se dégagent assez nettement. La figure 6.7 (a) montre l'évolution des valeurs de l_{A_N} en fonction de la porosité pour les 3 valeurs de PPI.



FIGURE 6.7 – Évolutions des côtés des VER cubiques pour l'absorptance (l_{A_N}) et pour la porosité (l_p) en fonction de la porosité de l'échantillon.

Pour les 6 valeurs de porosité, plus le PPI est faible, plus l_{AN} est grand. Une telle évolution peut être expliquée par le fait que, plus les cellules sont de grande taille (faible PPI), plus la face exposée au spot doit être grande afin d'inclure suffisamment de cellules pour être représentative. De plus, des cellules de petites tailles permettent d'obtenir une transmittance nulle avec de plus petites épaisseurs de mousses que dans le cas de grandes cellules. En conséquence, le cas optiquement épais, requis pour l'établissement du VER, est obtenu pour des valeurs de l_{AN} plus faibles. Le second enseignement que l'on peut tirer de ces résultats est que, pour chaque valeur de PPI fixée, l_{AN} augmente avec la porosité. Ce comportement est également lié à l'épaisseur optique, qui est plus grande pour les mousses hautement poreuses. Ces résultats signifient que pour des mousses à bas PPI et/ou haute porosité, un petit échantillon n'est pas suffisant pour assurer la représentativité d'une simulation numérique ou d'une mesure expérimentale. Les limitations relatives à la taille de l'échantillon inhérentes aux techniques de caractérisations telles que la μ -tomographie à rayon-X, ou la spectroscopie infrarouge (typiquement 1 cm³) peuvent dans ce cas de figure devenir problématiques pour ce type de matériaux.

6.2.2.c Comparaison avec le VER obtenu pour la porosité

Simultanément, les valeurs de porosité des ROI correspondant à chaque réalisation ont été calculées, permettant ainsi la détermination de la longueur de l'arête du VER cubique de la porosité, dénoté ici l_p . Cette détermination a été réalisée en suivant la même procédure que précédemment. l_p est également déterminé en choisissant un seuil d'écart-type à 0,02, comme expliqué dans l'exemple illustratif utilisé au début de cette section. De la même manière que pour $A_{N,f}$, la porosité finale représentative de chaque échantillon est obtenue en calculant la moyenne des 30 réalisations, dont chaque valeur peut fluctuer à hauteur de \pm 0,02 autour de la valeur moyenne, lorsque le seuil d'écart-type à 0,02 est atteint. Une seule mesure ou un seul calcul avec un échantillon de la taille du VER obtenu donne donc un résultat précis à \pm 0,02.

L'évolution des valeurs de l_p en fonction de la porosité pour les 3 valeurs de PPI est représentée en figure 6.7 (b). Comme pour l_{A_N} , l_p est plus grand lorsque le PPI est bas. Par contre, l_p décroit lorsque la porosité augmente. En effet les fluctuations de porosité entre deux réalisations sont plus faibles lorsque la fraction volumique de solide est faible pour les mousses hautement poreuses. Les tailles de VER nécessaires à une détermination fiable de la porosité évoluent donc selon un comportement inverse à celui observé pour l'absorptance normale. Cette évolution antagoniste nous enseigne qu'une attention particulière doit être portée lorsque le VER basé sur la porosité est utilisé en tant que VER radiatif. Pour les mousses à basses porosités (p < 0,7), le VER défini pour la porosité est plus grand que celui calculé pour A_N . Á l'inverse, si le VER défini pour p est utilisé pour des mousses hautement poreuses (p > 0,7), les volumes sont susceptibles d'être trop petits pour assurer une bonne représentativité de l'échantillon. Ceci est d'autant plus vrai dans le cas de mousses à faible PPI. Afin de procurer des spécifications quantitatives pour le dimensionnement des échantillons, les rapports entre l_{AN} et l_p ont été calculés pour chaque mousse. La figure 6.8 représente ces rapports en fonction du diamètre nominal de cellule d_{nom} pour chaque échantillon.



FIGURE 6.8 – Rapport entre l'arête du VER cubique pour l'absorptance (l_{A_N}) et l'arête du VER cubique pour la porosité (l_p) pour l'ensemble du jeu de mousses.

Pour les porosités les plus basses, ces rapports indiquent que l_{A_N} est inférieur à la moitié de l_p . Inversement, à hautes porosités, les valeurs de l_E peuvent être supérieurs au double de l_p .

6.2.3 Conclusions de l'étude des VER

Nous avons vu que le VER défini pour la porosité, pourtant largement utilisé en tant que VER radiatif pour l'application de méthodes numériques de prédiction des propriétés radiatives, est : (i) différent du VER déterminé pour l'absorptance normale; (ii) différemment influencé par les propriétés texturales de la mousse. Il convient donc de tenir compte des spécifications fournies par cette section lors de l'analyse des résultats de la campagne de simulations menée dans la section suivante. Nous verrons que les dimensions de certains échantillons aux propriétés texturales critiques (bas PPI, haute porosité) ne respecteront pas les tailles de VER requises pour la détermination de A_N et se révèlerons être optiquement minces.

Toutefois, ces résultats ne nous permettent pas d'affirmer que les VER déterminés dans cette section correspondent aux VER que l'on doit considérer pour une application fiable de la méthode RDFI. Pour répondre à cette question, nous étudierons en section 6.3.4.a les proportions de rayons sortant des échantillons sans intercepter la phase so-lide lors de l'application de la méthode RDFI. Nous verrons alors que ces proportions, qui conditionnent la validité de la méthode RDFI, dépendent des propriétés texturales. Il sera alors possible de faire le lien entre les VER nécessaires à la détermination de A_N via un calcul MCRT, et ceux que l'on doit prendre en compte pour l'application de la méthode RDFI.

6.3 Étude des liens entre propriétés texturales et radiatives

Cette section est consacrée à présent à l'utilisation intensive des outils développés au cours de cette thèse (générateur de mousses et méthodes de prédiction des propriétés radiatives) dans le but d'étudier les liens entre la texture des mousses et les propriétés radiatives. Il convient donc auparavant de décrire précisément la campagne de simulations qui a été menée.

6.3.1 Campagne de simulations

6.3.1.a Jeu d'échantillons générés

Les échantillons numériques constituant le jeu de mousses doivent avoir une taille fictive de $1 \times 1 \times 1$ cm. Ils sont issus de 8 mousses générées de manière à obtenir différentes valeurs de PPI (voir définition en section 2.4.3). Ensuite, chaque échantillon est décliné en 12 valeurs de porosité grâce au choix de seuils de binarisation adéquats (les valeurs de porosité d'un jeu issu d'un PPI donné à un autre issu d'un autre PPI ne sont donc pas précisément égales). Les paramètres de génération utilisés pour les 8 échantillons de base sont résumés dans le tableau 6.2 :

Le jeu de mousses dans son ensemble est donc constitué de 96 mousses. La figure 6.9 montre les échantillons correspondant aux 8 valeurs de PPI pour les porosités proches de 0,68.

Échantillon	PPI	l _{lat}	Résolution	taille de la ROI
		voxel	µm/voxel	voxel
1	48	20	16.6666	600 ³
2	38	30	25	400^{3}
3	28	40	25	400^{3}
4	20	50	25	400^{3}
5	17	60	25	400^{3}
6	14	70	25	400^{3}
7	12	80	25	400^{3}
8	10	90	25	400^{3}

TABLEAU 6.2 – Paramètres de génération utilisés pour générer les 8 mousses de base :



FIGURE 6.9 – Reconstruction 3D des 8 échantillons de base pour les porosités proches de 0,68.

La figure 6.10 illustre quant à elle la gamme de 12 porosités que l'on peut obtenir à partir d'un échantillon de base, en l'occurrence celle issue de l'échantillon 2 (38 PPI).

La texture des 96 mousses a ensuite été caractérisée via iMorph. Les porosités, surfaces spécifiques et distributions de tailles de cellules ont été calculées. Le tableau 6.3 récapitule ces propriétés pour la gamme de porosité issue de la mousse à 38 PPI, exposée en figure 6.10. Les autres tableaux correspondant à l'ensemble du jeu de mousses peuvent également être consultés en annexe C.

Les limitations d'ordre informatique permettent d'expliquer les limites relatives à *p* et d_{nom} pour ce jeu de 96 mousses. La taille maximale des volumes que iMorph est capable de traiter avec un certain confort en termes de temps de calcul et d'utilisation de RAM pour les divers modules de calcul (texturaux et radiatifs) est équivalente à des images 3D de 800 × 800 × 800 voxels. Lorsque l'on souhaite garder pour le jeu de mousses entier des résolutions voxéliques proches, pour éviter tout biais lié à la résolution de maillage, il est dans ce cas difficile de générer des matériaux à PPI très élevé. C'est pour cette raison que l'échantillon à 45 PPI a été généré dans un volume de 750 × 750 × 750 voxels avec une résolution voxélique de 16.66 µm/voxels, afin que la taille fictive de l'échantillon numérique soit équivalente à un cm³. Pour cet échantillon, cette résolution plus élevée a permis de décrire correctement la morphologie des cellules, dont les tailles sont bien plus réduites dans ce cas, et a également fourni une plus grande souplesse pour l'obtention de la gamme de porosités via l'étape de binarisation.



FIGURE 6.10 – Gamme de porosités obtenue pour la mousse 2 (PPI = 38). ROI de 1 cm³ (400 × 400 × 400 voxels). La gamme de porosités va de p = 0.94 (a), jusqu'à p = 0.37 (b), par pas d'environ 0.05.

TABLEAU 6.3 – Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à partir de l'échantillon 2 (38 PPI) :

Échantillon	PPI	p	S _s	d _{nom}
			$(m^2.m^{-3})$	(mm)
2A	38	0,94	2360	825 ± 65
2B	38	0,88	3187	807 ± 64
2C	38	0,83	3737	787 ± 66
2D	38	0,78	4021	774 ± 67
2E	38	0,72	4340	750 ± 69
2F	38	0,67	4483	734 ± 66
2G	38	0,63	4571	716 ± 66
2H	38	0,58	4608	696 ± 70
2I	38	0,53	4596	676 ± 68
2J	38	0,48	4542	655 ± 70
2K	38	0,42	4386	628 ± 85
2L	38	0,37	4238	597 ± 74

6.3.1.b Propriétés calculées et fréquences retenues pour la campagne de simulations

Pour chacun de ces 96 échantillons, les propriétés suivantes ont été calculées :

1. Paramètres texturaux :

- porosité *p*,
- surface spécifique S_s,
- distribution de taille et diamètre nominal de cellule d_{nom} .
- 2. Méthode MCRT :
 - absorptance normale A_N ,
 - réflectance normale hémisphérique $R_{\rm NH}$,
 - transmittance normale hémisphérique T_{NH} ,
 - statistiques liées au transport du rayonnement (voir section 4.3) :
 - réflectivité locale moyenne,
 - distribution des angles d'incidence,
 - profils de l'énergie absorbée en fonction de la profondeur *z*.
- 3. Méthode RDFI:
 - coefficient d'extinction β ,
 - coefficient d'absorption α ,
 - coefficient de diffusion σ (et albédo de diffusion ω_d),
 - fonction de phase de diffusion Φ .

Les calculs ont été réalisés pour 9 couples n et k correspondant à 9 fréquences différentes. Le premier couple correspond à celui caractérisant l' α – S*i*C à ω = 2500 cm⁻¹, qui correspond à une partie régulière et étendue du spectre de réflectivité de l' α -SiC, représentative de la forte absorption le caractérisant. Rappelons que la méthode d'identification qui permet de l'obtenir est décrite en en annexe B. Les 8 autres couples n et k sont des couples synthétiques choisis de manière à garantir le respect de l'hypothèse d'un matériau opaque, tout en permettant une grande variété dans les réflectivités locales moyennes ρ_m obtenues. Le tableau 6.4 récapitule l'ensemble des couples n et k utilisés pour cette campagne de simulations.

nombre d'onde	n	k	ρ_m
cm^{-1}			
2500	1,70	0,57	0,137
arbitraire	1,5	0,5	0,114
arbitraire	2,5	1	0,269
arbitraire	2	2	0,400
arbitraire	2,5	3	0,529
arbitraire	2,5	4	0,637
arbitraire	2,5	5	0,718
arbitraire	2	6	0,809
arbitraire	1,5	8	0,905
	nombre d'onde cm ⁻¹ 2500 arbitraire arbitraire arbitraire arbitraire arbitraire arbitraire arbitraire arbitraire arbitraire arbitraire	nombre d'onde cm^{-1} n25001,70arbitraire1,5arbitraire2,5arbitraire2,5arbitraire2,5arbitraire2,5arbitraire2,5arbitraire2,5arbitraire2,5arbitraire2,5arbitraire2,5arbitraire2,5arbitraire1,5	nombre d'onde cm^{-1} nk 2500 1,700,57arbitraire1,50,5arbitraire2,51arbitraire2,53arbitraire2,54arbitraire2,55arbitraire2,55arbitraire26arbitraire1,58

TABLEAU 6.4 – Couples n et k du SiC et synthétiques utilisés lors de la campagne de simulations :

6.3.2 Étude des propriétés texturales du jeu de mousses

Cette section a pour but de mettre en lumière les corrélations les plus significatives pour ce travail de thèse entre les différentes propriétés texturales du jeu de mousses. Les propriétés texturales de l'ensemble du jeu de mousses peuvent être consultées en annexe C.

6.3.2.a Évolution du diamètre nominal de cellule d_{nom} en fonction de la porosité p

Les valeurs du diamètre nominal de cellule d_{nom} calculées pour l'ensemble du jeu de mousses sont reportées en figure 6.11 en fonction de la porosité.



FIGURE 6.11 – Évolution du diamètre nominal de cellule d_{nom} en fonction de la porosité pour l'ensemble du jeu de mousses.

Cette figure permet de visualiser la concurrence entre les deux principaux facteurs qui nous permettent de jouer sur la taille de cellule. La valeur de PPI permet de faire varier fortement la valeur de d_{nom} via le choix du paramètre l_{lat} . Ensuite, pour chaque valeur de PPI, l'étape de binarisation permet d'obtenir de fines variations de porosité, qui offrent un contrôle plus précis du diamètre de cellule d_{nom} . On peut remarquer notamment que, lorsque la valeur de PPI est basse, l'augmentation de la porosité fait croître linéairement d_{nom} de manière plus prononcée que lorsque celle-ci a lieu au sein d'un arrangement de cellules plus petites et nombreuses. Cette double échelle de contrôle permet d'obtenir sur l'ensemble du jeu de mousses une variété de tailles de cellules satisfaisante : les échantillons numériques présentent des tailles de cellules allant de 0,4 mm à 2,6 mm, ce qui est satisfaisant par rapport à la gamme des mousses généralement utilisées en tant qu'absorbeurs volumétriques.

Une rapide étude de ces relations linéaires permet d'initier une discussion sur l'exactitude des valeurs de PPI utilisées pour désigner nos jeux de mousses. Si l'on en revient à la définition exacte fournie en section 2.4.3, une valeur de PPI peut être définie indépendamment de la porosité. Les résultats présentés sur la figure 6.11 permettent d'exprimer l'évolution de d_{nom} en fonction de la porosité via une expression linéaire classique :

$$d_{nom} = a_{\rm PPI} \times p + b_{\rm PPI},\tag{6.1}$$

dont la valeur pour la pente (dénotée ici a_{PPI}) et l'ordonnée à l'origine (b_{PPI}) peuvent aisément être calculées puis reportées dans le tableau 6.5.

Le premier enseignement surprenant est constitué par les valeurs des ordonnées à l'origine : là où celles-ci devraient être nulles ($d_{nom} = 0$ à p = 0), elles ne le sont pas, ce

PPI estimé	$a_{\rm PPI}$	$b_{\rm PPI}$	$a_{\rm PPI} + b_{\rm PPI}$	PPI calculé
	μm	μm	μm	
10	1219	1382	2601	9,8
12	1068	1228	2296	11,1
14	949	1065	2014	12,6
17	773	926	1699	15,0
20	665	766	1431	17,7
28	534	605	1139	22,3
38	394	463	857	29,6
45	267	307	574	44,3

TABLEAU 6.5 – Paramètres obtenus pour les doites $d_{nom} = f(p)$ et PPI recalculés pour l'ensemble du jeu de mousses :

qui laisse supposer une évolution non linéaire de $d_{nom} = f(p)$ pour de très basses valeurs de porosité. Néanmoins la linéarité obtenue pour notre jeu de mousses permet le calcul d'une valeur de PPI exacte. En se plaçant dans le cas où p = 1 (ce qui revient à additionner a_{PPI} et b_{PPI}), une taille de cellule "générique" peut être estimée, donnant accès ensuite à la valeur correspondant à la définition exacte du PPI. Le tableau montre des écarts parfois importants entre le PPI qualitatif "classique" estimé par une observation grossière et le PPI calculé à partir des CSD sur un grand jeu de mousses. Ces écarts montrent bien le caractère capricieux de l'utilisation d'une telle unité à des fins quantitatives lorsque celuici est déterminé plus ou moins visuellement. Toutefois, le PPI est utilisé dans ce travail de thèse seulement pour distinguer les jeux de mousses les uns des autres. Nous garderons donc par commodité dans la suite de ce manuscrit les valeurs de PPI initialement estimées.

6.3.2.b Évolution de la surface spécifique S_s en fonction de la porosité p et du diamètre nominal de cellule d_{nom}

Les valeurs des surfaces spécifiques calculées pour l'ensemble du jeu de mousses sont reportées en figure 6.12 en fonction de la porosité de l'échantillon.

On observe que plus le nombre de PPI est élevé, plus S_s est importante. Ce premier enseignement peut être expliqué de manière assez triviale : plus le PPI est élevé, plus il y a de cellules et par conséquent de brins. Les surfaces composant chacun d'entre eux contribuent alors à fortement augmenter S_s . L'évolution de S_s en fonction de la porosité est plus difficile à cerner : pour de très faibles porosités, les brins sont épais, et les volumes présentés par les cellules (et par extension leurs surfaces) sont réduites. Plus on augmente la porosité, plus le volume des cellules augmente, jusqu'à un optimum (pour une porosité de 0,55 environ). Ensuite, l'accroissement de la porosité fait que la surface des brins diminue, réduisant de ce fait la valeur de S_s . Cette évolution est observée sur l'ensemble du jeu de mousses. On peut noter toutefois que l'importance des tendances précédemment évoquées est proportionnelle au nombre de cellules présenté par l'échantillon. En effet, plus le nombre de PPI est grand, plus l'allure de cette évolution est marquée.



FIGURE 6.12 – Évolution de la surface spécifique S_s en fonction de la porosité p pour l'ensemble du jeu de mousses.

6.3.3 Influence de la porosité p sur l'absorptance normale A_N

Nous allons dans cette section étudier l'influence du paramètre textural principal des mousses, la porosité *p*, sur les propriétés radiatives mesurables que nous pouvons calculer grâce à la méthode MCRT (l'absorptance normale A_N , la réflectance normale-hémisphérique R_{NH} et la transmittance normale-hémisphérique T_{NH}). L'objectif de cette étude est de pouvoir proposer une relation simple qui soit en mesure de pouvoir estimer l'absorptance normale A_N d'une mousse, qui constitue l'une des propriétés radiatives de grand intérêt pour les absorbeurs solaires volumétriques, à partir des paramètres texturaux de la mousse et des propriétés optiques effectives de la phase solide la constituant. Nous allons premièrement présenter les observations faites pour les simulations réalisées pour le couple de *n* et *k* de l' α -SiC, à $\omega = 2500$ cm⁻¹ et T = 300 K (bande de forte absorption de l' α -SiC).

6.3.3.a Absorptance en fonction de la porosité (α -SiC à 300 K et 2500 cm⁻¹)

La figure 6.13 représente les absorptances normales calculées pour l'ensemble du jeu de mousses en fonction de la porosité. On remarque une croissance linéaire de A_N avec p, avant d'observer une chute de celle-ci, plus précoce si la taille des cellules est importante (bas PPI). La croissance linéaire semble quant à elle indépendante de la taille de cellule.

Afin d'expliquer ce comportement, il convient de tracer les évolutions de $R_{\rm NH}$ et $T_{\rm NH}$, dont $A_{\rm N}$ est directement déduite.

Évolution de R_{NH} en fonction de la porosité

L'évolution de R_{NH} en fonction de la porosité pour l'ensemble du jeu de mousses est représentée en figure 6.14).



FIGURE 6.13 – Évolution de l'absorptance normale A_N en fonction de la porosité p pour l'ensemble du jeu de mousses.



FIGURE 6.14 – Évolution de la réflectance normale-hémisphérique R_{NH} en fonction de la porosité *p* pour l'ensemble du jeu de mousses.

La figure 6.14 montre que l'évolution de $R_{\rm NH}$, décroissante et linéaire, est à l'origine de l'évolution linéaire de $A_{\rm N}$. Ce comportement est lié à la fraction d'énergie renvoyée dans la direction du spot, qui augmente proportionnellement à la fraction de phase solide présentée en cet endroit. Cette fraction de phase solide est directement égale à la porosité de la mousse, moyennant l'amplitude des fluctuations de porosité (voir sections 2.4.1 et 5.3.2.a). Il est donc logique de voir $R_{\rm NH}$ proportionnelle à la porosité, et ce, indépendamment du diamètre de cellule.

Évolution de T_{NH} en fonction de la porosité

L'évolution de T_{NH} en fonction de la porosité pour l'ensemble du jeu de mousses est représentée en figure 6.15).



FIGURE 6.15 – Évolution de la transmittance normale-hémisphérique T_{NH} en fonction de la porosité *p* pour l'ensemble du jeu de mousses.

L'évolution de T_{NH} montre l'origine des chutes de l'absorptance normale A_N observées en figure 6.13. Elles témoignent du fait que l'hypothèse d'épaisseur optique (expliquée et quantifiée également en section 6.2), n'est plus respectée pour les échantillons dont la porosité est élevée. Ce phénomène est observé de manière plus précoce avec les échantillons dont la taille de cellule plus grande permet leur alignement de manière plus fréquente. Dans ce cas de figure, la contribution de la transmittance directe à la transmittance normale-hémisphérique T_{NH} est plus importante.

Linéarité de $A_N = f(p)$ pour des échantillons optiquement épais

Les précédentes observations rejoignent les conclusions établies à l'issue de l'étude des VER (section 6.2). Conformément à celles-ci, si nous supposons des échantillons optiquement épais, il devient convenable de penser que l'absorptance normale A_N est entièrement décrite par la réflectance normale-hémisphérique R_{NH} (si $T_{NH} = 0$, $A_N = 1 - R_{NH}$). Ainsi, en l'absence des chutes liées à la transmission directe du rayonnement au travers de l'échantillon, l'absorptance normale varie donc linéairement avec la porosité (voir figure 6.16).

Nous allons à présent nous intéresser plus précisément au caractère linéaire de cette évolution. Tout d'abord, il convient de remarquer que les droites $A_N = f(p)$ relatives à chaque PPI sont relativement bien superposées. Le coefficient directeur ainsi que l'ordonnée à l'origine ne semblent pas être dépendants de la taille des cellules. Les faibles écarts qui subsistent entre les droites sont liées aux fluctuations de porosités 2D que peut connaître la face d'entrée en fonction de la position de l'échantillon, au moment de sa



FIGURE 6.16 – Évolution de l'absorptance normale A_N en fonction de la porosité p pour l'ensemble du jeu de mousses, en supposant que les échantillons sont optiquement épais.

définition, dans les images générées. Comme cette face irradiée est définie une seule fois pour un jeu pour une valeur de PPI donnée (au moment de la création de l'échantillon), cette perturbation est retrouvée sur toutes les déclinaisons de porosités qui sont liées à cette valeur. En d'autres termes, l'ensemble des points d'une même droite est affectée de la même manière par ce phénomène, et leurs pentes $A_N = f(p)$ ne sont pas affectées. Il est donc possible de s'affranchir de ces perturbations en identifiant un coefficient directeur S_{dir} et une ordonnée à l'origine $A_{N,p=0}$ (par ailleurs égale à $A_{N,b}$) uniques obtenus en moyennant ceux résultant des régressions linéaires sur chacune des droites. Ainsi, l'absorptance normale d'une mousse $A_{N,m}$ peut, et ce quel que soit le diamètre moyen de cellule, être directement donnée par l'expression suivante :

$$A_{N,m} = S_{dir} \times p + A_{N,p=0}, \tag{6.2}$$

avec $S_{dir} = 0,088$ et $A_{N,p=0} = 0,889$ dans le cas du SiC à $\omega = 2500$ cm⁻¹ et à 300 K (droite en pointillés dans la figure 6.16). L'ordonnée à l'origine $A_{N,p=0}$ correspond au cas où la porosité est nulle. Afin de s'assurer de la validité d'un tel résultat, nous pouvons le comparer à celui du calcul MCRT de l'absorptance normale d'un échantillon plein opaque ($A_{N,p=0}$, ou A_{Nb} , correspondant au matériau bulk), réalisé dans les mêmes conditions (voir section 4.2.1). L'absorptance normale du bulk A_{Nb} ainsi calculée est égale à 0,890, ce qui est en accord avec la valeur de $A_{N,p=0}$ déduite de la droite obtenue à partir des simulations réalisées sur le jeu de mousses complet. Cette valeur est par ailleurs retrouvée en utilisant la relation qui lie l'émissivité E_b (considérant la loi de Kirchhoff, $E_b = A_{N,b}$) d'une lame homogène optiquement polie et opaque d' α -SiC aux propriétés optiques effectives (n et k) du matériau homogène qui le constitue (voir équation 4.2). Pour les n et k de l' α -SiC à $\omega = 2500$ cm⁻¹ et à 300 K, on trouve $A_{N,b} = E_b = 0,894$, ce qui valide également la valeur de $A_{N,p=0}$ déterminée avec le jeu de mousses complet. À partir de ces considérations, il est désormais possible d'exprimer l'absorptance normale d'une mousse directement en fonction de sa porosité et des propriétés optiques du matériau la constituant :

$$A_{N,m} = 0,088 \times p + \frac{4n}{(n+1)^2 + k^2}.$$
(6.3)

Néanmoins, il convient de rappeler que cette relation (et à fortiori la valeur de la pente S_{dir}) est vérifiée pour le cas particulier de l' α -SiC à ω = 2500 cm⁻¹ et à 300 K.

6.3.3.b Généralisation de la linéarité de $A_{N,m} = f(p, n, k)$ à d'autres matériaux (couples synthétiques *n* et *k*)

Puisque les paramètres donnant $A_{N,m} = f(p)$ (S_{dir} et $A_{N,p=0}$) semblent seulement dépendre de la porosité de la mousse (mis à part $A_{N,p=0}$, qui est impacté légèrement par les fluctuations de porosité de la face éclairée par le spot), les questions qui se posent afin d'aller plus loin sont les suivantes : ce type de relation linéaire est-il généralisable à d'autres matériaux / nombres d'onde / températures ? Si oui, est-ce possible d'expliciter la valeur de la pente S_{dir} en fonction des propriétés du matériau ?

Afin de répondre à ces interrogations, nous avons utilisé les résultats obtenus avec les 8 couples synthétiques (voir le tableau 6.4 ou le tableau 6.6 ci-dessous) permettant d'obtenir une grande variété sur les valeurs de réflectivité locale moyenne ρ_m (notion définie en section 4.3.1). La première étape consiste à s'assurer que les couples proposés procurent une grande variété sur les valeurs de la réflectivité locale moyenne ρ_m . La réflectivité locale moyenne est une grandeur statistique qui est définie en section 4.3.1.

Au cours de chaque calcul MCRT de l'absorptance normale effectué dans cette campagne, la valeur de ρ_m a donc été calculée. Il ressort de cette étude deux affirmations importantes : (i) ρ_m est totalement indépendant de la texture de la mousse, et (ii) ρ_m dépend seulement des propriétés optiques de la phase solide. Chaque couple *n* et *k* correspond à une réflectivité locale moyenne dont les valeurs sont identiques pour tous les calculs MCRT sur l'ensemble du jeu de mousses. Ces valeurs sont par ailleurs reportées dans le tableau 6.4.

À présent que nous sommes assurés d'être en présence de matériaux opaques, mais de comportements optiques différents, la même étude que précédemment $(A_{N,m} = f(p))$ a été réalisée pour les 8 couples synthétiques. La figure 6.17 récapitule les résultats ainsi obtenus. Nous nous plaçons dans le cas de matériaux optiquement épais en négligeant les transmittances normales-hémisphériques T_{NH} , de la même façon que pour l'étude réalisée précédemment pour les *n* et *k* du SiC.

On observe que le caractère linéaire de $A_{N,m} = f(p)$ est globalement conservé, même dans le cas de matériaux fortement réflectifs. L'effet de la fluctuation de la porosité 2D de la face d'entrée, qui empêche les droites $A_{N,m} = f(p)$ de se superposer se fait ressentir de manière bien plus importante dans le cas des matériaux très réflectifs. Pour autant il est possible de distinguer relativement bien les groupes de droites correspondant à chaque couple. Pour les matériaux les plus réflectifs, on observe une sortie franche du caractère linéaire de $A_{N,m} = f(p)$ pour les hautes porosités, repérée par la zone rouge sur la figure 6.17. De la même manière que précédemment, les régressions linéaires (moyennées sur tous les PPI pour chaque groupe) ont été calculées, seulement avec les points situés en dehors de la zone de non-linéarité. Les valeurs caractéristiques de ces droites $A_{N,p=0}$, S_{dir}



FIGURE 6.17 – Évolutions de l'absorptance normale A_N en fonction de la porosité p pour l'ensemble du jeu de mousses (pour les 8 couples n et k synthétiques ainsi que pour l' α -SiC à ω = 2500 cm⁻¹ et à 300 K). De la même manière que pour la figure 6.16, on suppose que l'échantillon est optiquement épais. Les droites en pointillés représentent les régressions linéaires moyennes réalisées avec les points en dehors de la zone où le comportement linéaire de $A_{N,m} = f(p)$ n'est plus respecté (représentée en rouge).

sont reportées dans le tableau 6.6.

Couple n°	nombre d'onde	n	k	ρ_m	E _b	$A_{N,p=0}$	écart	S _{dir}
	cm^{-1}						%	
1	2500	1,70	0,57	0,137	0,894	0,889	0,5	0,088
2	arbitraire	1,5	0,5	0,11409	0,923	0,921	0,2	0,063
3	arbitraire	2,5	1	0,26975	0,754	0,745	1,4	0,202
4	arbitraire	2	2	0,40094	0,615	0,594	3,4	0,317
5	arbitraire	2,5	3	0,52912	0,470	0,438	4,6	0,423
6	arbitraire	2,5	4	0,63718	0,353	0,304	14,0	0,511
7	arbitraire	2,5	5	0,71820	0,268	0,216	19,4	0,544
8	arbitraire	2	6	0,80924	0,177	0,104	41,2	0,593
9	arbitraire	1,5	8	0,90533	0,085	-0,008	109,4	0,603

TABLEAU 6.6 – Résultat des régressions linéaires sur les droites $A_{N,m} = f(p)$:

Afin de tester la validité de l'utilisation d'un modèle tel que l'équation 6.3 pour d'autres types de matériaux, les valeurs des ordonnées à l'origine ($A_{N,p=0}$, rappelons ici que $A_{N,p=0} = A_{N,b}$) de ces relations linéaires ont été comparées aux valeurs théoriques correspondantes de l'émissivité du bulk E_b (voir équation 4.2). Il ressort de cette comparaison que, pour les matériaux très absorbants (couples 1, 2 et 3), la droite permet de retrouver très précisément la valeur de E_b , et relativement moins précisément pour les couples 4 et 5. En revanche, plus le matériau est réflectif, plus l'utilisation d'un modèle linéaire s'avère hasardeuse, car l'écart entre E_b et $A_{N,p=0}$ devient important. Mais le résultat le plus intéressant découle de l'étude de l'évolution des valeurs des pentes S_{dir} de ces droites, représentées en fonction de ρ_m en figure 6.18.



FIGURE 6.18 – Évolution des pentes des relations $A_{N,m} = f(p)$, (S_{dir}) en fonction de la réflectivité locale moyenne ρ_m . En rouge, figurent les points obtenus pour des couples synthétiques supplémentaires simulant également des matériaux opaques. La régression linéaire correspondant à la droite $S_{dir} = f(\rho_m)$ est représentée en pointillés noirs.

On remarque que, pour des ρ_m inférieures à 0,65, les pentes S_{dir} sont directement proportionnelles aux ρ_m correspondantes. Afin de s'assurer de la validité de ce résultat, les valeurs de S_{dir} et ρ_m issues d'une étude antérieure, incluant davantage de couples synthétiques (réalisée sur le jeu de 18 mousses utilisé lors de l'étude du VER, voir figure 6.4), ont été ajoutées à la figure (croix rouges). La régression linéaire effectuée sur la droite S_{dir} = $f(\rho_m)$ (en excluant les valeurs de S_{dir} correspondant à des valeurs de ρ_m supérieures à 0,65) permet d'expliciter S_{dir} dans l'équation 6.2. Ainsi l'absorptance normale $A_{N,m}$ d'un échantillon de mousse peut directement être donnée en fonction de sa porosité, de n et de k:

$$A_{N,m}(p,n,k) = 0.8 \times \rho_m \times p + \frac{4n}{(n+1)^2 + k^2} = 0.8 \times \rho_m \times p + A_{N,b}(n,k)$$
(6.4)

6.3.3.c Conclusions : vers une relation compacte pour prédire l'absorptance normale

L'objectif de l'ensemble de ces investigations est de pouvoir proposer une relation simple permettant d'estimer de manière fiable l'absorptance normale $A_{N,m}$ d'une mousse sans pour autant mettre en œuvre des techniques lourdes comparables à celles utilisées dans ce travail (génération numérique de matériau cellulaire, MCRT). Celui-ci est presque atteint : l'absorptance normale d'une mousse, si tant est que le matériau qui la compose ne soit pas trop réflectif ($\rho_m < 0,65$) et que ses propriétés radiatives effectives soient connues, peut être estimée de manière relativement précise, à partir de la connaissance de *n* et *k*, ainsi que de sa porosité. Néanmoins, il subsiste toujours une inconnue dans l'équation 6.4 : ρ_m , qui dans notre cas est calculée via la procédure MCRT. Cette étude nous informe également que ρ_m est indépendante de la texture de la mousse, ce qui laisse présumer qu'elle dépend uniquement de *n* et *k*. Nous reviendrons dans la suite de ce manuscrit sur l'équation 6.4, car nous découvrirons que ρ_m peut être également identifié à une autre propriété radiative, homogénéisée cette fois-ci, qui est l'albédo de diffusion. De plus nous tenterons de confirmer l'indépendance de ρ_m à la texture.

6.3.4 Influence des propriétés texturales sur les propriétés radiatives homogénéisées

À l'instar de l'étude menée sur l'absorptance normale, l'objectif de cette section consiste, à partir des résultats fournis par la méthode RDFI sur l'ensemble du jeu de mousses, à établir des relations simples liant les principaux paramètres texturaux aux propriétés radiatives homogénéisées (β , α , σ et Φ). Nous verrons notamment que les corrélations fournissant β en fonction des principaux paramètres texturaux, usuellement utilisées dans la littérature [Hendricks et Howell, 1996], pourront être confrontées aux résultats de cette étude.

6.3.4.a Détermination des VER pour la méthode RDFI

Comme il est précisé en section 4.4.4, la méthode RDFI est valide si l'hypothèse de milieu Beerien est respectée. Ce critère, dans le cas des mousses, nécessite à la fois que la zone de tir dans laquelle sont prises aléatoirement les positions de départ des rayons soit suffisamment grande pour être représentative de l'échantillon, mais également que la proportion de rayons sortant de la ROI sans avoir impacté la phase solide soit négligeable. Les résultats de la méthodes RDFI ne seront par la suite considérés valides que lorsque la proportion de rayons sortis sera inférieure à 2 %. Le respect de ces deux conditions revient alors à observer un compromis sur la taille de la zone de tir (ni trop petite, ni trop étendue). La figure 6.19 montre la proportion de rayons sortis de l'échantillon (en %) en fonction de la porosité pour l'ensemble du jeu de mousses.



FIGURE 6.19 – Évolution du pourcentage de rayons sortis de l'échantillon en fonction de la porosité pour l'ensemble du jeu de mousses. La limite fixée à 2% est représentée par la ligne en pointillés noirs.

On remarque que le compromis exposé précédemment est relativement difficile à ob-

tenir pour les échantillons à haute porosité et à bas PPI (à moins de disposer d'échantillons numériques de tailles très importantes). En effet la proportion de rayons sortis dépasse la limite tolérée de 2 % dès p = 0,65 pour les échantillons à très bas PPI, et seulement à partir de p = 0,95 pour les PPI les plus élevés. Les tendances observées ici sont à mettre en parallèle avec les évolutions de la transmittance normale-hémisphérique (voir la figure 6.15), qui sont en tout point similaires sur l'ensemble du jeu de mousses. Ainsi, la proportion de rayons sortis d'un échantillon donné peut être assimilée à la notion d'épaisseur optique qu'il est nécessaire de respecter pour observer l'hypothèse d'un milieu Beerien. Les VER que nous devons respecter afin d'appliquer de manière fiable la méthode RDFI sont donc les mêmes que ceux qui doivent être considérés pour la détermination de l'absorptance normale A_N . Ces résultats permettent donc de donner les mêmes spécifications concernant les tailles des échantillons (en fonction de la texture) pour la caractérisation des propriétés radiatives homogénéisées via la méthode RDFI appliquée à un échantillon réel tomographié.

Conclusions : similarité des VER pour l'absorptance normale et le coefficient d'extinction

Les conclusions établies lors de l'étude de l'influence de la texture sur la taille du VER pour l'absorptance normale sont par conséquent également valables pour l'application de la méthode RDFI. Via une mesure de transmittance normale-hémisphérique, l'expérimentateur peut, avant de réaliser une tomographie de l'échantillon qui peut se révéler coûteuse, s'assurer que la méthode RDFI sera applicable. Pour la suite de ce manuscrit, les résultats obtenus via la méthode RDFI pour lesquels la proportion de rayons sortis de l'échantillon sans avoir frappé la phase solide est supérieure à 2% n'ont pas été considérés.

6.3.4.b Calculs des coefficients d'extinction β en fonction de *p* et d_{nom}

La méthode RDFI permet l'identification de β via l'assimilation de la fonction de distribution cumulée d'extinction G_e (équation 4.5) à la loi de Beer-Lambert gouvernant la décroissance de la luminance au travers d'un milieu homogène semi-transparent (équation 3.34) caractérisé par ce même β . G_e est construite à partir de la distribution de longueur de cordes caractérisant la mousse. Cela signifie que l'extinction, déterminée via la méthode RDFI, est une propriété radiative dépendant uniquement de la géométrie de la mousse. Nous allons à présent étudier l'influence des propriétés texturales des mousses sur leur coefficient d'extinction. Les résultats suivants concernant β sont donc valables pour n'importe quel couple *n* et *k*. La figure 6.20 montre l'évolution du coefficient d'extinction en fonction de la porosité, pour l'ensemble du jeu de mousses :

On observe que, pour chaque jeu de porosité issu d'une mousse d'un PPI donné, β décroît linéairement avec la porosité. Contrairement à l'absorptance normale, sur laquelle la taille de cellule n'a pas d'influence (mis à part dans le cas où l'hypothèse d'épaisseur optique n'est pas respectée), une décroissance linéaire de β avec *p* différente est établie à chaque valeur de PPI. Les mousses présentant un grand PPI présentent des β plus importants, et une décroissance avec *p* plus prononcée. La valeur du coefficient d'extinction est influencée par une compétition entre *p* et *d*_{nom}. Celle-ci peut également être illustrée par



FIGURE 6.20 – Évolution du coefficient d'extinction en fonction de la porosité pour l'ensemble du jeu de mousses.

la figure 6.21, qui montre l'évolution du coefficient d'extinction en fonction du diamètre moyen de cellule.



FIGURE 6.21 – Évolution du coefficient d'extinction en fonction du diamètre moyen de cellule pour l'ensemble du jeu de mousses.

Les mêmes observations que précédemment peuvent être tirées de cette représentation concernant la compétition entre p et d_{nom} . Les mousses dont le PPI est le plus important, permettent d'atteindre des β plus élevés que les autres lorsque la porosité est réduite. À l'inverse, pour un PPI donné, plus la porosité augmente, plus β est faible, ce comportement étant bien plus prononcé pour des PPI importants.

Confrontation des résultats avec les modèles proposés dans la littérature

Les résultats obtenus par la méthode RDFI sur l'ensemble du jeu de mousses peuvent à présent être confrontés au modèle initialement proposé par Hsu et Howell [1992] dont nous rappelons ici l'équation :

$$\beta = \frac{C_{\rm H}(1-p)}{d_{nom}} \tag{6.5}$$

Ce modèle, basé sur l'optique géométrique et établi en considérant la mousse comme une dispersion de particules sphériques monodisperse de diamètre d_{nom} , a ensuite été affiné par les travaux de Hendricks et Howell [1996] qui montrent notamment que celui-ci est valide pour certaines valeurs de d_{nom} , et que le coefficient C_H peut varier en fonction du matériau constitutif des mousses. Ces ajustements ont été établis à partir de l'identification de β sur des mousses de OB-SiC (oxyde bonded silicon carbide) et de PS-ZrO₂ (zircone partiellement stabilisée), pour des textures relativement peu variées (10, 20 et 65 PPI à p = 0.8 pour les mousses de OB-SiC, et 10, 20 et 65 PPI à p = 0.85 pour les mousses de PS-ZrO₂). La méthode d'identification consiste à inverser des modèles de résolution de l'ETR (Méthode des Ordonnées Discrètes) à partir de mesures de T_{NH} et de R_{NH} réalisées sur les échantillons de mousses. En comparant les résultats finalement obtenus au modèle, cette étude a montré que la corrélation traduite par l'équation 6.5 est valide pour des mousses présentant des $d_{nom} \gg 0,6$ mm, et que le coefficient C_H doit être ajusté selon le matériau constituant la mousse (C_H = 4,8 pour l'OB-SiC, 4,4 pour le PS-ZrO₂). Puisque nous connaissons précisément p et d_{nom} pour chaque échantillon, il est possible de calculer pour chacun d'entre eux le coefficient d'extinction donné par l'équation 6.5. La figure 6.22 (a) compare, en fonction de d_{nom} , les valeurs de β obtenues par la méthode RDFI avec celles prédites par l'équation 6.5 fournie par Hendricks et Howell (avec C_{H} = 4,8) pour l'ensemble du jeu de mousses :



FIGURE 6.22 – (a) Comparaison des β obtenus via la méthode RDFI (traits pleins) et via le modèle empirique proposé par Hendricks et Howell [1996] en fonction de d_{nom} (C_H = 4,8). Les étoiles numérotées 1, 2 et 3 correspondent aux β expérimentalement identifiés pour l'OB-SiC, respectivement pour 10 20 et 65 PPI. Les hexagones a et b correspondent aux β du PS-ZrO₂ à 10 et 20 PPI [Hendricks et Howell, 1996]. (b) Comparaison avec le modèle dont les paramètres ont été ajustés en fonction de d_{nom} .

On observe une meilleure correspondance du modèle avec les résultats obtenus via RDFI ainsi qu'avec les β obtenus expérimentalement, lorsque la valeur de d_{nom} est faible. Ceci rejoint les conclusions des travaux de Hendricks et Howell. On observe une divergence des β obtenus à l'aide du modèle qui s'accentue pour les fortes valeurs de d_{nom} . En effet, sur chaque droite relative à une valeur de PPI, plus d_{nom} augmente (par variation de la porosité à PPI fixé), plus le modèle est concordant avec les β obtenus via la méthode RDFI. Cette conclusion rejoint également celle des travaux de Hendricks et Howell. De plus, si l'on trace les β identifiés pour les échantillons réels, on peut remarquer que ceux présentant les d_{nom} les plus importants (10 et 20 PPI pour p = 0,8 et 0,85) sont situés dans une zone où le modèle et la méthode RDFI concordent de manière satisfaisante. Cette concordance avait auparavant été mise en évidence pour cette gamme limitée de textures au cours de ce travail de thèse et a fait l'objet d'une publication acceptée [Guévelou *et al.*, 2015] (sous presse).

Ajustement du modèle

Le modèle précédent n'étant pas satisfaisant pour l'ensemble du jeu de mousses généré dans ce travail, notamment pour les basses porosités et les faibles d_{nom} , celui-ci n'est donc pas en l'état utilisable pour une grande variété de textures. Pour répondre à cette exigence, nous avons adjoint à l'équation 6.5 de nouveaux coefficients qui multiplient les principaux paramètres :

$$\beta = \frac{C'_{\rm H}(1 - C''_{\rm H}p)}{d_{nom}}$$
(6.6)

En ajustant les coefficients de la manière suivante, $C'_H = 2,45$ et $C''_H = 0,7$, il est possible de superposer de manière très satisfaisante les prédictions du modèle modifié avec les valeurs de β obtenues pour l'ensemble du jeu de mousses (voir figure 6.22 (b)). L'équation 6.6 peut donc être utilisée pour des mousses dont les porosités varient de 0,35 à 0,95, et dont le diamètre nominal de cellule varie de 0,4 à 2,6 mm. Ce résultat tend à confirmer la validité du modèle initial proposé par Hsu et Howell. L'origine des fortes disparités entre les coefficients déterminés par Hendricks et Howell et ceux ajustés dans ce travail peuvent être liés à plusieurs facteurs : premièrement, l'étude de Hendricks et Howell ne bénéficie que de 6 textures différentes, toutes situées dans le cas favorable de correspondance. Ensuite, de nombreuses incertitudes pouvant avoir une incidence non négligeable sur les valeurs des β identifiés expérimentalement peuvent être relevées. Parmi celle-ci, nous pouvons citer l'utilisation de mesures de T_{NH} et de R_{NH} présentant des incertitudes de l'ordre de 10 %. De plus, la connaissance de la texture des matériaux réels ayant été caractérisés dans cette étude (nécessaire à l'utilisation du modèle) n'est pas précise : les porosités sont données de manière approximative, et les d_{nom} utilisés, dont le calcul n'est pas précisé, ne correspondent à ceux que l'on peut retrouver dans ce travail de thèse à l'aide du PPI et de la porosité (voir figure 6.1).

6.3.4.c Coefficient d'absorption, de diffusion, albédo de diffusion.

Comme nous l'avons vu précédemment, le coefficient d'extinction β calculé via la méthode RDFI est indépendant des propriétés optiques effectives *n* et *k* de la phase solide, et constitue de ce fait une propriété radiative exclusivement liée à la texture de la mousse. Cette conclusion est par ailleurs admise par de nombreux auteurs [Coquard et Baillis, 2004; Loretz *et al.*, 2008; Tancrez et Taine, 2004]. Le calcul du coefficient d'absorption α , décrit en section 4.4.2, permet la déduction directe du coefficient de diffusion α ($\beta = \alpha$ + σ) et de l'albédo associé ω_d ($\omega_d = \sigma / \beta$). Ce calcul fait à l'inverse appel aux *n* et *k* caractérisant la phase solide, via le calcul de la réflectivité ρ lors du premier impact d'un rayon sur la phase solide. Les valeurs de α , σ et ω_d vont par conséquent être dépendantes à la fois de la texture de la mousse ainsi que des *n* et *k* conférés à la phase solide. La figure 6.23 montre l'évolution de β superposée à celle de α en fonction de la porosité, pour l'ensemble du jeu de mousses, dans le cas de l' α -SiC à ω = 2500 cm⁻¹ et à 300 K.



FIGURE 6.23 – (a) Évolution de β (carrés, traits pleins) et α (ronds, pointillés) pour l' α -SiC à ω = 2500 cm⁻¹ et à 300 K, pour l'ensemble du jeu de mousses.

Comme nous l'avons déjà observé, l' α -SiC à $\omega = 2500 \text{ cm}^{-1}$ et à 300 K est un matériau très absorbant. Ce caractère est très bien illustré par la figure 6.23 : quelle que soit la texture de la mousse, l'évolution de α en fonction de la porosité présente la même allure et semble directement proportionnelle à celle de β . Notons que ce type de représentation permet de visualiser également de manière directe le coefficient de diffusion σ ($\sigma = \beta - \alpha$). Cette proportionnalité s'observe pour l'ensemble des 8 couples *n* et *k* synthétiques (voir le tableau 6.4) qui permettent, rappelons-le, d'obtenir une grande variété sur les valeurs de réflectivité locale moyenne ρ_m . La figure 6.24 (b) montre, seulement pour le jeu de mousses à 38 PPI par souci de clarté, les évolutions de α en fonction de *p* pour l' α -SiC à $\omega = 2500 \text{ cm}^{-1}$ et à 300 K et pour l'ensemble des 8 couples synthétiques.

Cette figure permet d'observer directement les différents albédos de diffusion ω_d proposés par les couples *n* et *k* de l' α -SiC et synthétiques. En effet, plus α est faible (couple 9 par exemple), plus la part de diffusion est importante dans le coefficient d'extinction.

Constance de la valeur de l'albédo de diffusion et équivalence avec la réflectivité moyenne $\rho_{\it m}$

Dès lors, des observations générales peuvent être faites : les albédos de diffusion ω_d calculés pour un couple *n* et *k* donné sont identiques sur l'ensemble du jeu de mousses. En d'autres termes, à l'instar de la réflectivité locale moyenne ρ_m , l'albédo de diffusion est totalement indépendant de la texture de la mousse. Cette indépendance peut être illustrée sur la figure 6.25 (a), qui représente l'ensemble des albédos de diffusion calculés pour l' α -SiC à $\omega = 2500$ cm⁻¹ ainsi que pour les 8 couples synthétiques. Nous représentons ces valeurs en fonction du diamètre nominal de cellule car d_{nom} croît régulièrement



FIGURE 6.24 – Évolution de α (ronds noirs, pointillés), et de β (carrés noirs, trait plein) pour l' α -SiC à ω = 2500 cm⁻¹ et à 300 K. Évolution de α pour les 8 couples *n* et *k* synthétiques (ronds de couleur, pointillés). L'ensemble de ces résultats a été obtenu à partir du jeu de mousses à 38 PPI.

sur l'ensemble du jeu de mousses (voir figure 6.11 et équation 6.1), ce qui permet de bien visualiser ces données.



FIGURE 6.25 – (a) Albédos de diffusion calculés via RDFI pour l'ensemble du jeu de mousses et pour les *n* et *k* de l' α -SiC à ω = 2500 cm⁻¹ et à 300 K, ainsi que pour les 8 couples synthétiques, en fonction de *d*_{nom}. (b) Albédos de diffusion calculés via RDFI pour l'ensemble du jeu de mousses en fonction des réflectivités locales moyennes ρ_m correspondantes.

On peut tout de même remarquer de légères perturbations, plus importantes pour les matériaux les plus absorbants. Ceci est vraisemblablement dû à des erreurs numériques lors du fitting entre G_a (voir section 4.4.2), plus difficile à réaliser pour de grandes absorptions. En comparant les albédos de diffusion calculés via la méthode RDFI aux valeurs de réflectivités locales moyennes ρ_m obtenues pour les simulations MCRT pour l'ensemble du jeu de mousses, on observe également que, pour une mousse donnée, et par extension, pour un couple *n* et *k* donné, ω_d est systématiquement égal à ρ_m (voir figure 6.25 (b)). Ceci peut s'expliquer en comparant les méthodes de calcul utilisées pour calculer ρ_m (voir section 4.3.1) et l'albédo de diffusion ω_d (voir section 4.4.2). Nous verrons que cette corrélation va se révéler d'un grand intérêt par rapport aux conclusions de l'étude de l'influence de la texture sur l'absorptance normale des mousses.

6.3.4.d Fonction de phase de diffusion

Les fonctions de phase de diffusion Φ , définies en section (voir équation 3.36), sont également calculées via la méthode RDFI (voir section 4.4.3) en supposant un modèle de réflexion spéculaire identique à celui utilisé pour le code MCRT. Celle-ci se révèle être indépendante de *n* et *k*. En effet, le modèle de réflexion étant spéculaire, la forme des distributions des angles de diffusion ($F_s(\theta_s)$) contribuant à construire Φ est supposée ne dépendre seulement que de la géométrie du matériau, ce qui est bien observé dans notre cas. Les résultats présentés par la suite sont donc valables pour l'ensemble des couples *n* et *k* étudiés. La figure 6.26 présente les fonctions de phase de diffusion pour toutes les valeurs de porosité (de \approx 0,35 à 0,95) des jeux de mousses à 10, 17, 28 et 45 PPI.



FIGURE 6.26 – Fonctions de phase de diffusion obtenues par la méthode RDFI pour toutes les déclinaisons de porosité (de \approx 0,35 à 0,95) pour les jeux de mousses (a) 10 PPI, (b) 17 PPI, (c) 28 PPI et (d) 45 PPI.

On remarque que les fonctions de phase de diffusion témoignent d'un comportement purement rétro-diffusant, ce qui est conforme aux matériaux opaques étudiés dans ces travaux. De plus, pour l'ensemble de la gamme de porosité, et ce, quel que soit le PPI, les fonctions de phase sont invariantes. La même invariance est observée lorsque l'on fixe la porosité (successivement à $p = \approx 0.94$, 0.78, 0.58 et 0.38) et que l'on compare les fonctions de phase obtenues pour l'ensemble de la gamme de PPI (voir figure 6.27).

De ces observations, il apparaît que la fonction de phase des mousses étudiées est purement rétrodiffusante et complètement indépendante des propriétés optiques effectives de la phase solide mais également de la texture de la mousse. Ce résultat semble pertinent si l'on tient compte des orientations aléatoires des surfaces présentées par des matériaux


FIGURE 6.27 – Fonctions de phase de diffusion obtenues par la méthode RDFI pour toutes les valeurs de PPI et pour les porosités fixées suivantes : (a) $p \approx 0.94$ (échantillons A, voir annexe C), (b) $p \approx 0.78$ (échantillons D), (c) $p \approx 0.58$ (échantillons H) et (d) $p \approx 0.38$ (échantillons L).

cellulaires de type mousse.

6.3.4.e Conclusions : vers une relation compacte liant β à *p* et d_{nom}

Les résultats fournis par la méthode RDFI (propriétés radiatives homogénéisées β , α , σ et Φ) pour l'ensemble du jeu de mousses ont permis de tirer de nombreux enseignements. Le premier d'entre eux concerne l'applicabilité de cette méthode pour le volume fictif des échantillons nous concernant (1 cm³). Les problématiques d'épaisseur optique pour les mousses à faibles PPI et haute porosités rencontrées lors du calcul de l'absorptance normale sont retrouvées de la même manière lorsque l'on cherche à respecter l'hypothèse d'un milieu Beerien, nécessaire à l'application de la méthode RDFI. Ainsi, les VER devant être considérés, ainsi que l'ensemble des spécifications en rapport à la texture des mousses précisées en section 6.2, sont valables pour l'application de la méthode RDFI. L'étude de l'influence de la texture sur le coefficient d'extinction a mis en lumière la compétition bien connue entre la porosité et le diamètre nominal de cellule. Plus d_{nom} et/ou p sont faibles, plus β augmente, les deux phénomènes s'additionnant. Un modèle, simple et largement utilisé dans la littérature, permettant de calculer directement β en fonction de d_{nom} et p, a pu être validé et ajusté, mais également étendu à la grande diversité de textures que propose cette étude. La suite de l'étude montre que les tendances obtenues pour les coefficients d'absorption et de diffusion sont directement proportionnelles à celles observées pour β. La répartition de l'extinction en absorption et diffusion

que représente l'albédo de diffusion dépend des couples n et k utilisés, mais aucunement de la texture des mousses. Les résultats montrent que l'albédo de diffusion est, pour l'ensemble des calculs, égal à la réflectivité locale moyenne obtenue par les calculs MCRT pour les mousses et couples n et k correspondants. Finalement, l'étude de l'ensemble des fonctions de phase calculées montre que celles-ci sont purement rétro-diffusantes et complètement indépendantes de la texture et des propriétés optiques effectives de la mousse.

6.3.5 Étude statistique liée au calcul MCRT

6.3.5.a Distribution des angles d'incidences

Objectif de l'étude

Comme nous l'avons vu précédemment, la connaissance de la réflectivité locale moyenne ρ_m apparaît cruciale. Dans l'équation 6.3, ρ_m constitue la dernière donnée nécessitant l'emploi de méthodes numériques contraignantes (MCRT sur surfaces reconstruites via tomographie ou génération de matériaux virtuels). Par conséquent, l'obtention de la réflectivité locale moyenne ρ_m via une méthode rapide (soit une mesure, soit une expression à partir de *n* et *k*) permettrait de pouvoir prédire l'absorptance normale d'une mousse de manière simple, en connaissant seulement sa porosité, *n* et *k*. De plus, ρ_m étant égal à l'albédo de diffusion, l'utilisation du modèle ajusté (voir équation 6.6) établi en section 6.3.4.b permettrait l'obtention directe des coefficients d'absorption et de diffusion. La valeur de ρ_m (voir section 4.3.1) résulte du calcul des réflectivités locales via la loi de Snell (voir section 3.2.2) se succédant le long du chemin optique d'un rayon. ρ_m dépend donc des propriétés optiques *n* et *k*, ainsi que de la distribution des angles d'incidence des rayons sur l'ensemble du calcul.

Allures des distributions de l'angle d'incidence en fonction du nombre d'impacts

Les distributions de l'angle d'incidence ont été calculées (voir section 4.3.1) sur la reconstruction de la mousse réelle de référence. Les distributions ont été construites via un calcul MCRT réalisé avec $N_r = 3 \times 10^5$. Comme le modèle de réflectivité choisi dans ce travail est spéculaire, ces distributions ne dépendent que de la géométrie de la mousse et de la façon dont les rayons sont lancés via le spot. Ainsi, les observations les concernant par la suite sont valables pour tous les couples *n* et *k*. La figure 6.28 montre les distributions de l'angle d'incidence pour les premiers, seconds, troisièmes, quatrièmes et cinquièmes impacts avec la phase solide.

On observe pour la distribution de l'angle d'incidence aux premiers impacts une forte proportion de rayons dont l'angle d'incidence θ_i sur la surface du matériau est nul (environ 30 % de rayons dont l'angle d'incidence θ_i est compris entre 0 et 5 °). Ces rayons correspondent à ceux impactant la fraction de solide présentée par la face éclairée. Les distributions d'incidences relatives aux impacts suivants ont une forme plus caractéristique de la fonction de phase. En effet, celles-ci sont construites avec les incidences de rayons déjà déviés une première fois qui impactent les éléments de surfaces aléatoirement orientés



FIGURE 6.28 – Distribution de l'angle d'incidence pour les 1^{ers} , $2^{\text{èmes}} 3^{\text{èmes}} 4^{\text{èmes}}$ et $5^{\text{èmes}}$ impacts pour la mousse réelle de référence, valable pour tous les couples *n* et *k*.

situés plus en profondeur. S'il existe une influence de la texture de la mousse sur la valeur de ρ_m , celle-ci doit donc nécessairement provenir de la distribution des angles d'incidence au premier impact. De plus, il est démontré que (voir section 6.3.5.b), pour des matériaux fortement absorbants, la majorité de l'énergie absorbée par la mousse l'est lors du premier impact du rayon sur la phase solide. Pour la suite de cette étude, nous nous concentrerons donc uniquement sur les distributions d'incidences aux premiers impacts.

Influence de la texture sur les distributions de l'angle d'incidence

Les distributions de l'angle d'incidence aux premiers impacts ont été calculées (méthode MCRT avec $N_r = 3 \times 10^5$) pour les mousses issues du jeu à 28 PPI, pour les porosités de 0,94, 0,84, 0,73, 0,62, 0,52 et 0,39 (voir figure 6.29 (a)).



FIGURE 6.29 – Distribution de l'angle d'incidence pour les premiers impacts : (a) à PPI fixe et porosité variable et (b) à porosité fixe et PPI variable.

On observe que les distributions de l'angle d'incidence aux premiers impacts sont influencées par la porosité de la mousse. La valeur du pic à $\theta_i = 0$ correspond en effet très précisément à la fraction de phase solide exposée par le matériau, qui est égale à 1 - p, plus ou moins les fluctuations de porosité 2D auxquelles est sujette la face irradiée. Les mêmes calculs ont ensuite été réalisé à porosité fixée ($p \approx 0,72$) pour différentes valeurs de PPI (10, 17, 28 et 45, voir figure 6.29 (b)). À porosité fixée, le PPI n'a aucune influence sur ces distributions. On peut remarquer également la présence de pics qui ne sont pas présents sur les distributions d'incidences obtenues sur la mousse de référence. Les images générées virtuellement, couplées avec la technique de reconstruction de surface du Marching-Cube, occasionnent donc des orientations préférentielles du maillage que l'on n'observe pas avec des images tomographiques.

Conclusions et conséquences sur la dépendance de ρ_m à la texture

La question qui se pose à présent est de savoir à quel degré les distributions de l'angle d'incidence peuvent avoir un impact sur la valeur de ρ_m . La comparaison de ces distributions avec la loi de Snell, tracée pour toutes les valeurs possibles de l'angle d'incidence et pour tous les couples *n* et *k* étudiés (α -SiC à 2500 cm⁻¹ et couples synthétiques), permet de répondre à cette question :





On remarque premièrement que la réflectivité est indépendante de l'angle d'incidence au sein du domaine angulaire dans lequel s'exprime l'influence de la texture sur les distributions de l'angle d'incidence. De plus, l'augmentation de la réflectivité pour les incidences rasantes (typiquement, au dessus de l'angle de Brewster) ne concerne qu'une proportion très limitée d'événements de réflexion, au regard des distributions d'incidence. Ceci explique notamment pourquoi ρ_m , et à fortiori l'albédo de diffusion sont totalement indépendants de la texture de la mousse. À partir de l'ensemble de ces considérations, il apparaît raisonnable, dans le cas des mousses générées dans ce travail, d'assimiler ρ_m à la valeur de la réflectivité obtenue pour une incidence normale ρ_N . La relation établie précédemment (équation 6.3) s'écrit dans ce cas :

$$A_{N,m}(p, n, k) = 0,8 \times \rho_N(n, k) \times p + A_{N,b}(n, k).$$
(6.7)

Or, dans le cas d'une surface opaque optiquement polie, $A_{N,b} = 1 - \rho_N$. Par conséquent, l'équation 6.7 se simplifie de la sorte :

$$A_{N,m}(p,n,k) = 1 - \rho_N(n,k)(1-0,8 \times p)$$
(6.8)

Afin de s'assurer de la validité de cette relation compacte, les droites qu'elle fournit ont été tracées pour les *n* et *k* des couples synthétiques pour lesquels le modèle peut être appliqué ($\rho_m < 0,65$, couples synthétiques 2 à 6). Ensuite ces droites ont été comparées aux valeurs d'absorptance normale A_N obtenues sur l'ensemble du jeu de mousses par calcul MCRT pour les couples *n* et *k* correspondants (en supposant les échantillons optiquement épais). La figure 6.31 représente cette comparaison.



FIGURE 6.31 – Comparaison entre les absorptances normales A_N données par le modèle (équation 6.8) et les simulations MCRT pour l'ensemble du jeu de mousses. La comparaison est faite en représentant le modèle ainsi que les points de calcul en fonction de la porosité.

La figure 6.31 montre que le modèle et les résultats des simulations se recoupent très bien pour les matériaux très absorbants (couples synthétiques 2 et 3 par exemple). Une utilisation rapide de la formule compacte 6.8 permet dans ce cas de trouver rapidement l'absorptance normale d'une mousse à brins opaques simplement à partir de la connaissance de sa porosité *p*, de *n* et de *k* (ou bien d'une mesure expérimentale de ρ_N réalisée sur un brin de la mousse). À mesure que le matériau constitutif de la mousse devient plus réfléchissant (couples synthétiques 4, 5 et 6), le modèle tend à surestimer la valeur de A_N. Il doit dès lors être utilisé avec plus de précaution.

6.3.5.b Étude des profils de l'énergie absorbée selon z

Objectif de l'étude

La manière dont le rayonnement pénètre la mousse en profondeur, représente un aspect important à prendre en compte lors du design d'un absorbeur solaire volumétrique. La figure 6.32 montre l'énergie absorbée (pour un calcul MCRT avec N_r = 300000, *n* et *k* de l' α -SiC à 2500 cm⁻¹) sur les facettes constituant la reconstruction 3D de la mousse de référence lors d'un calcul MCRT (les niveaux d'énergie déposée sur chaque facette sont représentés avec une échelle de couleurs arbitraire).



FIGURE 6.32 – Énergie absorbée par la phase solide lors d'un calcul MCRT avec N_r = 300000, *n* et k de l' α -SiC à 2500 cm⁻¹ (échelle de couleurs arbitraire).

Cette représentation nous enseigne qualitativement que la majorité de l'énergie absorbée par la mousse semble l'être dès les toutes premières rangées de cellules. Il apparaît donc crucial d'étudier plus finement la manière dont l'énergie est absorbée, ce qui est rendu possible par le calcul des profils de l'énergie absorbée selon l'axe *z*, $e_{abs}(z)$. Ces profils représentent la proportion d'énergie absorbée (par rapport à l'énergie totale absorbée par la mousse, qui correspond à l'absorptance normale) en fonction de la profondeur *z*. Une description complète du calcul de ces profils, ainsi qu'une définition claire des données observées est fournie en section 4.3.2. Chacun des résultats ci-dessous a été obtenu par un calcul MCRT avec un modèle de réflexion spéculaire, un spot collimaté circulaire inscrit à la face de tir, et avec N_r = 4×10⁵.

Allures des profils $e_{abs}(z)$ en fonction du nombre d'impacts

De la même manière que pour les distributions d'angle d'incidence, les profils calculés peuvent être représentés en terme de nombre d'impacts. La figure 6.33 (a) montre ainsi les profils $e_{abs}(z)$ obtenus sur la reconstruction 3D de la mousse de référence pour les premiers, seconds, troisièmes et quatrièmes impacts, ainsi que l'énergie absorbée via l'ensemble des impacts, pour un matériau absorbant tel que l' α -SiC à $\omega = 2500$ cm⁻¹.

La figure 6.33 (a) montre aussi que, pour un matériau absorbant, la quasi-totalité de l'énergie absorbée par la mousse l'est dès le premier impact, ce qui est consistant avec la valeur élevée de ρ_m . Les contributions des impacts suivants sont négligeables, car l'énergie portée par un rayon ayant subi N_{*imp*} impacts évolue selon $\rho_m^{N_{imp}}$. Dans le cas d'un matériau très réflectif (figure 6.33 (b), avec le couple synthétique 9 donnant un $\rho_m = 0,90$), on remarque que, à partir d'une profondeur de 1 millimètre, les contributions de chaque groupe d'impacts sont équivalentes. Ceci est également conforme avec l'évolution de $\rho_m^{N_{imp}}$, compte tenu de la valeur élevée de ρ_m .

Dans les deux cas (absorbant et réflectif) la majorité de l'énergie est absorbée dans les premiers millimètres pour la géométrie de la mousse de référence (caractérisée en chapitre 2). Toutefois, même si l'absorptance normale de la mousse est bien plus faible dans le cas du matériau réflectif (voir figure 6.17), le rayonnement pénètre plus profondément au sein de la mousse (en proportion). Ce phénomène est traduit par une décroissance



FIGURE 6.33 – Profils de l'énergie absorbée en fonction de la profondeur $e_{abs}(z)$ obtenus sur la reconstruction 3D de la mousse de référence pour les 1^{ers}, 2^{èmes}, 3^{èmes}, 4^{èmes} et 5^{èmes} impacts, ainsi que pour l'ensemble des impacts pour : (a) les *n* et *k* de l' α -SiC à ω = 2500 cm⁻¹ et (b) les *n* et *k* du couple synthétique 9.

plus douce. Si l'on compare les contributions des différents impacts sur le profil $e_{abs}(z)$, on peut remarquer dans les deux cas de fortes oscillations pour les premiers impacts, liés aux fluctuations de porosité 2D. En effet, lorsque le plan de collecte pour la construction de $e_{abs}(z)$ coïncide avec une rangée de cellules, la proportion de facettes susceptibles d'absorber le rayonnement interceptées par le plan est plus faible, occasionnant une baisse de $e_{abs}(z)$ (et inversement lorsque le plan de collecte coïncide avec une rangée de brins).

Influence des propriétés texturales sur les profils $e_{abs}(z)$

Nous allons à présent étudier, dans les deux cas (matériaux absorbant et réflectif), l'influence de la texture des mousses sur les profils $e_{abs,tot}(z)$ (énergie absorbée totale pour tous les impacts en fonction de *z*). Les profils $e_{abs,tot}(z)$ ont donc été calculés dans un premier temps pour 6 valeurs de porosité (0,39<*p*<0,94) à PPI fixé (28 PPI, voir figure 6.34 (a)), puis pour 4 valeurs de PPI (10, 17, 28 et 45) à porosité fixée ($p \approx 0,72$, voir figure 6.34 (b)), pour les *n* et *k* de l' α -SiC à $\omega = 2500 \text{ cm}^{-1}$.



FIGURE 6.34 – Profils de l'énergie absorbée totale pour tous les impacts en fonction de z ($e_{abs,tot}(z)$) (a) pour des porosités variables et un PPI fixé, et (b) pour des PPI variables et une porosité fixée (n et k de l' α -SiC à $\omega = 2500$ cm⁻¹).

Pour un matériau fortement absorbant et à PPI fixé, on observe que le rayonnement pénètre plus profondément la mousse lorsque la porosité est élevée (figure 6.34 (a)), ce qui corrobore les résultats obtenus pour l'absorptance normale. En revanche, bien que, à porosité fixée, la valeur de PPI n'ait pas d'influence sur l'absorptance normale, il ressort de ces résultats que de grandes tailles de cellules (faible PPI) favorisent la pénétration du rayonnement en profondeur (figure 6.34 (b)). Cette observation rejoint les résultats obtenus pour le coefficient d'extinction, qui est plus faible lorsque les cellules sont de grandes tailles. Les mêmes tendances sont observées lorsque le matériau est très réflectif (voir figure 6.35 (a) et (b)) :



FIGURE 6.35 – Profils de l'énergie absorbée totale pour tous les impacts en fonction de z ($e_{abs,tot}(z)$) (a) pour des porosités variables et un PPI fixé, et (b) pour des PPI variables et une porosité fixée (n et k du couple synthétique 9 ($\rho_m = 0.90$)).

Dans les deux cas (absorbant et réflectif), on observe l'effet des fluctuations de porosité 2D sur les profils $e_{abs}(z)$ de manière plus prononcée que sur la mousse réelle de référence. Ceci est dû au fait que, pour les mousses virtuellement générées, les fluctuations de la porosité 2D sont bien plus régulières que celles observées sur la mousse réelle de référence (voir section 5.3.2.a). De plus, lorsque le matériau est très réflectif, les oscillations observées sur les profils $e_{abs}(z)$ sont moins bruitées et plus régulières que celles du cas absorbant. Ce bruit est dû au fait que, dans le cas fortement absorbant, $e_{abs}(z)$ est issu principalement des contributions des premiers impacts, et est donc statistiquement moins représentatif de la texture de la mousse.

Profils de l'énergie absorbée cumulées $e_{abs,c}(z)$

Les profils $e_{abs}(z)$ étudiés ci-dessus permettent une compréhension du transfert radiatif au sein de la mousse. Toutefois, afin de donner des spécifications plus quantitatives, les profils de l'énergie absorbée cumulée $e_{abs,c}(z)$, précisément définis en section 4.3.2 sont plus adaptés. Rappelons que ceux-ci ne sont pas normalisés par l'énergie absorbée totale (ou absorptance normale), mais par l'ensemble de l'énergie fournie à la mousse par le spot. La figure 6.36 présente les profils $e_{abs,c}(z)$ obtenus pour la mousse de référence pour les *n* et *k* de l' α -SiC à 2500 cm⁻¹, ainsi que ceux des couples synthétiques 2 à 9.

Les valeurs d'énergie absorbées indiquées pour les *z* élevés correspondent à l'absorptance normale de la mousse de référence. Elles peuvent être comparées avec celles obtenues sur une mousse numériquement générée de texture équivalente pour les mêmes



FIGURE 6.36 – Profils de l'énergie absorbée cumulée en fonction de la profondeur z ($e_{abs,c}(z)$) pour la reconstruction de la mousse de référence (pour les n et k de l' α -SiC à 2500 cm⁻¹ et ceux des couples synthétiques). Les lignes verticales en pointillés désignent la profondeur à laquelle 99 % de l'énergie est absorbée.

couples *n* et *k* (voir figure 6.17). Les lignes verticales en pointillés désignent la profondeur à laquelle 99 % de l'énergie est absorbée. On remarque que, plus le matériau est réflectif, plus l'énergie pénètre profondément (proportionnellement à l'absorptance normale associée). Ainsi, dans le cas du SiC, 99 % de l'énergie est absorbée en z = 3,5 mm, soit environ trois fois le diamètre nominal de cellule d_{nom} .

Les profils $e_{abs,c}(z)$ ont également été calculés pour les textures et les cas absorbants et réfléchissants étudiés précédemment (figures 6.34 et 6.35).



FIGURE 6.37 – Profils de l'énergie absorbée cumulée en fonction de la profondeur z ($e_{abs,c}(z)$) (a) pour des porosités variables et un PPI fixé, et (b) pour des PPI variables et une porosité fixée (n et k de l' α -SiC à ω = 2500 cm⁻¹).

Pour les matériaux très absorbants (voir figure 6.37) on remarque que, même si les gains sur l'absorptance normale totale sont faibles, les hautes porosités permettent une meilleure pénétration du rayonnement au cœur de la mousse. Pour des absorptances normales quasi comparables (voir équation 6.4), la profondeur de pénétration peut varier de 1,5 mm jusqu'à 8 mm pour les porosités les plus extrêmes. Une fois la porosité fixée, de grandes tailles de cellules permettent quant à elles d'optimiser de surcroît cette pénétration.



FIGURE 6.38 – Profils de l'énergie absorbée cumulée en fonction de la profondeur z ($e_{abs,c}(z)$) (a) pour des porosités variables et un PPI fixé, et (b) pour des PPI variables et une porosité fixée (n et k du couple synthétique 9 ($\rho_m = 0.90$)).

Encore une fois, les mêmes tendances sont retrouvées pour les matériaux réfléchissants (voir figure 6.38). Celles-ci s'expriment de manière plus prononcée si l'on considère les épaisseurs nécessaires au dépôt de 99 % de l'énergie.

Conclusions

La prise en compte des observations développées dans cette section est importante lors du choix d'une mousse pour développer un absorbeur solaire volumétrique. Ainsi, pour garantir une bonne pénétration du rayonnement et ainsi favoriser l'effet volumétrique, les hautes porosités seront privilégiées. Une fois la porosité choisie, de grands diamètres de cellule permettront également d'optimiser cet effet. De plus, ces informations sont utiles pour déterminer la profondeur jusqu'à laquelle doit être réalisé d'éventuels revêtements sélectifs. En effet, ces derniers sont très difficiles à réaliser de manière homogène (revêtement d'épaisseur constante et de texture identique quelle que soit la forme du brin) et continue sur des géométries complexes de type mousse, surtout au cœur du matériau.

6.4 Paramètres texturaux retenus pour une performance thermique de l'absorbeur optimale

L'ensemble des simulations menées dans ce chapitre a permis l'établissement de robustes corrélations liant les propriétés radiatives aux propriétés texturales, ainsi qu'un certain nombre de spécifications. Cette dernière section va tout d'abord faire une synthèse de ces résultats, puis ces derniers seront utilisés afin de définir les propriétés texturales idéales pour l'optimisation des performances thermiques d'un absorbeur solaire volumétrique. Ensuite nous donnerons quelques éléments de discussion à propos de l'influence de la texture des mousses sur l'importance de l'effet de la sélectivité spectrale.

6.4.1 Lois comportementales

Plusieurs corrélations ont pu être établies à partir des résultats numériques obtenus sur une grande variété de textures (0,35).

- Influence de la texture sur l'absorptance normale ($A_{N,m} = f(p, n, k)$):

La première d'entre elles permet d'exprimer l'absorptance normale A_N , pour des matériaux présentant une réflectivité moyenne ρ_m modérée (<0,65) et lorsque l'épaisseur optique est garantie, via une fonction linéaire de la porosité *p* (équation 6.8). L'ordonnée à l'origine (*p*=0) ainsi que le coefficient directeur dépendent directement de la réflectivité normale ρ_N . Ainsi, l'absorptance normale d'une mousse $A_{N,m}$ peut être prédite simplement à partir de *p* et des propriétés optiques effectives de la phase solide *n* et *k*.

Cette relation montre que l'absorptance normale augmente avec la porosité. Pour des matériaux absorbants tels que l' α -SiC étudié dans ces travaux (ρ_m =0,137), le gain obtenu est toutefois limité : pour une augmentation de porosité de 0,7 à 0,95, l'absorptance normale augmente de 0,93 à 0,97, soit un gain de seulement 0,04 pour une augmentation de porosité pourtant substantielle. Pour des matériaux plus réflectifs (à la limite de validité du modèle ρ_m =0,637, couple synthétique 6), le gain sur l'absorptance normale entraîné par une augmentation de la porosité est bien plus important : A_N augmente de 0,64 à 0,8 soit un gain de 0,16 pour la même augmentation de porosité. Néanmoins le niveau global des absorptances normales est plus faible, du fait des hautes valeurs des réflectances normales-hémisphériques.

- Influence de la texture sur le coefficient d'extinction ($\beta = f(p, d_{nom})$):

Le second résultat majeur est constitué par la validation de la corrélation proposée par Hendricks et Howell [1996] et son ajustement à la large gamme de textures procurée par le jeu de mousses numériquement généré (équation 6.6). Le coefficient d'extinction β est inversement proportionnel à la fois à la porosité et au diamètre nominal de cellule d_{nom} . Lorsque le PPI est élevé (45), la porosité influence très fortement β : celui-ci passe de 27 à 12 cm⁻¹ pour une augmentation de 0,7 à 0,95 de la porosité (les valeurs de d_{nom} correspondantes évoluant quant à elles de 400 à 500 µm). En revanche, lorsque le PPI est bas (10), l'influence de la porosité est moins forte : de 8 à 5 cm⁻¹ pour une augmentation de 0,7 à 0,95 de la porosité évoluant de 2100 à 2500 µm).

Influence de la texture sur la pénétration du rayonnement au sein du volume de l'absorbeur :

Une porosité élevée favorise la pénétration du rayonnement dans le volume de l'absorbeur. Une fois la porosité fixée, le choix d'une grande taille de cellule permet d'optimiser l'effet volumétrique.

6.4.2 Définition d'une texture optimale

Dans l'ouvrage de Sheffler et Colombo [2005], l'efficacité η_{th} d'un absorbeur volumétrique est définie comme la puissance du fluide en sortie de l'absorbeur sur la puissance du rayonnement solaire concentré pénétrant la surface exposée. Cela signifie que, plus le rayonnement pénètre profondément au sein du volume de l'absorbeur (ce qui implique une valeur de β faible), et plus le transfert de chaleur par convection vers le fluide est élevé (ce qui nécessite d'avoir hS_s élevé, avec h le coefficient de transfert de chaleur par convection et S_s la surface spécifique du matériau), meilleur sera l'effet volumétrique au sein de l'absorbeur. En effet, la température en face avant de l'absorbeur va baisser, ce qui limitera de ce fait les pertes radiatives par ré-émission infrarouge. Ces spécifications peuvent être illustrées par la relation suivante :

$$\frac{\beta}{hS_s} \mapsto 0 \quad \Leftrightarrow \quad \eta_{th} \mapsto 1. \tag{6.9}$$

Ces conclusions, ainsi que celles exposées au chapitre 1, nous indiquent que nous devons nous tourner vers un matériau qui répond aux critères suivants :

- coefficient d'extinction β faible,
- surface spécifique S_s élevée,
- une absorptance normale $A_{\rm N}$ élevée,
- un profil de l'énergie absorbée favorable à l'instauration de l'effet volumétrique.

Les résultats obtenus tout au long de ce chapitre doivent donc être utilisés pour proposer la texture répondant au mieux à ces critères.

Porosité

Il apparaît de manière évidente que la porosité p constitue la propriété de la mousse dont le contrôle sera le moyen le plus efficace pour parvenir à nos fins. La porosité représente en effet le paramètre textural ayant le plus d'influence sur les propriétés radiatives : une porosité élevée permet d'augmenter l'absorptance normale A_N , de diminuer le coefficient d'extinction β , et de favoriser une meilleure pénétration du rayonnement au sein du volume de l'absorbeur. Les hautes porosités permettent également la diminution des pertes de charge au sein de l'absorbeur [Sheffler et Colombo, 2005]. Cependant, la tenue mécanique des mousses hautement poreuses est moins bonne.

Diamètre nominal de cellule

Comme la valeur du diamètre nominal de cellule d_{nom} n'a pas d'influence sur A_N , il semble préférable de choisir une taille de cellule permettant de répondre également aux critères précédents. Nous privilégierons donc les grandes tailles de cellules, qui permettent l'obtention de faibles coefficients d'extinction, et qui favorisent eux aussi une bonne pénétration en profondeur du rayonnement. Les grandes tailles de cellules permettent de surcroît une meilleure tenue mécanique de l'absorbeur [Sheffler et Colombo,

2005].

Surface spécifique

Afin de maximiser les échanges de chaleur par convection, la surface spécifique S_s doit être maximisée (voir relation 6.9). Les résultats de l'analyse de la texture de l'ensemble du jeu de mousses (voir section 6.3) peuvent être utilisés dans ce but. La figure 6.12, qui représente l'évolution en fonction de la porosité de S_s pour l'ensemble du jeu de mousses nous indique que les surfaces spécifiques les plus élevées sont obtenues pour les PPI les plus élevés. Pour des valeurs de porosités typiques des mousses utilisées en tant qu'absorbeurs solaires volumétriques, le gain sur S_s obtenu en augmentant le PPI est très important (à $p \approx 0.7$ et 10 PPI, S_s = 1600 m².m⁻³, tandis qu'à $p \approx 0.7$ et 45 PPI, S_s = 6200 m².m⁻³). De plus, la surface spécifique diminue drastiquement à très haute porosité, et ce, de manière plus prononcée encore pour les PPI élevés (à PPI = 45 et $p \approx 0.7$, S_s = 6200 m².m⁻³, tandis qu'à PPI = 45 et $p \approx 0.95$, S_s = 3000 m².m⁻³).

Les surfaces spécifiques élevées impliquent donc des petits diamètres de cellules et des porosités limitées. Sur le plan radiatif, ces textures ne sont pas optimales. Le choix d'une texture idéale doit donc être un bon compromis entre ces deux comportements antagonistes. On peut par exemple imaginer, une fois le PPI de la mousse fixé, de choisir la porosité de manière à se situer au niveau de l'optimum présenté par l'évolution de S_s en fonction de *p* (voir figure 6.12).

Exemple des absorbeurs à gradients de texture

Les absorbeurs constitués par un empilement de plusieurs mousses (ou absorbeurs à gradient de texture [Sheffler et Colombo, 2005]) permettent l'association des avantages proposés par deux textures différentes. Dans cette configuration, une mousse à haut PPI, dont la surface d'échange est élevée, est utilisée pour assurer l'absorption et la conversion du rayonnement en chaleur en face avant de l'absorbeur. Celle-ci est alors jointe à un substrat constitué par une mousse de PPI grandement inférieur dont l'objectif est l'amélioration de la tenue mécanique de l'absorbeur.

6.4.3 Influence de la texture sur la sélectivité spectrale

L'usage de matériaux sélectifs permet d'atteindre de hauts rendements à haute température grâce à la diminution des pertes par ré-émission infrarouge. Ils font donc aujourd'hui l'objet de nombreuses recherches [Sani *et al.*, 2012; Zhang, 2000]. Dans les travaux de thèse de Larrouturou [2015], qui visent à améliorer les propriétés radiatives de récepteurs solaires surfaciques soumis à des flux solaires concentrés, la sélectivité intrinsèque de matériaux sélectifs (ZrB₂, TaC et ZrC) est quantifiée par le rapport entre leur absorptivité solaire a_{sol} et leur émissivité dans le domaine de l'infrarouge e_{IR} . Ce rapport, calculé à partir des valeurs de a_{sol} et e_{IR} intégrées sur les domaines de longueurs d'ondes respectifs, indique, s'il est élevé, la faculté du matériau à bien absorber dans le spectre solaire tout en ré-émettant peu dans le domaine infrarouge. Dans la mesure ou le dépôt de tels matériaux sélectifs sur les mousses d' α -SiC est aujourd'hui à l'étude (ANR SEED OPTISOL, thèse de Mollicone [2015]) afin de minimiser les pertes par ré-émission, la connaissance de l'influence d'une texture de type mousse sur cet indicateur est intéressante.

Pour répondre à cette interrogation, nous avons repris puis reporté dans le tableau 6.7 les données fournies dans la thèse de Larrouturou [2015] pour a_{sol} et e_{IR} pour les trois matériaux sélectifs étudiés (ZrB₂, TaC et ZrC) ainsi que les rapports a_{sol} / e_{IR} correspondants. Ensuite, en considérant que la relation permettant de passer de l'absorptance normale $A_{N,b}$ d'un matériau bulk à l'absorptance normale $A_{N,m}$ d'une mousse (équation 6.8) est applicable aux valeurs de a_{sol} et e_{IR} , nous avons recalculé les rapports a_{sol} / e_{IR} dans le cas de mousses présentant des porosités p = 0.7, 0.8 et 0.9.

				1	mouss	e	1	nouss	e	1	nouss	е
		Bulk			p = 0,7	,		p = 0,8	}		p = 0,9	1
Matériau	a _{sol}	e_{IR}	$\frac{a_{sol}}{e_{\mathrm{IR}}}$	a _{sol}	e_{IR}	$\frac{a_{sol}}{e_{\mathrm{IR}}}$	a _{sol}	e_{IR}	$rac{a_{sol}}{e_{\mathrm{IR}}}$	a_{sol}	e_{IR}	$\frac{a_{sol}}{e_{\mathrm{IR}}}$
ZrB ₂	0,68	0,42	1,61	0,85	0,74	1,15	0,88	0,79	1,11	0,91	0,83	1,08
TaC	0,46	0,17	2,70	0,76	0,63	1,20	0,80	0,70	1,14	0,84	0,76	1,10
ZrC	0,71	0,45	1,57	0,87	0,75	1,15	0,89	0,80	1,11	0,91	0,84	1,08

TABLEAU 6.7 - Estimation des sélectivités spectrales dans le cas des mousses :

Un matériau doit sa bonne sélectivité à la faible valeur de son émissivité dans le domaine infrarouge. Par exemple, le TaC présente une sélectivité élevée (a_{sol} / e_{IR} = 2,70) du fait de sa faible émissivité dans le domaine infrarouge (e_{IR} = 0,17). Lorsque l'on passe de la géométrie simple d'un bulk à celle, plus complexe, d'une mousse, les valeurs de a_{sol} et e_{IR} augmentent. En outre, le gain procuré est d'autant plus important que les valeurs de valeurs de a_{sol} ou e_{IR} sont basses. Ce comportement fait qu'une géométrie de type mousse tend à atténuer fortement le caractère sélectif qu'un matériau présente sous sa forme bulk. Cette tendance est par ailleurs d'autant plus forte lorsque la porosité de la mousse est élevée. Si nous revenons au cas du TaC, nous pouvons voir que le rapport a_{sol} / e_{IR} passe 2,70 à 1,20 pour une mousse de porosité 0,7, et jusqu'à 1,10 pour une porosité de 0,9. Le gain lié à la sélectivité spectrale qui était valable dans le cas du bulk (utilisation du matériau au sein d'un absorbeur surfacique par exemple), ne l'est plus dans le cas d'une mousse. Privé de sa sélectivité, la faible absorptivité solaire du TaC en fait dès lors un matériau bien moins intéressant pour envisager son utilisation en tant que revêtement sélectif dans une mousse.

Si nous comparons les sélectivités obtenues pour les matériaux exemples ci-dessus au cas du SiC, qui est quant à lui non sélectif ($a_{sol} / e_{IR} = 1,0$), nous pouvons aller jusqu'à nous poser la question de l'utilité d'un revêtement sélectif appliqué aux mousses (1,1 \approx 1,0). Ces conclusions rejoignent d'ailleurs en partie celles des travaux de thèse de Mollicone [2015], qui visent à développer des revêtements sélectifs en vue d'améliorer les rendements de conversion d'absorbeurs solaires volumétriques. Dans ces travaux, il est démontré que les sélectivités mesurées sur des mousses revêtues (revêtement en YBa₂Cu₃O_{7- δ}) ne sont pas aussi profitables que celles mesurées sur les matériaux bulk.

6.5 Conclusions

Dans un premier temps, nous avons pu démontrer que les méthodes d'identification directe du coefficient d'extinction à partir de mesures de transmittance, bien que commodes, ne peuvent être appliquées dans le cadre de ce travail. Les mousses à brins opaques, même dans le cas de matériaux fortement réflectifs, ne permettent pas l'obtention de mesures ou de simulations de transmittance exploitables. L'emploi de méthodes plus sophistiquées, telles que la méthode RDFI est de ce fait justifié. Nous nous sommes ensuite attachés à étudier l'influence de la texture des mousses sur les volumes élémentaires représentatifs (VER) devant être considérés pour une détermination fiable de la porosité et de l'absorptance normale. Il ressort de cette étude que : (i) le VER établi pour la porosité, couramment utilisé dans la littérature en tant que VER radiatif, n'est pas influencé par la texture de la mousse de la même manière que le VER déterminé pour l'absorptance normale; (ii) des précautions doivent être prises, notamment pour les mousses très poreuses ou présentant des grandes tailles de cellules, pour assurer l'hypothèse d'épaisseur optique requise pour l'établissement d'un VER pour l'absorptance normale; (iii) le VER nécessaire à l'application de la méthode RDFI, correspond à celui déterminé pour l'absorptance normale.

Une campagne de simulations d'envergure a ensuite été menée : un jeu de 96 échantillons de mousses aux propriétés texturales variées ($0,35 , <math>0,4 < d_{nom} < 2,6$ mm) a été généré numériquement. Ensuite, à l'aide des méthodes numériques développées lors de ce travail de thèse (méthode MCRT et méthode RDFI), nous avons calculé pour chaque échantillon :

- les paramètres texturaux principaux (p, S_s et d_{nom}),
- les propriétés radiatives mesurables (A_N, R_{NH} et T_{NH}),
- les propriétés radiatives homogénéisées (β , α , σ , ϕ),
- des grandeurs/indicateurs statistiques liés au transport du rayonnement (ρ_m , distribution des angles d'incidence, profils d'énergie absorbée).

Ces calculs ont été réalisés pour les propriétés optiques *n* et *k* représentatives du caractère fortement absorbant du SiC, mais également pour des couples *n* et *k* synthétiques permettant de simuler des matériaux opaques plus ou moins réfléchissants. L'ensemble de ces simulations nous a permis de disposer d'une base de données complète, à partir de laquelle nous avons extrait plusieurs corrélations robustes :

- Lorsque nous nous situons dans le cas d'échantillons optiquement épais, la détermination de l'absorptance normale A_N d'une mousse ne nécessite que la connaissance de sa porosité p et de ses propriétés optiques n et k (ou celle de la réflectivité normale ρ_N). Elle est dans ce cas donnée par la relation $A_{N,m} = f(p,\rho_N) =$ $1 - \rho_N(n,k)(1-0,8 \times p)$ (équation 6.8), valide pour des matériaux peu réfléchissants ($\rho_m < 0,65$). Pour définir cette corrélation, il a été nécessaire de démontrer que la réflectivité moyenne à l'interface ρ_m , l'albédo de diffusion ω_d , et la réflectivité normale de l'interface ρ_N , sont égaux et ne dépendent pas de la texture des mousses, mais seulement de n et k.
- Le coefficient d'extinction β d'une mousse peut être estimé à partir de la connaissance de sa porosité *p*, et de son diamètre nominal de cellule *d*_{nom}. Pour cela, nous utilisons le modèle initialement proposé par Hendricks et Howell [1996], dont les

paramètres ont été ajustés dans ces travaux pour une grande variété de textures (équation 6.6). Ensuite, connaissant l'albédo de diffusion ω_d , il est possible d'obtenir les autres propriétés radiatives que sont les coefficients d'absorption et de diffusion.

L'influence de la texture des mousses sur les profils de l'énergie absorbée en fonction de la profondeur au sein de l'échantillon à également été étudiée. La connaissance de ces profils permet notamment d'estimer la profondeur à laquelle un éventuel revêtement sélectif doit être déposé. Toutefois, l'impact des textures de type mousse sur la sélectivité spectrale procurée par de tels revêtements semble remettre en cause leur efficacité.

Les résultats de ce chapitre ont finalement été utilisés pour définir la texture optimale d'une mousse utilisée en tant qu'absorbeur solaire volumétrique. Du point de vue radiatif, celle-ci est définie, dès lors que l'hypothèse d'épaisseur optique est satisfaite, par de très hautes porosités ainsi que des diamètres de cellules élevés. Néanmoins, les textures répondant à ces critères ne sont pas les meilleures pour répondre de manière satisfaisante aux autres contraintes que les mousses doivent respecter pour ce type d'application (haute surface spécifique, bonne tenue mécanique, bonne conduction thermique). Une étude des transferts de chaleur couplés (conducto-convecto-radiatifs), ayant pour objectif la maximisation de l'efficacité thermique de l'absorbeur, doit de ce fait être menée pour mettre en concurrence les textures optimales définies pour chaque type de transfert.

6.6 Références

- AKOLKAR, A. et PETRASCH, J. (2011). Tomography based pore-level optimization of radiative transfer in porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 54:4775 – 4783. 144
- AL-RAOUSH, R. et PAPADOPOULOS, A. (2010). Representative elementary volume analysis of porous media using x-ray computed tomography. *Powder Technology*, 200:69–77. 143
- BRUN, E. (2009). *De l'imagerie 3D des structures à l'étude des mécanismes de transport en milieux cellulaires*. Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille. 143
- CONTENTO, G., OLIVIERO, M., BIANCO, N. et NASO, V. (2014). Prediction of radiative heat transfer in metallic foams. *International Journal of Thermal Sciences*, 76:147–154. 142
- COQUARD, R. et BAILLIS, D. (2004). Radiative characteristics of opaque spherical particles beds : A new method of prediction. *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*, 18(2): pp. 178–186. 167
- COQUARD, R., ROUSSEAU, B., ECHEGUT, P., BAILLIS, D., GOMART, H. et IACONA, E. (2012). Investigations of the radiative properties of Al-NiP foams using tomographic images and stereoscopic micrographs. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 55(5-6):1606–1619. 143
- GUÉVELOU, S., ROUSSEAU, B., DOMINGUES, G., VICENTE, J. et CALIOT, C. (2016). Representative elementary volumes required to characterize the normal spectral emittance of silicon carbide foams used as volumetric solar absorbers. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 93:118 – 129. 142
- GUÉVELOU, S., ROUSSEAU, B., DOMINGUES, G., VICENTE, J., CALIOT, C. et FLAMANT, G. (2015). Evolution of the homogenized volumetric radiative properties of a family of α-sic foams with growing nominal pore diameter. *Journal of Porous Media*, 18(11):1–15. 167
- HENDRICKS, T. J. et HOWELL, J. R. (1996). Absorption/scattering coefficients and scattering phase functions in reticulated porous ceramics. *Journal of Heat Transfer*, 118(1):79–87. 163, 166, 181, 185, XXI
- HSU, P. F. et HOWELL, J. R. (1992). Measurements of thermal conductivity and optical properties of porous partially stabilized zirconia. *Experimental Heat Transfer*, 5(4):293–313. 165
- LARROUTUROU, F. (2015). *Amélioration des propriétés radiatives de récepteurs solaires surfaciques haute température par microstructuration*. Thèse de doctorat, Université de Perpignan Via Domitia. 183, 184
- LORETZ, M., MAIRE, E. et BAILLIS, D. (2008). Analytical modelling of the radiative properties of metallic foams : contribution of X-Ray Tomography. *Advanced Engineering Material*, 10(4):352–360. 167
- MENDES, M. A., TALUKDAR, P., RAY, S. et TRIMIS, D. (2014). Detailed and simplified models for evaluation of effective thermal conductivity of open-cell porous foams at high

temperatures in presence of thermal radiation. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 68(0):612 – 624. 143

- MOLLICONE, J. (2015). Fonctionnalisation de supports de SiC par imprégnation de sols et/ou de suspensions en vue d'améliorer les rendements de conversion d'échangeurs solaires. Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, Toulouse. 184
- PARTHASARATHY, P., HABISREUTHER, P. et ZARZALIS, N. (2012). Identification of radiative properties of reticulated ceramic porous inert media using ray tracing technique. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 113(15):1961–1969. 143
- PETRASCH, J., WYSS, P. et STEINFELD, A. (2007). Tomography-based Monte-Carlo determination of radiative properties of reticulate porous ceramics. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 105(2):180–197. 143
- SANI, E., MERCATELLI, L., SANSONI, P., SILVESTRONI, L. et SCITI, D. (2012). Spectrally selective ultra-high temperature ceramic absorbers for high-temperature solar plants. *Journal of Renewable and Sustainable Energy*, 4(3):–. 183
- SHEFFLER, M. et COLOMBO, P. (2005). Cellular Ceramics : Structure, Manufacturing, Properties and Applications. Wiley. 182, 183
- TANCREZ, M. et TAINE, J. (2004). Direct identification of absorption and scattering coefficients and phase function of a porous medium by a Monte Carlo technique. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 47(2):373–383. 167
- ZHANG, Q.-C. (2000). Recent progress in high-temperature solar selective coatings. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 62(1–2):63 74. 183

Conclusions générales et perspectives

Conclusions générales

Ce travail de thèse s'inscrit dans le développement de l'une des technologies du solaire thermodynamique concentré, à savoir les centrales à tour, dans un contexte énergétique mondial marqué par la nécessaire émergence de filières de production d'énergie durables et respectueuses de l'environnement. L'augmentation du rendement de conversion solaire-chaleur des absorbeurs solaires recevant le rayonnement solaire concentré constitue l'un des challenges clés pour l'augmentation de la compétitivité économique de ces centrales, sachant que les récepteurs solaires constituent entre 10 et 15 % de leurs coûts. Il apparaît que l'utilisation d'absorbeurs solaires volumétriques utilisant des mousses en céramiques à base de carbure de silicium de type α (α -SiC) constitue l'une des solutions les plus prometteuses pour augmenter la température de l'air en sortie du récepteur (T \approx 1300 K). Ainsi, des cycles thermodynamiques aux rendements plus élevés peuvent être initiés, augmentant de fait le rendement global de la centrale.

Une fois ce cadre de travail établi, les propriétés thermo-radiatives des mousses qui ont une influence sur la performance thermique de l'absorbeur volumétrique ont été mises en évidence. L'absorptance normale A_N , intégrée sur le domaine spectral du visible, joue de manière directe sur l'efficacité de conversion de l'absorbeur. La connaissance des propriétés radiatives homogénéisées (coefficient d'extinction β , coefficient d'absorption α , coefficient de diffusion σ et fonction de phase de diffusion Φ) permet quant à elle le calcul de la contribution énergétique du rayonnement thermique au sein des bilans de masse et de chaleur, via la résolution de l'Équation du Transfert Radiatif (ETR). Les études multi-physiques impliquant le calcul de ces bilans permettent notamment la prédiction de gradients de température de la phase solide des mousses, ainsi que des températures de l'absorbeur.

Les propriétés thermo-radiatives sont fortement liées aux paramètres texturaux caractérisant la mousse. Ce présent travail de thèse, partie prenante de l'ANR SEED OPTISOL dont l'objectif est le développement d'absorbeurs solaires volumétriques innovants en mousses céramiques, a pour but la mise en évidence de ces liens. Néanmoins, un verrou important demeure quant à l'étude de ces liens : les procédés de fabrication industriels ne permettent pas l'obtention de larges quantités de jeux de mousses dont les propriétés texturales sont maîtrisées.

En l'absence de tels jeux d'échantillons, l'étude des liens précédemment évoqués est restreinte à des plages de paramètres texturaux elles-mêmes limitées par l'élaboration. L'utilisation et le développement d'outils numériques permettant de répondre à cette problématique est donc essentielle. Le premier d'entre eux est le logiciel iMorph, développé à l'IUSTI de Marseille ces dernières années et présenté en chapitre 2, qui permet la caractérisation texturale des mousses à partir de leur reconstruction 3D. Un échantillon de mousse d' α -SiC, qui a servi de référence tout au long de ce travail de thèse, a été étudié à partir d'images binarisées obtenues par μ -tomographie X.

Il est nécessaire dans un second temps de disposer de méthodes numériques permettant la prédiction de l'ensemble des propriétés thermo-radiatives qui nous intéressent. Après avoir rappelé les définitions de ces propriétés, un état de l'art des méthodes prédictives a donc été mené en chapitre 3. Les conclusions de cette étude nous ont permis de choisir les approches numériques suivantes : une méthode de calcul de l'absorptance normale A_N via un algorithme de lancer de rayons par Monte-Carlo (méthode MCRT), ainsi qu'une méthode d'identification des propriétés radiatives homogénéisées (β , α , σ et Φ) à partir des fonctions de distribution radiative (méthode RDFI), elles aussi déterminées par un algorithme de lancer de rayons. Le développement de ces deux méthodes, ainsi que leur validation concluante ont été menés au chapitre 4. Elles sont disponibles aujourd'hui dans le code iMorphRad (C++) implémenté sous la forme d'un plugin d'iMorph.

Enfin, un outil numérique innovant permettant la génération de mousses dont les propriétés texturales sont à la fois réalistes et contrôlées a été développé (GenFoam, C++). La méthode consiste à réaliser la tesselation de Voronoï d'une distribution de centres de cellule, puis à mettre en forme les brins du réseau ainsi constitué. Cet outil est présenté au chapitre 5, et ses performances ont été validées en comparant une texture synthétique à la texture "cible" relevée sur la mousse d' α -SiC de référence. Elle permet de reproduire de manière très satisfaisante l'ensemble des propriétés texturales de la mousse réelle, tout en permettant leur contrôle de manière aisée.

L'utilisation intensive et combinée de tous ces outils numériques a permis, au chapitre 6, l'étude des liens existant entre les propriétés texturales des mousses et leurs propriétés radiatives. Pour cela, un jeu de 96 mousses avec une large gamme de paramètre texturaux (0,35 a été généré. Cette campagne a permis l'obtention de nombreux résultats.

Les Volumes Élémentaires Représentatifs (VER) requis pour le calcul de la porosité et des propriétés radiatives, ainsi que leurs dépendances à la texture des mousses synthétiques, ont été finement déterminés. Nous avons remarqué en particulier que les VER requis pour identifier les propriétés radiatives homogénéisées et ceux nécessaires au calcul des grandeurs radiatives mesurables (dont l'absorptance normale A_N, importante en solaire concentré) sont exactement les mêmes.

Les milieux ainsi définis répondent au régime beerien. Mieux, connaissant la texture d'un échantillon de mousse d' α -SiC, il est aisément possible de définir les dimensions utiles (longueur × largeur × hauteur) pour réaliser des mesures fiables et, en retour, de concevoir des dispositifs expérimentaux adaptés, notamment sur le plan optique.

Des corrélations robustes et simples d'utilisation entre les propriétés texturales et les propriétés radiatives ont été établies pour les mousses dont les brins sont optiquement épais et dont les volumes sondés sont supérieurs ou égaux à leurs VER radiatifs. Cellesci permettent, à partir d'une connaissance du premier ordre de la texture du matériau (porosité et diamètre nominal de cellule) et des propriétés optiques n et k intrinsèques du matériau constituant les brins, de remonter à l'ensemble de ses propriétés radiatives. Plus exactement, l'absorptance normale d'une mousse s'exprime en fonction de *n*, de *k* et de la porosité pour des couples (*n*, *k*) balayant la plage des comportements réflectifs (réflectivité normale-normale maximale de 0,65) à celle des comportements absorbants. En parallèle, le coefficient d'extinction β s'exprime en fonction du diamètre nominal de cellule et de la porosité, à l'instar des résultats pionniers d'Hendricks et d'Howell : la loi proposée dans ce travail étend la plage d'application originale à une gamme texturale et de matériau beaucoup plus large.

Ces enseignements nous ont finalement permis de répondre à la question initiale posée par ce sujet de thèse : quelle texture de mousse devons-nous retenir afin d'optimiser l'efficacité de conversion solaire-chaleur des absorbeurs solaires volumétriques? Sur le strict plan des propriétés radiatives, les conclusions de ces travaux nous poussent à choisir des mousses dont les porosités sont élevées (p > 0,8) et dont les diamètres de cellules sont les plus grands possibles (PPI < 20). Ces textures permettent, dès lors que l'épaisseur optique du matériau est garantie, l'optimisation de l'effet volumétrique qui donne aux absorbeurs solaires étudiés ici tout leur intérêt. En revanche, de telles textures ne permettent pas la maximisation de la surface spécifique qui favorise, elle, les échanges convectifs. L'optimisation couplée convecto-radiative requiert donc de pousser les investigations sur le jeu de mousse proposé dans cette thèse afin de tendre vers les paramètres texturaux optimaux.

Par ailleurs, ce travail répond à une autre question posée dans le programme ANR SEED OPTISOL à savoir la possibilité d'utiliser des mousses dont les brins sont optiquement sélectifs. Entre le comportement optiquement sélectif prometteur d'un matériau à l'état de bulk et celui prédit via la loi constitutive reliant l'absorptance normale à la porosité et aux fonctions optiques pour une mise en forme de type mousse, ce travail montre qu'une forte porosité atténue le pouvoir sélectif originel. Autrement dit, pour des mousses hautement poreuses et dont les VER radiatifs sont atteints, le recours à un matériau constituant hautement sélectif s'avère inintéressant sur le plan strictement radiatif.

Perspectives

De nombreux aspects de ce travail de thèse peuvent être approfondis : tout d'abord, une meilleure prise en compte des propriétés réelles du flux radiatif irradiant les mousses est possible. Des incidences plus ou moins diffuses, ainsi que des flux radiatifs à distribution spatiale non homogènes, comme cela est le cas en usage réel, doivent être étudiés. Une amélioration de ce travail peut également être faite en prenant en compte la rugosité de surface réelle des brins à l'échelle micrométrique, qui est aujourd'hui implicitement considérée via la méthode d'identification des propriétés optiques effectives *n* et *k*. Ceci nécessite le développement d'une approche numérique plus fine pour traiter le comportement diffusif à l'échelle locale car la réponse optique résultera d'un comportement hybride entre spécularité de type Fresnel et une diffusion de type Lambert. Les travaux de thèse de Gomart [2008] portant sur la prédiction des propriétés radiatives de surfaces rugueuses à distribution gaussienne et basés sur l'approximation de l'optique géométrique constituent un point de départ pour étendre ce travail. De la même manière, des développements ultérieurs pourront être consacrés à la prise en compte de revêtements dont les fonctionnalités ne seront pas nécessairement d'optimiser le comportement optique (recherche de sélectivité spectrale) mais plutôt d'accroitre la longévité de l' α -SiC en usage industriel intensif en centrale solaire réelle (limitation de la corrosion sous air et aux températures).

Ce présent travail a été réalisé en utilisant les propriétés optiques n et k de l' α -SiC déterminées à température ambiante. Dans le cadre d'un programme financé par la Cellule Énergie du CNRS en 2014-2015 (programme CARDYMOL¹, collaboration entre le LTN, l'Institut P' de Poitiers et le CEMHTI d'Orléans), le LTN a aujourd'hui à disposition des jeux d'indices optiques sur des échantillons de SiC à divers degrés de dopage et pour des températures allant jusqu'à 1400 K. Il est donc tout à fait possible de prédire les comportements radiatifs, via iMorphRad, de mousses de SiC en supposant que la température n'influe pas sur leurs textures ainsi que sur leurs compositions chimiques. L'approche consistant à calculer les propriétés thermo-radiatives des mousses de SiC jusqu'aux températures caractéristiques du fonctionnement des centrales solaire à concentration est aujourd'hui la voie la plus sûre, puisque celle basée sur leurs mesures expérimentales en conditions extrêmes s'avère aujourd'hui délicate. Pour mieux comprendre les effets thermo-chimiques (dopage, température) sur les fonctions optiques du SiC, le recours à la Dynamique Moléculaire peut apporter aujourd'hui des résultats complémentaires intéressants (thèse ADEME, Aubin Mekeze-Monthe). Le SiC passant d'un comportement optiquement épais à un comportement optiquement mince à faible dopage, il conviendra de bien gérer le transport radiatif pour des brins transparents. Cette option est ainsi déjà implémentée dans iMorphRad. Il va de soi que les lois de comportement mises en avant dans cette thèse (cas de mousses à pores ouverts et à brins opaques) devront être revues dans le cas de la semi-transparence.

Par ailleurs, les mousses à gradient de texture constituent également une piste prometteuse pour l'optimisation des performances des absorbeurs solaires volumétriques. Ce travail de thèse n'a pas été consacré à leur développement, mais propose des moyens numériques permettant leur étude.

Enfin, il semble important de souligner que la texture idéale du point de vue du transfert radiatif, n'est pas nécessairement celle qui est optimale pour les autres modes de transfert de chaleur. Il convient donc de développer des approches numériques multiphysiques pour un même maillage de simulation incluant tous les modes de transferts de chaleur (convectifs, conductifs, radiatifs) afin de répondre aux questions relevant du choix de la texture d'une mousse utilisée en tant qu'absorbeur solaire volumétrique. Cette réflexion a été entamée dans le cadre d'un autre programme en 2014-2015 de la Cellule Énergie du CNRS (programme MaTRaCC, collaboration entre le LCTS de Pessac, l'IUSTI de Marseille, le LTN et le PROMES d'Odeillo).

6.7 Références

GOMART, H. (2008). *Modélisation des propriétés thermo-radiatives de revêtements à haute efficacité énergétique*. Thèse de doctorat, Université d'Orléans. 191

^{1.} Optimisation de la conversion thermo-photovoltaïque par le contrôle des propriétés thermoradiative d'élément en CARbure de silicium : apport de la DYnamique MOLéculaire.

Annexe A

Rappel des notions de base d'électromagnétisme

Cette annexe propose un bref rappel des notions de base d'électromagnétisme, basé sur le cours de Rousseau [2014]. En partant des équations de Maxwell, qui régissent les interactions ondes-matière, la fonction diélectrique d'un matériau est définie. Ensuite le lien entre la fonction diélectrique d'un matériau et ses fonctions optiques est établi.

L'indice de réfraction complexe est intimement lié à la réponse du matériau diélectrique au champ électrique de l'onde incidente. Cette relation peut être établie via l'écriture des équations de Maxwell qui s'écrivent pour un milieu homogène conducteur de la manière suivante :

$$\nabla.\mathbf{D} = \boldsymbol{\rho},\tag{A.1}$$

$$\nabla .\mathbf{D} = \mathbf{0},\tag{A.2}$$

$$\nabla \mathbf{E} + \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = \mathbf{0},\tag{A.3}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \vec{j} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t},\tag{A.4}$$

avec ρ , la densité volumique de charge électrique, et \vec{j} , la densité de courant, tous deux associés aux charges libres et liées par une équation de conservation de la charge électrique locale, analogue à l'équation de continuité en hydrodynamique . E représente le champ électrique et B l'induction magnétique. E et B sont reliés respectivement au déplacement électrique D et au champ magnétique H par les relations suivantes :

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \mathbf{0},\tag{A.5}$$

$$\mathbf{H} = \frac{\mathbf{B}}{\mu_0} - \mathbf{M},\tag{A.6}$$

avec P et M étant la polarisation électrique et la magnétisation, correspondant respectivement aux densités de moments dipolaires électriques et magnétiques. ϵ_0 et μ_0 représentent respectivement la permittivité et la perméabilité du vide. Lorsqu'un champ électrique est appliqué à un matériau, des moments dipolaires et multipolaires apparaissent, dûs à la fois aux déformations des nuages électroniques mais aussi aux déplacements des atomes. Ce phénomène, qui induit un courant électrique D dans le solide, est illustré par l'équation A.5.

Les équations de Maxwell mettent en relation les grandeurs E, H, B, D, et \vec{j} . Seulement, la détermination de ces vecteurs de champs dans un matériau à partir des courants et charges donnés auxquels il est soumis nécessite l'introduction de relations supplémentaires dites "constitutives". Celles-ci décrivent le comportement de la matière en fonction des champs auxquels elle est soumise. Pour un matériau conducteur, homogène, linéaire et isotrope, les relations constitutives se simplifient de la manière suivante [Born et Wolf, 1999] :

$$\vec{J} = \bar{\vec{\sigma}}\vec{E}, \quad \vec{B} = \bar{\vec{\mu}}\vec{H}, \quad \vec{D} = \varepsilon_0 \bar{\varepsilon_r}\vec{E}, \tag{A.7}$$

dans laquelle σ représente le tenseur de conductivité spécifique, ε_r le tenseur de la constante diélectrique relative, μ le tenseur de perméabilité magnétique. Bien que, rigoureusement, $\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r$, la notation usuelle qui omet l'indice *r* sera utilisée et le terme constante diélectrique signifiera constante diélectrique relative par la suite.

Les matériaux pour lesquels σ est suffisamment faible pour être négligée sont dits isolants ou diélectriques. Leurs propriétés électriques et magnétiques sont complètement décrites par ε et μ . Dans le cadre de la théorie atomique [Born et Wolf, 1999], la matière est vue comme des particules (atomes, molécules) interagissant au sein du vide, en produisant des champs à forte variation locale. Ces champs, liés à la matière, sont susceptibles d'être modifiés par un champ externe appliqué au matériau, dont les propriétés peuvent être déduites *in fine* en prenant le champ moyenné résultant. Ceci implique que, si la région sur laquelle est faite la moyenne du champ est grande en comparaison avec les dimensions des particules, les propriétés électromagnétiques de celles-ci peuvent être décrites par de simples dipôles électriques ou magnétiques [Born et Wolf, 1999]. Cette approximation (première approximation de la théorie atomique) admet que, pour des champs suffisamment faibles, P est proportionnel à E via la relation suivante :

$$\vec{\mathbf{P}} = \varepsilon_0 \bar{\tilde{\boldsymbol{\chi}}} \vec{\mathbf{E}} \tag{A.8}$$

avec $\overline{\tilde{\chi}}$ étant le tenseur de rang 2 de la susceptibilité diélectrique complexe. Dans notre hypothèse d'un milieu isotrope, ce tenseur de rang 2 se réduit à une grandeur scalaire complexe, la susceptibilité complexe, dénotée ici $\tilde{\chi}$, caractérisant la propension du matériau à être polarisé par le champ électrique. La constante diélectrique $\tilde{\epsilon}$, est liée à la susceptibilité diélectrique comme suit :

_

$$\tilde{\varepsilon} = 1 + \tilde{\chi}. \tag{A.9}$$

En combinant la relation constitutive qui lie B à H avec la loi de Maxwell-Faraday (équations A.3 et A.4), l'équation différentielle suivante peut être obtenue (développement complet dans l'ouvrage de Born et Wolf [1999]), pour un milieu homogène :

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{\varepsilon \mu}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0. \tag{A.10}$$

Cette équation correspond à la propagation d'une onde électromagnétique dans le milieu admettant une vitesse $v = c/\sqrt{\epsilon\mu}$. Cette relation permet de déduire l'expression suivante, qui donne l'indice complexe de réfraction comme suit, dans le cas d'un milieu homogène, linéaire isotrope et non magnétique :

$$\tilde{n} = \sqrt{\tilde{\epsilon}}.$$
 (A.11)

 $\tilde{\epsilon}$ est une grandeur complexe que l'on peut écrire $\tilde{\epsilon} = \epsilon' + i\epsilon''$. Avec les relations précédemment établies, il est finalement possible d'écrire :

$$\varepsilon' = n^2 - k^2, \tag{A.12}$$

ainsi que :

$$\varepsilon'' = 2nk, \tag{A.13}$$

faisant de cette manière le lien avec n et k.

A.1 Références

BORN, M. et WOLF, E. (1999). Principles of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light 7th Edition. II, III

ROUSSEAU, B. (2014). Propriétés radiatives des matériaux. *In cours Ecole Thématique CNRS ETR*. I

Annexe B

Identification des propriétés optiques intrinsèques du carbure de silicium

B.0.1 Propriétés optiques intrinsèques de la phase solide (n & k)

Le développement de méthodes numériques permettant la prédiction des propriétés radiatives nécessite de pouvoir modéliser l'interaction entre le rayonnement et la matière. Cette interaction est régie par les fonctions optiques dites "intrinsèques" du matériau et plus particulièrement par l'indice complexe de réfraction \tilde{n} . La connaissance de la dépendance spectrale de l'indice de réfraction complexe du carbure de silicium est essentielle. Cette section, directement extraite de l'article publié issu de ces travaux de thèse Guévelou *et al.* [2016], a pour but de présenter brièvement les notions nécessaires à la compréhension des liens qui existent entre ces fonctions optiques et la composition chimique du SiC, un matériau considéré homogène et semi-conducteur.

B.0.1.a Définition

L'indice complexe de réfraction \tilde{n} , est exprimé comme suit :

$$\tilde{n} = n + ik \tag{B.1}$$

La partie réelle *n* est l'indice de réfraction du milieu considéré. *n* est égal au rapport entre la vitesse de propagation de l'onde dans le vide et dans le matériau. La partie imaginaire *k* représente l'indice d'extinction et correspond à l'atténuation d'une onde électromagnétique dans un milieu absorbant. *k* permet de remonter au coefficient d'absorption volumique α . L'indice de réfraction complexe est intimement lié à la réponse du matériau diélectrique au champ électrique de l'onde incidente. Un court rappel théorique des notions de base d'électromagnétisme permettant d'établir à partir des équations de Maxwell le lien entre \tilde{n} et la fonction diélectrique du matériau est fourni en annexe A.

B.0.1.b Identification des propriétés optiques intrinsèques des brins

La dépendance spectrale de l'indice de réfraction complexe du carbure de silicium ne peut être directement mesurée. Elle nécessite la mise en place d'une méthode d'identification qui implique la caractérisation expérimentale de la réflectivité normale d'un brin de SiC extrait de la mousse de référence. Ensuite une méthode inverse faisant intervenir un modèle de réflectivité ayant pour paramètre n et k permet leur identification à partir des mesures.

Mesure de la réflectivité des brins (Microscope IR)

La méthode d'identification requiert donc premièrement la mesure d'un spectre expérimental acquis sur un échantillon dont la taille est de l'ordre du centimètre $(1 \times 1 \times 0,1$ cm). Seulement, il est difficile d'obtenir un échantillon d' α -SiC de ces dimensions, dont les propriétés chimiques et texturales sont similaires à celles que l'on observe au sein de la mousse.

Alternativement, une mesure directe de la réflectivité normale-normale $\rho_{N,exp}(\omega, T)$ peut être réalisé à l'échelle du brin, à l'aide d'un microscope infrarouge. À cette occasion, plusieurs spectres ont été acquis à température ambiante sur une collection de brins grâce à un microscope infrarouge Hyperion 2000 couplé à un spectromètre à transformée de Fourier (FTIR) Bruker Vertex 80 v (Elltingen, Allemagne). Pour chaque spectre, l'aire sondée par le microscope infrarouge est définie par un diamètre de 50 µm. La figure B.1 montre le spectre moyenné de $\rho_{N,exp}(\omega,T)$ relatif à ces acquisitions par une courbe verte.



FIGURE B.1 – Spectre moyen des réflectivités normale-normale mesurées sur une collection de brins extraits de la mousse de SiC (en vert).

Méthode inverse pour l'identification de n et k

Le calcul des propriétés radiatives d'un mousse nécessite la connaissance des propriétés optiques intrinsèques ($\tilde{n} = n + ik$) de la phase solide qui en constitue les brins. Comme mentionné en section 3.2, les brins issus de la mousse sont entièrement constitués de grains de α-SiC, dont la concentration moyenne en impuretés demeure inconnue. Rappelons que, en fonction de leur concentration en impuretés ou de leur niveau de dopage chimique, les composés à base d' α -SiC peuvent avoir une couleur dans la gamme spectrale du visible allant du vert (à basses concentrations, inférieures à 10¹⁶ - 10¹⁸ cm⁻³ [Dubrovskii et al., 1973; Spitzer et al., 1959]) au gris-sombre (à hautes concentrations, supérieures à 10¹⁹ cm⁻³ [Klein *et al.*, 1972]). De manière générale, cela indique que les composés à base d'a-SiC obéissent à des comportements optiques observés typiquement pour des matériaux semi-conducteurs. L'acquisition de spectres µ-Raman sur une collection de brins a permis de déterminer que le α -SiC étudié ici est considérablement dopé [Klein *et al.*, 1972]. Pour ces matériaux, la contribution électronique intrinsèque est relativement importante et domine leur réponse optique sur une large partie du spectre [Ta et al., 2010]. En d'autres termes, la dépendance spectrale de l'indice de réfraction complexe de l'α-SiC est fortement influencée par le dopage chimique imposé lors du procédé d'élaboration, et ce plus spécifiquement pour le domaine spectral allant de l'infrarouge moyen jusqu'au visible [Tiwald et al., 1999], tandis que sa réponse optique dans l'infrarouge lointain est classiquement dominée par les vibrations de réseaux [Engelbrecht et Van Rooyen, 2011; Spitzer *et al.*, 1959].

La microtexture imposée par l'organisation spatiale des grains d' α -SiC génère un second mécanisme optique, qualifié d'"extrinsèque", pouvant amplifier les effets dûs aux premières absorptions intrinsèques, et ce plus spécialement pour des cas optiquement épais Rousseau *et al.* [2010].

Comme il peut être observé en figure 3.6, les brins présentent une surface accidentée ayant pour origine l'assemblage de grains d' α -SiC polyédraux dont les orientations respectives paraissent aléatoires. Ces grains d' α -SiC ont une structure cristallographique hexagonale, ce qui rend leur propriétés optiques intrinsèques légèrement anisotropes **Engelbrecht et Helbig** [1993]. Cependant, cette spécificité sera considérée comme négligeable dans la suite de ce développement. De plus, de petites anfractuosités de taille submicronique ont également été mises en évidence (voir figure 3.6).

À partir de cette image complexe, comment pouvons-nous modéliser la réflectivité normale-normale $\rho_{N,exp}$ mesurée sur le brin connaissant les paramètres intrinsèques et extrinsèques précédemment évoqués ? Pour résoudre ce problème, une modélisation que l'on peut diviser en 3 étapes a été nécessaire. La première est principalement basée sur une réécriture de la fonction diélectrique complexe qui est directement responsable des propriétés optiques des grains d'α-SiC. Ensuite, nous supposons que les micro-porosités ont des tailles submicroniques très inférieures à celles des longueurs d'ondes de la gamme étudiée (allant de 0.4 μm jusqu'à 20 μm). Ce "cadre" autorise l'utilisation d'une fonction diélectrique complexe effective adaptée, issue de la théorie des milieux effectifs. Ensuite, la seconde étape consiste à reproduire le comportement optique d'une couche homogène fictive d' α -SiC en combinant la fonction diélectrique complexe d'un domaine d' α -SiC homogène avec celle de l'air qui occupe les micro-porosités [Bruggeman, 1935; Garnett, 1906; Rousseau et al., 2011, 2010; Spanier et Herman, 2000]. Enfin, la troisième et dernière étape repose sur l'utilisation d'une loi analytique prenant en compte d'éventuelles micro-rugosités de la couche homogène fictive d' α -SiC. En effet, des images stéréoscopiques réalisées à température ambiante avec un microscope électronique à balayage (FEG-SEM), puis traitées avec le logiciel MEX ont indiqué que la surface des brins est caractérisée par une rugosité quadratique moyenne σ_{RMS} de 2,3 µm ainsi que par une

longueur de corrélation moyenne τ de 22 µm. Ces propriétés géométriques de la surface autorisent l'utilisation de l'expression donnée par Bennett et Porteus [1961] qui permet le calcul de la réflectivité normale $\rho_N(\omega, T)$ d'une surface rugueuse et opaque. Cette dernière, valide lorsque σ_{rms} / λ est bien inférieur à 1, est donnée par :

$$\rho_{\rm N}(\omega, T) = R_{\rm N}(\omega, T) e^{-(0.0004\pi\sigma_{\rm RMS}\omega)^2}, \qquad (B.2)$$

dans laquelle $R_N(\omega, T)$ est la réflectivité normale de la couche d' α -SiC homogène et optiquement polie. Rappelons également que $\omega = 10000 / \lambda$. Pour une incidence normale, $R_N(\omega, T)$ est donné par la loi de Fresnel comme suit :

$$R_{N}(\omega,T) = \left| \frac{\sqrt{\tilde{\epsilon}_{eff,\alpha-SiC}(\omega,T)} - 1}{\sqrt{\tilde{\epsilon}_{eff,\alpha-SiC}(\omega,T)} + 1} \right|^{2} = \left| \frac{\tilde{n}_{eff,\alpha-SiC}(\omega,T) - 1}{\tilde{n}_{eff,\alpha-SiC}(\omega,T) + 1} \right|^{2}.$$
(B.3)

Dans l'équation B.3, $\tilde{\epsilon}_{eff,\alpha-SiC}(\omega, T)$ représente la fonction diélectrique complexe effective, et $\tilde{n}_{eff,\alpha-SiC}(\omega, T)$, l'indice de réfraction complexe effectif. $\tilde{\epsilon}_{eff,\alpha-SiC}(\omega, T)$ est donné par la formule de Bruggeman, en supposant des micro-porosités sphériques :

$$f_{\nu} \frac{\tilde{\varepsilon}_{\alpha-SiC}(\omega, T) - \tilde{\varepsilon}_{eff,\alpha-SiC}(\omega, T)}{\tilde{\varepsilon}_{\alpha-SiC}(\omega, T) + 2\tilde{\varepsilon}_{eff,\alpha-SiC}(\omega, T)} + (1 - f_{\nu}) \frac{\tilde{\varepsilon}_{air}(\omega, T) - \tilde{\varepsilon}_{eff,\alpha-SiC}(\omega, T)}{\tilde{\varepsilon}_{air}(\omega, T) + 2\tilde{\varepsilon}_{eff,\alpha-SiC}(\omega, T)} = 0.$$
(B.4)

Dans cette formule, $\tilde{\epsilon}_{\alpha-SiC}(\omega, T)$ est la fonction diélectrique complexe relative aux grains homogènes d' α -SiC à la température T, $\tilde{\epsilon}_{air}(\omega, T)$ est la fonction diélectrique complexe de l'air à la température T, et f_{ν} est la fraction volumique d' α -SiC au sein de la couche homogène). Finalement, dans la mesure où les comportements optiques des grains d' α -SiC sont typiques de ceux d'un matériau faiblement conducteur, le modèle de double amortissement de Drude (DDD) peut être utilisé pour décrire $\tilde{\epsilon}_{\alpha-SiC}(\omega,T)$ sur toute une gamme de nombres d'ondes [Gervais, 2002; Tiwald *et al.*, 1999] :

$$\tilde{\varepsilon}_{\alpha-\text{S}i\text{C}}(\omega,\text{T}) = \epsilon_{\infty}(\text{T}) \times \left[\Pi_{j} \left(\frac{\Omega_{j\text{LO}}^{2}(\text{T}) - \omega^{2} + i\nu_{j\text{LO}}(\text{T})\omega}{\Omega_{j\text{TO}}^{2}(\text{T}) - \omega^{2} + i\nu_{j\text{TO}}(\text{T})\omega} \right) - \frac{\Omega_{\text{P}}^{2}(\text{T}) + i(\nu_{p}(\text{T}) - \nu_{0}(\text{T}))\omega)}{\omega^{2} - i\nu_{0}(\text{T})\omega} \right].$$
(B.5)

Dans l'équation B.5, le terme produit représente la forme factorisée de la fonction diélectrique introduit par Kurosawa, Ω_{jTO} et Ω_{jLO} (T) étant respectivement les nombres d'ondes optiques transverses (TO) et longitudinaux (LO) à la température T des j^{emes} oscillateurs, et v_{jTO} (T) et v_{jLO} (T) les dopages TO et LO correspondants à la même température. Cette fonction reproduit la signature optique des phonons. Le deuxième terme est une fonction de Drude ajoutée et utilisée pour décrire la réponse des porteurs de charges mobiles dus au dopage chimique. Ici, Ω_P (T) représente le nombre d'onde du plasma à la température T. v_0 (T) et v_P (T) correspondent aux dopages calculés à $\omega = 0$ et $\omega = \Omega_P$. Enfin, ϵ_{∞} (T) est la constante diélectrique pour les grands nombres d'onde qui incluent les contributions électroniques. Les avantages et inconvénients du modèle DDD ont fait l'objet de nombreuses études dans la littérature, et ce par rapport à d'autres modèles de fonctions diélectriques complexes. D'intéressantes discussions sur la validité de l'équation B.5 sont données dans les travaux de Gervais [2002].

En combinant successivement les équations B.2, B.3, B.4 et B.5, on peut enfin calculer $\rho_{N,num}(\omega,T)$ *i. e.* la réflectivité normale calculée relative aux brins.

Pour obtenir $\tilde{n}_{eff,\alpha-SiC}(\omega, T)$, la méthodologie consiste ensuite à comparer $\rho_{N,num}(\omega, T)$ avec la valeur expérimentale $\rho_{N,exp}(\omega, T)$ (voir section précédente). De manière classique, on utilise une étape de minimisation, basée sur la méthode des moindres carrés, qui permet d'obtenir une bonne superposition de $\rho_{N,num}(\omega, T)$ avec $\rho_{N,exp}(\omega, T)$. Le spectre modélisé correspondant à la superposition la plus satisfaisante est reporté en figure B.1 (points violets). Le tableau B.1 liste les paramètres utilisés pour superposer $\rho_{N,num}(\omega, T)$ à T = 300 K :

TABLEAU B.1 - Valeurs des paramètres	s du modèle de réflectivité :
--------------------------------------	-------------------------------

$\Omega_{\rm TO}({\rm T})~({\rm cm}^{-1})$	797
$\Omega_{\rm LO}({\rm T})~({\rm cm}^{-1})$	5
$v_{TO}(T) (cm^{-1})$	970
$v_{LO}(T) (cm^{-1})$	5
$\epsilon_{\infty}(T)$	6.52
$\Omega_{\rm P}({\rm T})~({\rm cm}^{-1})$	600
$v_{\rm P}({\rm T})~({\rm cm}^{-1})$	2500
$v_0(T) (cm^{-1})$	2000
f_{v}	0.7
$\sigma_{\rm RMS}$ (μ m)	2.1

Pour $\tilde{\epsilon}_{\alpha-SiC}(\omega, T)$, les paramètres utilisés pour décrire la réponse optique du phonon rejoignent de manière satisfaisante les données disponibles dans la littérature [Engelbrecht et Van Rooyen, 2011; Spanier et Herman, 2000; Spitzer *et al.*, 1959; Tiwald *et al.*, 1999]. D'autre part, la valeur de $\Omega_P(T)$ est en bon accord avec celle trouvée lors de précédents travaux concernant les propriétés optiques de α -SiC fortement dopés [Klein *et al.*, 1972; Spanier et Herman, 2000].

B.1 Références

- BENNETT, H. E. et PORTEUS, J. O. (1961). Relation between surface roughness and specular reflectance at normal incidence. *Journal of the Optical Society of America*, 51(2):123– 129. VIII
- BRUGGEMAN, V. D. (1935). Berechnung verschiedener physikalischer konstanten von heterogenen substanzen. i. dielektrizitätskonstanten und leitfähigkeiten der mischkörper aus isotropen substanzen. *Annalen der physik*, 416(7):636–679. VII
- DUBROVSKII, G. B., LEPNEVA, A. A. et RADOVANOVA, E. I. (1973). Optical absorption associated with superlattice in silicon carbide crystals. *physica status solidi (b)*, 57(1):423– 431. VII
- ENGELBRECHT, F. et HELBIG, R. (1993). Effect of crystal anisotropy on the infrared reflectivity of 6h-sic. *Physical Review B*, 48(21):15698. VII

- ENGELBRECHT, J. et VAN ROOYEN, I. (2011). The influence of various dielectric parameters on the reststrahlen region of sic. *Physica B : Condensed Matter*, 406(3):593–596. VII, IX
- GARNETT, J. M. (1906). Colours in metal glasses, in metallic films, and in metallic solutions. ii. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical or Physical Character*, pages 385–420. VII
- GERVAIS, F. (2002). Optical conductivity of oxides. *Materials Science and Engineering : R : Reports*, 39(2):29–92. VIII, IX
- GUÉVELOU, S., ROUSSEAU, B., DOMINGUES, G., VICENTE, J. et CALIOT, C. (2016). Representative elementary volumes required to characterize the normal spectral emittance of silicon carbide foams used as volumetric solar absorbers. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 93:118 – 129. V
- KLEIN, M. V., GANGULY, B. N. et COLWELL, P. J. (1972). Theoretical and experimental study of Raman scattering from coupled LO-Phonon-Plasmon modes in silicon carbide. *Phys. Rev. B*, 6:2380–2388. VII, IX
- ROUSSEAU, B., GOMART, H., MENESES, D. D. S., ECHEGUT, P., RIEU, M., DUGAS, R., LENOR-MAND, P. et ANSART, F. (2011). Modelling of the radiative properties of an opaque porous ceramic layer. *Journal of electroceramics*, 27(2):89–92. VII
- ROUSSEAU, B., GOMART, H., ZANGHI, D., BERNARD, D. et STAMPANONI, M. (2010). Synchrotron x-ray μ-tomography to model the thermal radiative properties of an opaque ceramic coating at t= 1000 k. *Journal of Materials Research*, 25(10):1890. VII
- SPANIER, J. E. et HERMAN, I. P. (2000). Use of hybrid phenomenological and statistical effective-medium theories of dielectric functions to model the infrared reflectance of porous sic films. *Physical Review B*, 61(15):10437. VII, IX
- SPITZER, W. G., KLEINMAN, D. et WALSH, D. (1959). Infrared properties of hexagonal silicon carbide. *Phys. Rev.*, 113:127–132. VII, IX
- TA, M. T., ROLLAND, J.-Y., ECHEGUT, P., ROUSSEAU, B., ZAGHRIOUI, M., GIOVANNELLI, F., GOMART, H., LENORMAND, P. et ANSART, F. (2010). Prediction of thermal radiative properties (300–1000 k) of la 2 nio 4+ δ ceramics. *Applied Physics Letters*, 97(18):181917– 181917. VII
- TIWALD, T. E., WOOLLAM, J. A., ZOLLNER, S., CHRISTIANSEN, J., GREGORY, R., WETTEROTH, T., WILSON, S. et POWELL, A. R. (1999). Carrier concentration and lattice absorption in bulk and epitaxial silicon carbide determined using infrared ellipsometry. *Physical Review B*, 60(16):11464. VII, VIII, IX

Annexe C

Propriétés texturales de l'ensemble du jeu de mousses

TABLEAU C.1 – Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à partir de l'échantillon 2 (45 PPI) :

Échantillon	PPI	p	S	d _{nom}
			(m^2/m^3)	(mm)
1A	45	0,93	3154	551 ± 46
1B	45	0,88	4596	537 ± 45
1C	45	0,82	5449	524 ± 46
1D	45	0,76	5965	512 ± 46
1E	45	0,71	6310	499 ± 47
1F	45	0,68	6435	492 ± 47
1G	45	0,63	6601	478 ± 48
1H	45	0,57	6661	463 ± 48
11	45	0,51	6620	446 ± 49
1J	45	0,46	6484	429 ± 50
1K	45	0,43	6383	420 ± 51
1L	45	0,38	6122	401 ± 52

Échantillon	PPI	р	S	d_{nom}
			(m^2/m^3)	(mm)
2A	38	0,94	2360	825 ± 65
2B	38	0,88	3187	807 ± 64
2C	38	0,83	3737	787 ± 66
2D	38	0,78	4021	774 ± 67
2E	38	0,72	4340	750 ± 69
2F	38	0,67	4483	734 ± 66
2G	38	0,63	4571	716 ± 66
2H	38	0,58	4608	696 ± 70
2I	38	0,53	4596	676 ± 68
2J	38	0,48	4542	655 ± 70
2K	38	0,42	4386	628 ± 85
2L	38	0,37	4238	597 ± 74

TABLEAU C.2 – Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à partir de l'échantillon 2 (38 PPI) :

TABLEAU C.3 – Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à partir de l'échantillon 2 (28 PPI) :

Échantillon	PPI	p	S	d_{nom}
			(m^2/m^3)	(mm)
3A	28	0,94	1839	1098 ± 84
3B	28	0,89	2372	1075 ± 86
3C	28	0,84	2792	1051 ± 85
3D	28	0,77	3111	1022 ± 87
3E	28	0,73	3271	1001 ± 85
3F	28	0,69	3391	979 ± 86
3G	28	0,62	3501	943 ± 87
3H	28	0,57	3532	917 ± 88
3I	28	0,52	3531	889 ± 92
3J	28	0,48	3497	861 ± 91
3K	28	0,43	3433	831 ± 91
3L	28	0,39	3342	799 ± 93

Échantillon	PPI	р	S	d_{nom}
			(m^2/m^3)	(mm)
4A	20	0,94	1511	1378 ± 113
4B	20	0,88	2000	1349 ± 115
4C	20	0,84	2262	1323 ± 112
4D	20	0,82	2381	1310 ± 113
4E	20	0,77	2571	1283 ± 112
4F	20	0,70	2787	1236 ± 114
4G	20	0,67	2835	1220 ± 114
$4\mathrm{H}$	20	0,59	2922	1168 ± 117
4I	20	0,56	2940	1148 ± 120
4J	20	0,51	2932	1105 ± 136
4K	20	0,43	2862	1044 ± 131
4L	20	0,38	2776	1003 ± 127

TABLEAU C.4 – Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à partir de l'échantillon 2 (20 PPI) :

TABLEAU C.5 – Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à partir de l'échantillon 2 (17 PPI) :

Échantillon	PPI	p	S	d_{nom}
			(m^2/m^3)	(mm)
5A	17	0,93	1309	1636 ± 111
5B	17	0,89	1663	1609 ± 115
5C	17	0,83	1958	1568 ± 116
5D	17	0,79	2116	1531 ± 152
5E	17	0,72	2297	1485 ± 150
5F	17	0,67	2387	1457 ± 119
5G	17	0,62	2444	1421 ± 120
5H	17	0,57	2476	1382 ± 121
5I	17	0,53	2485	1341 ± 122
5J	17	0,48	2475	1297 ± 123
5K	17	0,43	2439	1251 ± 124
5L	17	0,39	2382	1205 ± 127

Échantillon	PPI	p	S	d_{nom}
			(m^2/m^3)	(mm)
6A	14	0,94	1074	1940 ± 165
6B	14	0,88	1495	1885 ± 170
6C	14	0,84	1667	1857 ± 169
6D	14	0,77	1872	1801 ± 177
6E	14	0,73	1975	1764 ± 179
6F	14	0,68	2065	1724 ± 183
6G	14	0,63	2123	1686 ± 179
6H	14	0,59	2167	1635 ± 187
6I	14	0,54	2184	1588 ± 188
6J	14	0,47	2175	1510 ± 188
6K	14	0,42	2145	1454 ± 190
6L	14	0,37	2093	1388 ± 226

TABLEAU C.6 – Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à partir de l'échantillon 2 (14 PPI) :

TABLEAU C.7 – Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à partir de l'échantillon 2 (12 PPI) :

Échantillon	PPI	p	S	d_{nom}
			(m^2/m^3)	(mm)
7A	12	0,93	1021	2198 ± 206
7B	12	0,88	1296	2157 ± 208
7C	12	0,83	1515	2110 ± 210
7D	12	0,79	1637	2075 ± 211
7E	12	0,72	1770	2019 ± 215
7F	12	0,68	1844	1974 ± 214
7G	12	0,63	1891	1927 ± 215
7H	12	0,58	1925	1875 ± 215
71	12	0,52	1941	1796 ± 216
7J	12	0,47	1932	1739 ± 216
7K	12	0,43	1909	1659 ± 284
7L	12	0,38	1871	1599 ± 281
TABLEAU C.8 – Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à partir de l'échantillon 2 (10 PPI) :

Échantillon	PPI	p	S	d_{nom}
			(m^2/m^3)	(mm)
8A	10	0,94	893	2498 ± 137
8B	10	0,89	1167	2446 ± 138
8C	10	0,82	1390	2382 ± 140
8D	10	0,78	1511	2335 ± 141
8E	10	0,73	1610	2283 ± 141
8F	10	0,67	1684	2227 ± 143
8G	10	0,62	1740	2164 ± 143
8H	10	0,57	1772	2097 ± 145
81	10	0,52	1787	2029 ± 147
8J	10	0,46	1783	1955 ± 149
8K	10	0,41	1759	1847 ± 280
8L	10	0,36	1716	1798 ± 151

Liste des figures

1.1	Ressources planétaires en énergie : la consommation mondiale, ainsi que les potentiels de production accessibles à l'homme pour les énergies renou- velables sont indiquées en TWy (terawatt/year) par année. Les ressources non renouvelables sont exprimées en TWy	7
1.2	Spectre solaire hors atmosphère (en noir) et au sol à 37°Sud (en rouge) [ASTM International, 2005].	8
1.3	Évolution potentielle de la production d'électricité dans la zone UE-MENA selon le scénario MED-CSP [German Aerospace Center (DLR), 2005]	11
1.4	Fonctionnement général d'une centrale solaire à concentration	12
1.5	(a) Principe de fonctionnement. (b) Centrale à miroirs cylindro-paraboliques (thermosolar Olivenza 1, Espagne, 50 MW).	13
1.6	(a) Principe de fonctionnement. (b) Unité de production à miroir parabo- lique avec moteur Stirling (Plataforma Solar de Almería, Espagne)	14
1.7	(a) Principe de fonctionnement. (b) Centrale avec concentrateur linéaire de Fresnel (Novatec Solar Lidell, Australie, 9 MW).	14
1.8	(a) Principe de fonctionnement. (b) Centrale à tour (Ivanpah solar power complex, Californie, États-Unis, 392 MW).	15
1.9	Les différentes configurations de récepteurs solaires pour centrales à tour : (a) cavité, (b) externe.	18
1.10	Différents récepteurs à absorbeurs surfaciques (a) Ivanpah (tubular boiler), (b) Gemasolar (Espagne), (c) récepteur haute température SOLGATE [Euro- pean Commission, 2002]. (d) Principe de fonctionnement et gradients ther- miques [Hoffschmidt, 1997].	19
1.11	Différents récepteurs à absorbeurs volumétriques : (a) boucle ouverte : Hi- TRec [Hoffschmidt <i>et al.</i> , 2001], agencement en cluster de ce type de module (SOLAIR 3000) [Ávila Marín, 2011], (b) boucle fermée : récepteur haute tem- pérature de SOLGATE [European Commission, 2002]. (c) Principe de fonc- tionnement et gradients thermiques illustrant l'effet volumétrique [Hoff- schmidt, 1997]	20
1.12	Différents matériaux utilisés en tant qu'absorbeurs volumétriques : (a) diverses mousses céramiques [Fend <i>et al.</i> , 2004], (b) mousse SiC [Wu <i>et al.</i> , 2011a], (c) mousse inconel [Albanakis <i>et al.</i> , 2009], (d) mousse nickel [Albanakis <i>et al.</i> , 2009], (e) monolithes métalliques et (g) céramiques [Fend <i>et al.</i> , 2004], (f) treillis de fibres SiC [Fend <i>et al.</i> , 2004], (h) nids d'abeilles ReSiC	0.5
1.10	[Agrafiotis <i>et al.</i> , 2007]	23
1.13	Echantilion de mousse de reference caractérisé	24

1.14	Description des différentes échelles : (a) macroscopique, où l'on peut me- surer A_N , R_{NH} et T_{NH} , (b) mésoscopique, où opèrent des phénomènes d'ab- sorption et de diffusion par réflexion sur la phase solide, et (c) microsco- pique, où la connaissance des n et k intrinsèques et de la texture de la sur- face permet d'identifier des n et k effectifs. (d) Milieu semi-transparent (MST) homogène idéal équivalent et propriétés radiatives homogénéisées le carac- térisant.	25
2.1	Matériaux cellulaires naturels et manufacturés : (a) nids d'abeilles, (b) sec- tion d'une tige de Ricinus communis [Coulter <i>et al.</i> , 1910], (c) os coxal hu- main (source wikimedia commons), (d) absorbeur solaire volumétrique en nids d'abeilles de SiC, (e) Mousse de polyéthylène, (f) éponge synthétique.	40
2.2	Éléments constitutifs d'une mousse à cols ouverts.	41
2.3	Empilement d'images issues de la μ -tomographie par rayons X	44
2.4	(a) Distribution des niveaux de gris du stack d'images tomographiques de la mousse de référence.(b) Distribution cumulée des niveaux de gris et visua-	
2.5	lisation du report d'une gamme de niveaux de gris en gamme de porosité (a) Schéma représentant le calcul de la porosité pour le plan $(0,x,y)$ pour $z = 0$. (b) Évolution de la porosité "2D" le long des axes $x y$ et z pour l'échan-	46
2.6	tillon de mousse référence.(a) Carte des distances à l'interface, (b) représentation en 2D de la segmen-	47
	tation obtenue par Watershed, (c) cellules ellipsoïdales inscrites reconstruites	
2.7	en 3D	49
2.8	(a) Reconstruction du réseau de connectivité de l'échantillon de référence.	50
2.0	(b) Distribution des connectivités de la population de cellules	51
2.9	Distribution des distances inter-cellules pour la mousse de référence	52
2.10	(a) Identification des différents types de structures solides pour la mousse de référence : poutres (en blanc) et nœuds (en orange).	53
2.11	(a) Distributions des diamètres inscrits et circonscrits. (b) Distribution des diamètres calculés à partir du périmètre.	54
3.1	sein du spectre électromagnétique.	59
3.2	élémentaire dS.	60
3.3	Evolution de la loi de Planck en fonction de la longueur d'onde pour 1000,	61
34	Définition de la BRDE	63
3.5	Absorption, réflexion et transmission du rayonnement sur un matériau. La	00
	réflexion spéculaire est matérialisée en rouge, la réflexion diffuse en jaune, et la transmission en bleu	65
3.6	Images obtenues par microscopie par balayage électronique (MEB)	68
3.7	Spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) Vertex-80 v (Bru- ker Optics).	70
3.8	Mesure de T_{NH} et R_{NH} par sphère intégrante : (a) configuration pour la me-	-
	sure de T_{NH} , (b) configuration pour la mesure de R_{NH} .	71
3.9	Description de l'élément de volume dV	72
3.10	Description des différents types de cellules idéales utilisés	81

4.1	Reconstruction de l'interface par Marching Cube : (a) sélection d'un seuil de niveau de gris pour la binarisation (phase solide en rouge), (b) configura- tions possibles pour l'agencement des facettes reconstruites dans un voxel (images tirées du site Nvidia), (c) reconstruction 3D de l'échantillon	95
4.2	Propagation et collecte du rayonnement au sein de la reconstruction 3D de la mousse : (a) positionnement du spot et des faces de la ROI, (b) coupe 2D et visualisation des trajectoires des rayons contribuant aux différentes grandeurs mesurées (bleu : rayons contribuant à $R_{\rm NH}$, vert, à la $T_{\rm NH}$, orange pour les rayons absorbés par la phase solide).	99
4.3	Description de l'algorithme MCRT	100
4.4	Évolution de la variance de R_{NH} et T_{NH} en fonction du nombre de rayons utilisés.	100
4.5	Comparaison entre : (1) le spectre de l'absorptance normale mesurée, A_N , à T = 300 K pour la mousse d' α -SiC de référence (échantillon cubique de 12 mm de côté, de $p = 0,7$), (2) calcul MCRT du spectre de A_N ($N_{rays} = 10^6$, diamètre du faisceau incident = 10 mm) sur la reconstruction 3D obtenue à partir de la μ -tomographie de la mousse de référence (voir figure 5.10 (a)), (3) calcul MCRT du spectre de A_N ($N_{rays} = 10^6$, diamètre du faisceau incident = 10 mm) sur la reconstruction 3D de l'échantillon virtuellement généré (voir figure 5.10 (b), en section 5.3.2.a).	102
4.6	Comparaison entre le calcul MCRT du spectre de A_N ($N_{rays} = 10^6$, diamètre du faisceau incident = 10 mm) sur la reconstruction 3D de la mousse de référence (voir figure 5.10 (en rouge)) et le calcul MCRT du spectre de A_N ($N_{rays} = 10^6$, diamètre du faisceau incident = 10 mm) sur un échantillon plan (en bleu).	103
4.7	Calcul de la réflectivité moyenne d'interface $\rho_{m,path}$ le long d'un chemin optique donné.	104
4.8	Énergie absorbée (échelle de couleur arbitraire) sur la reconstruction 3D de la mousse réelle de référence (MCRT avec N _r = 3 × 10 ⁵ , <i>n</i> et <i>k</i> de l' α -SiC à 2500 cm ⁻¹). Schéma du plan de collecte permettant le calcul de $e_{abs}(z)$.	105
4.9	(a) Schéma de la zone de tir pour la méthode RDFI, (b) coupe 2D de la zone avec les trajectoires des rayons	107
4.10	Trajectoire d'un rayon jusqu'au premier impact avec la phase solide et défi- nition des angles.	108
4.11	Fonctions de distribution normalisées d'extinction F_e et d'absorption F_a pour l'échantillon de mousse de SiC de référence	110
4.12	(a) Fonctions de distribution cumulées d'extinction G_e et d'absorption G_a pour l'échantillon de mousse de SiC de référence. Les fittings réalisés via les équations 4.6 et 4.9 sont représentés en pointillés. En (b), le tracé de $log(1 - G_e(s))$, dont la linéarité permet de s'assurer que le milieu sondé est bien Beerien	111
4.13	Fonction de phase de diffusion obtenue sur la mousse de référence avec un modèle de réflexion spéculaire	110
		112
5.1	Différentes techniques de génération de mousses virtuelles : (a) Wang et Pan [2008], (b) Dyck et Straatman [2016] et (c) Zhao et Tang [2016]	119

5.2	Position des graines pour différents types d'ensemencement réalisés : (a) purement aléatoire, (b) cubique régulier, (c) tétraédrique régulier, (d) cubique perturbé, (e) tétraédrique perturbé, (f) tétraédrique avec perturbation	
	amortie.	120
5.3	(a) Carte des distances (plus un voxel est sombre, plus la distance qui le sé- pare du centre le plus proche est faible). Les cercles blancs représentent les zones d'iso-distance. (b) Carte des distances pour un ensemencement de	100
	plusieurs centres situes dans le plan.	123
5.4	cas 2D	124
5.5	Extraction du squelette : (a) segmentation de Voronoï obtenue via l'algo- rithme de watershed, (b) affectation des labels (VOID en noir, WALL en rouge, STRUT en blanc et NODE en vert), (c) représentation 3D du squelette filaire	
	des brins obtenu.	125
5.6	Identification des voxels d'un brin via l'algorithme de Bresenham	126
5.7	Brins profilés pour divers ratios d_{min}/d_{max}	127
5.8	Plan 2D issu de la carte des distances à l'interface en niveaux de gris per- mettant le contrôle de la porosité.	128
5.9	Comparaison des reconstructions 3D de la mousse de référence (a) et de la	
	mousse virtuelle (b)	130
5.10	Comparaison des CSD et des CCDD calculées pour la mousse de référence (noir) et la mousse virtuelle (rouge)	130
5.11	Évolution de la porosité "2D" le long des axes <i>x y</i> et <i>z</i> pour l'échantillon de mousse virtuelle.	131
5.12	Influence des propriétés texturales de la mousse sur les profils de porosité 2D : (a) influence de la porosité, (b) influence du PPI.	132
6.1	Jeu d'échantillons d'épaisseurs croissantes issus de la mousse numérique- ment générée ((a), $z = 740 \ \mu\text{m}$, (b), $z = 1480 \ \mu\text{m}$, (c), $z = 2220 \ \mu\text{m}$, (d), $z = 2960 \ \mu\text{m}$, (e), $z = 3700 \ \mu\text{m}$ et (f), $z = 4440 \ \mu\text{m}$). Les taches circulaires corres- pondent à l'énergie absorbée par la mousse et permettent de visualiser la	1.40
6.2	forme du spot	140
	cation de β avec la loi de Beer-Lambert avec (a) respect des conditions aux limites (T($z = 0$) = 1 et T($z \mapsto \infty$) = 0) et (b) identification non contrainte par les conditions aux limites	141
6.3	(a) Tirage aléatoire des N _v volumes cubiques au sein de l'échantillon entier (rouges : $l = 30$ voxels (725 µm), bleus : $l = 60$ voxels (1450 µm)), (b) disper- sion des valeurs de porosité associées en fonction de l et (c) décroissance	
	des écarts-types associés en fonction de <i>l</i>	143
6.4	Mousses extraites du jeu utilisé pour la détermination des VER. Les ROI re- présentées ici ont un volume de 1 cm ³ ($400 \times 400 \times 400$ voxels)	144
6.5	R_{NH} (carrés bleus), T_{NH} (triangles rouges) et A_N (cercles noirs) moyennés sur les $N_v = 30$ réalisations MCRT en fonction de l pour l'échantillon de mousse	
	b2 (23 PPI, $p = 0.67$), à T = 300 K et $\omega = 2500 \text{ cm}^{-1}$.	146
6.6	Évolutions des écarts-types sur les N_v valeurs $A_{N,l}$ de l'absorptance normale en fonction de la valeur du côté du cube l .	147

6.7	Évolutions des côtés des VER cubiques pour l'absorptance (l_{A_N}) et pour la porosité (l_p) en fonction de la porosité de l'échantillon.	148
6.8	Rapport entre l'arête du VER cubique pour l'absorptance (l_{A_N}) et l'arête du VER cubique pour la porosité (l_n) pour l'ensemble du jeu de mousses.	149
6.9	Reconstruction 3D des 8 échantillons de base pour les porosités proches de	151
6.10	Gamme de porosités obtenue pour la mousse 2 (PPI = 38). ROI de 1 cm ³ (400 × 400 × 400 voxels). La gamme de porosités va de $p = 0.94$ (a), jusqu'à $p = 0.37$ (b), par pas d'environ 0.05.	151
6.11	Évolution du diamètre nominal de cellule d_{nom} en fonction de la porosité pour l'ensemble du jeu de mousses.	154
6.12	Évolution de la surface spécifique S_s en fonction de la porosité p pour l'en- semble du jeu de mousses.	156
6.13	Évolution de l'absorptance normale A_N en fonction de la porosité p pour l'ensemble du jeu de mousses.	157
6.14	Évolution de la réflectance normale-hémisphérique R_{NH} en fonction de la porosité <i>n</i> pour l'ensemble du jeu de mousses.	157
6.15	Évolution de la transmittance normale-hémisphérique T_{NH} en fonction de la porosité <i>n</i> pour l'ensemble du jeu de mousses.	158
6.16	Évolution de l'absorptance normale A_N en fonction de la porosité p pour l'ensemble du jeu de mousses, en supposant que les échantillons sont opti-	
6.17	quement épais	159
	l'ensemble du jeu de mousses (pour les 8 couples <i>n</i> et <i>k</i> synthétiques ainsi que pour l' α -SiC à ω = 2500 cm ⁻¹ et à 300 K). De la même manière que pour la figure 6.16, on suppose que l'échantillon est optiquement épais. Les droites en pointillés représentent les régressions linéaires moyennes réali- sées avec les points en dehors de la zone où le comportement linéaire de	
6.18	$A_{N,m} = f(p)$ n'est plus respecté (représentée en rouge)	161
6.19	représentée en pointillés noirs	162
	sentée par la ligne en pointillés noirs.	163
6.20	Évolution du coefficient d'extinction en fonction de la porosité pour l'en- semble du jeu de mousses.	165
6.21	Évolution du coefficient d'extinction en fonction du diamètre moyen de cel- lule pour l'ensemble du jeu de mousses.	165
6.22	(a) Comparaison des β obtenus via la méthode RDFI (traits pleins) et via le modèle empirique proposé par Hendricks et Howell [1996] en fonction de d_{nom} (C _H = 4,8). Les étoiles numérotées 1, 2 et 3 correspondent aux β ex- périmentalement identifiés pour l'OB-SiC, respectivement pour 10 20 et 65 PPI. Les hexagones a et b correspondent aux β du PS-ZrO ₂ à 10 et 20 PPI [Hendricks et Howell, 1996]. (b) Comparaison avec le modèle dont les para-	100
	inerres ont ete ajustes en ionction de a_{nom}	166

6.23	(a) Évolution de β (carrés, traits pleins) et α (ronds, pointillés) pour l' α -SiC à $\omega = 2500 \text{ cm}^{-1}$ et à 300 K, pour l'ensemble du jeu de mousses.	168
6.24	Évolution de α (ronds noirs, pointillés), et de β (carrés noirs, trait plein) pour l' α -SiC à ω = 2500 cm ⁻¹ et à 300 K. Évolution de α pour les 8 couples <i>n</i> et <i>k</i> synthétiques (ronds de couleur pointillés). L'ensemble de ces résultats a été	
	obtenu à partir du jeu de mousses à 38 PPI.	169
6.25	(a) Albédos de diffusion calculés via RDFI pour l'ensemble du jeu de mous- ses et pour les <i>n</i> et <i>k</i> de l' α -SiC à ω = 2500 cm ⁻¹ et à 300 K, ainsi que pour les	
	8 couples synthétiques, en fonction de d_{nom} . (b) Albédos de diffusion calcu- lés via RDFI pour l'ensemble du jeu de mousses en fonction des réflectivités locales movennes of correspondentes	169
6.26	Fonctions de phase de diffusion obtenues par la méthode RDFI pour toutes	105
	les déclinaisons de porosité (de \approx 0,35 à 0,95) pour les jeux de mousses (a) 10 PPI, (b) 17 PPI, (c) 28 PPI et (d) 45 PPI	170
6.27	Fonctions de phase de diffusion obtenues par la méthode RDFI pour toutes	
	les valeurs de PPI et pour les porosités fixées suivantes : (a) $p \approx 0.94$ (échan- tillons A voir anneye C) (b) $n \approx 0.78$ (échantillons D) (c) $n \approx 0.58$ (échan-	
	tillons H) et (d) $p \approx 0.38$ (échantillons L)	171
6.28	Distribution de l'angle d'incidence pour les 1 ^{ers} , 2 ^{èmes} 3 ^{èmes} 4 ^{èmes} et 5 ^{èmes}	
	impacts pour la mousse réelle de référence, valable pour tous les couples <i>n</i>	170
6 20	et \mathcal{K}	173
0.23	et porosité variable et (b) à porosité fixe et PPI variable.	173
6.30	Loi de Snell en fonction de l'angle d'incidence (pour les n et k du SiC et ceux	
	des 8 couples synthétiques)	174
6.31	Comparaison entre les absorptances normales A_N données par le modèle	
	(equation 6.8) et les simulations MCR1 pour l'ensemble du jeu de mousses. La comparaison est faite en représentant le modèle ainsi que les points de	
	calcul en fonction de la porosité.	175
6.32	Énergie absorbée par la phase solide lors d'un calcul MCRT avec $N_r = 300000$,	
	<i>n</i> et <i>k</i> de l' α -SiC à 2500 cm ⁻¹ (échelle de couleurs arbitraire)	176
6.33	Profils de l'énergie absorbée en fonction de la profondeur $e_{abs}(z)$ obtenus sur la reconstruction 3D de la mousse de référence pour les 1 ^{ers} , 2 ^{èmes} ,	
	3 ^{cmcs} , 4 ^{cmcs} et 5 ^{cmcs} impacts, ainsi que pour l'ensemble des impacts pour : (a) les <i>n</i> et <i>k</i> de l' α -SiC à ω = 2500 cm ⁻¹ et (b) les <i>n</i> et <i>k</i> du couple synthétique	1
6 34	9 Profils de l'énergie absorbée totale pour tous les impacts en fonction de z	177
0.01	$(e_{abs,tot}(z))$ (a) pour des porosités variables et un PPI fixé, et (b) pour des PPI variables et une porosité fixée (<i>n</i> et <i>k</i> de l' α -SiC à ω = 2500 cm ⁻¹).	177
6.35	Profils de l'énergie absorbée totale pour tous les impacts en fonction de <i>z</i>	1
	$(e_{abs,tot}(z))$ (a) pour des porosités variables et un PPI fixé, et (b) pour des PPI variables et une porosité fixée (<i>n</i> et <i>k</i> du couple synthétique 9 ($\rho_m = 0.90$))	.178
6.36	Profils de l'énergie absorbée cumulée en fonction de la profondeur z ($e_{abs,c}(z)$ pour la reconstruction de la mousse de référence (pour les n et k de l' α -SiC)
	à 2500 cm ⁻¹ et ceux des couples synthétiques). Les lignes verticales en poin- tillés désignent la profondeur à laquelle 99 % de l'énergie est absorbée	179
6.37	Profils de l'énergie absorbée cumulée en fonction de la profondeur z ($e_{abs,c}(z)$ (a) pour des porosités variables et un PPI fixé, et (b) pour des PPI variables)
	et une porosité fixée (<i>n</i> et <i>k</i> de l' α -SiC à ω = 2500 cm ⁻¹)	179

6.38	Profils de l'énergie absorbée cumulée en fonction de la profondeur $z(e_{abs,c}(z))$ (a) pour des porosités variables et un PPI fixé, et (b) pour des PPI variables et une porosité fixée (<i>n</i> et <i>k</i> du couple synthétique 9 ($\rho_m = 0.90$))	80
B.1	Spectre moyen des réflectivités normale-normale mesurées sur une collec-	

1	
tion de brins extraits de la mousse de SiC (en vert).	VI

Liste des tableaux

1.1	Informations générales sur les centrales de type CSP :	16
2.1	Paramètres texturaux de la mousse de référence :	55
4.1 4.2	Comparaison entre $E_b = A_{N,b}$ théorique et le calcul MCRT de $A_{N,b}$ pour diverses réflectivités moyennes :Propriétés radiatives de la mousse de référence :	101 113
5.1 5.2	Paramètres de génération de la mousse virtuelle :	130 133
6.16.26.3	Propriétés texturales, A_N , et tailles des côtés de VER (pour A_N et p) pour l'en- semble du jeu de mousses virtuelles :	145 151
6.4	partir de l'échantillon 2 (38 PPI) :	152
6.5	lations :	153
	semble du jeu de mousses :	155
6.6	Résultat des régressions linéaires sur les droites $A_{N,m} = f(p)$:	161
6.7	Estimation des sélectivités spectrales dans le cas des mousses :	184
B.1	Valeurs des paramètres du modèle de réflectivité :	IX
C.1	Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à partir de l'échantillon 2 (45 PPI) :	XI
C.2	Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à	VII
C 3	Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à	ХП
0.0	partir de l'échantillon 2 (28 PPI) :	XII
C.4	Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à	
	partir de l'échantillon 2 (20 PPI) :	XIII
C.5	Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à	37777
CG	partir de l'échantillon 2 (17 PPI) :	XIII
0.0	partir de l'échantillon 2 (14 PPI) :	XIV
C.7	Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à	
	partir de l'échantillon 2 (12 PPI) :	XIV

C.8	Propriétés texturales pour la gamme de porosités des mousses obtenues à	
	partir de l'échantillon 2 (10 PPI) :	XV





Thèse de Doctorat

Simon GUÉVELOU

Caractérisation des propriétés thermo-radiatives de mousses à structure numériquement contrôlée : vers le design d'absorbeurs solaires

Characterization of the thermal-radiative properties of foams with numerically controlled structures: towards the design of solar absorbers

Résumé

Dans le cadre de l'ANR SEED OPTISOL, le Laboratoire de Thermocinétique de Nantes (LTN) a eu pour mission d'orienter la conception d'absorbeurs solaires innovants basés sur des mousses réfractaires poreuses. L'objectif est d'aider les élaborateurs (laboratoire CIRIMAT, société SiCAT) à mettre au point des mousses ayant des propriétés radiatives sélectives (absorbantes dans le domaine du visible, faiblement émissives dans le domaine de l'infrarouge) à partir d'objectifs énergétiques fixés par le laboratoire PROMES. Ces mousses doivent permettre d'alimenter en air chaud une turbine à gaz produisant de l'électricité. Ce sujet sur le développement d'énergie renouvelable présente un fort potentiel de développement. Durant cette thèse, le LTN s'est proposé, en collaboration avec l'IUSTI de Marseille, d'élaborer par méthodes numériques des mousses dont les microstructures sont contrôlées (porosité, surface volumique, géométrie/ dimension des pores et des brins). Nous pouvons disposer alors d'un jeu conséquent de mousses à partir duquel nous avons fait le lien entre les propriétés radiatives et les paramètres texturaux principaux via un code numérique iMorphRad, (C++, méthode de Monte-Carlo par lancer de rayon). Nous avons établi des lois robustes liant les propriétés radiatives (absorptance, coefficient d'absorption, coefficient de diffusion, fonction de phase) aux paramètres texturaux principaux. Les résultats de cette approche numérique permettent in fine de valider les modèles analytiques permettant de déterminer le rendement optimal de conversion solaire-chaleur via le choix judicieux d'une mousse à propriétés texturales maitrisées.

Mots clés : mousses céramiques, propriétés radiatives, énergie solaire, carbure de silicium, méthodes de Monte Carlo, ray tracing

Abstract

As part of the ANR SEED OPTISOL the Laboratoire de Thermocinétique de Nantes (LTN) was tasked to guide the design of innovative solar absorbers based on refractory open-cells foams. The goal is to help material science research teams (laboratory CIRIMAT, Sicat company) to develop foams having selective radiative properties (high absorptivity in the visible range, low emissivity in the infrared range) from energy requirements set by the PROMES laboratory. These foams must allow to supply hot air to a gas turbine to produce electricity. This topic on renewable energy development has great potential for development. During this thesis, the LTN has developed, in collaboration with the laboratory IUSTI at Marseille, some numerical methods for designing foams with prescribed microstructure (porosity, density surface geometry / pore size and strands). We can then have a consistent set of foams from which we made the link between the radiative properties and major textural parameters through a numerical code iMorphRad, (C++, Monte-Carlo ray tracing). We have established robust laws connecting radiative properties (absorptance, absorption coefficient, scattering coefficient, scattering phase function) to the main textural parameters. The results of this numerical approach allows ultimately the validation of analytical models to determine the optimal solar-heat conversion through a judicious choice of a foam with pertinent textural properties.

Keywords: ceramic foams, radiative properties, solar energy, silicon carbide, Monte Carlo methods, ray tracing