

UNIVERSITÉ D'ORLÉANS
ÉCOLE DOCTORALE ÉNERGIE, MATÉRIAUX,
SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'UNIVERS

CEA Le Ripault et CEMHTI UPR 3079 CNRS

THÈSE présentée par :

Cyril DAOÛT

soutenue le : 2 mars 2023

pour obtenir le grade de : Docteur de l'Université d'Orléans

Discipline/ Spécialité : Énergétique

Modélisation des propriétés radiatives spectrales de
microstructures poreuses réfractaires

THÈSE dirigée par :

M. ROCHAIS Denis
M. ROZENBAUM Olivier

Directeur de recherche, CEA Le Ripault
Maître de conférences - HDR, CEMHTI, Orléans

RAPPORTEURS :

Mme DELMAS Agnès
M. ROUSSEAU Benoît

Maître de conférences - HDR, CETHIL, Lyon
Directeur de recherche, LTEN, Nantes

JURY :

M. SEMMAR Nadjib
Mme DELMAS Agnès
M. ENGUEHARD Franck
M. PIERROT Laurent
M. ROCHAIS Denis
M. ROUSSEAU Benoît
M. ROZENBAUM Olivier

Professeur, GREMI, Orléans, Président du jury
Maître de conférences - HDR, CETHIL, Lyon
Professeur, Institut P', Poitiers
Directeur de recherche, Saint-Gobain
Directeur de recherche, CEA Le Ripault
Directeur de recherche, LTEN, Nantes
Maître de conférences - HDR, CEMHTI, Orléans

"Science is a way of life. It is a perspective. Science is the process that takes us from confusion to understanding in a manner that's precise, predictive, and reliable – a transformation, for those lucky enough to experience it, that is empowering and emotional."

Brian Greene

Remerciements

Il va sans dire que les travaux de thèse qui sont présentés par la suite n'auraient pu aboutir sans l'implication de nombreuses personnes qu'il me tient à cœur de remercier dans les paragraphes qui suivent.

En tout premier lieu, je tiens à exprimer ma gratitude à Madame **Agnès DELMAS** et Monsieur **Benoît ROUSSEAU** qui me font l'honneur de rapporter ces travaux. Merci également à Messieurs **Franck ENGUEHARD**, **Laurent PIERROT** et **Nadjib SEMMAR** pour avoir accepté de faire partie de ce jury de thèse.

J'aimerais remercier **Catherine BESSADA**, directrice du CEMHTI, pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire. Merci également à **Sabine SCHELZ** et **Anne-Laure SAUVET**, respectivement cheffes de service et de laboratoire, pour m'avoir accueilli sur le site du CEA le Ripault et pour la confiance qu'elles m'ont accordée.

Je souhaite remercier profondément mes deux directeurs de thèse, **Denis ROCHAIS** et **Olivier ROZENBAUM**. L'encadrement d'une thèse est un facteur essentiel à son bon déroulement, et sur ce point je n'aurais pas pu mieux tomber. Merci à vous de m'avoir fait confiance et de m'avoir encadré pendant ces trois années et quelques mois. Merci pour les longs et nombreux échanges techniques de qualité, c'est grâce à vous que j'ai pu avoir en main toutes les cartes pour mener à bien ce projet. Merci également pour votre constante bonne humeur et gentillesse, toutes aussi importantes que vos grandes qualités de scientifiques, et qui m'ont permis de rester motivé à chaque instant. Je vous suis très reconnaissant de tout ce que vous avez fait pour moi, ce fut un réel plaisir de travailler avec vous.

Puisque je parle d'encadrement de thèse, et même si le sien n'était qu'officieux, je ne pourrais oublier de remercier **Domingos DE SOUSA MENESES** qui a suivi mes travaux avec intérêt, et qui m'a fait part, avec beaucoup de pédagogie, de son expertise sur un spectre de disciplines extrêmement vaste. Je te dois beaucoup, notamment un générateur d'objets qui fonctionne merveilleusement bien.

Merci également à **Sylvain CHUPIN**, pour son aide à la programmation en parallèle sur *THERMIVOX* et pour tous ces scripts partagés qui correspondaient "*pile*" à mes besoins. Je n'oublie pas nos nombreuses discussions, techniques ou non, que ton enthousiasme et ta curiosité ont rendu particulièrement enrichissantes.

Cette thèse ayant été réalisée entre deux laboratoires, j'aimerais d'abord prendre le temps de remercier toutes les personnes avec qui j'ai pu travailler ou tout simplement échanger lors de ma période au CEMHTI et qui ont fait de cette étape de la thèse un moment agréable. Un grand merci en particulier à **Lionel**, pour m'avoir formé sur les "*spectros*" et pour sa très bonne humeur lors des "*manips*". Merci aux doctorants du laboratoire, et en particulier à ma traductrice officielle **Jessica**, pour les tous bons moments passés.

La suite de l'aventure, qui s'est déroulée sur le centre du CEA le Ripault, a été tout aussi agréable et je souhaiterais pour cela remercier toutes les personnes du laboratoire qui m'ont permis de m'intégrer rapidement et de travailler dans une ambiance enthousiaste et sereine. Merci en particulier à **Loïc**, mon colloc' de bureau, que ce soit pour les rires ou les discussions autour du transfert conducto-radiatif qui n'intéressent que nous. Merci beaucoup à **Charlotte**, **Chloé S.**, **Mika** et **Thomas**, pour tous les excellents moments passés "*juste entre collègues*". Si ces derniers mois de thèse se sont si bien déroulés malgré les nombreuses heures passées derrière mes écrans, c'est bien grâce à vous. Et pour ceux d'entre vous qui seront bientôt à ma place, je n'aurais qu'un conseil à vous donner : "*Autorisez-vous*".

Je conclurai ces quelques lignes en remerciant les personnes qui ont, même si elles ne s'en sont pas rendu compte, énormément contribué à l'aboutissement de ces travaux de thèse qui représentent la conclusion de nombreuses années d'études. Je pense bien sûr à **Chloé C.**, ma "*molde*" préférée, qui a su me motiver, qui a relu plusieurs rapports et qui m'a surtout toujours soutenu, quelques aient été mes projets. Merci pour tout.

Je pense finalement à **mes parents** et **mes grands-parents**, qui ont toujours été là pour moi, quelques soient les circonstances, et qui m'ont donné tous les moyens en leur possession pour que je puisse m'épanouir, dans ma vie personnelle mais aussi professionnelle en me permettant d'aller aussi loin dans les études. Merci. Je vous aime.

Table des matières

Remerciements	i
Nomenclature	v
Introduction générale	1
1 Caractéristiques et propriétés radiatives de milieux poreux semi-transparents	3
Introduction	4
1.1 Considérations morphologiques des milieux poreux	4
1.1.1 Types de milieux poreux étudiés	4
1.1.2 Étude morphologique de milieux poreux par des techniques d'imagerie	5
1.1.3 Représentation numérique de microstructures poreuses	7
1.1.4 La simulation des transferts thermiques en milieux poreux, un problème complexe	8
1.2 Introduction au rayonnement thermique	9
1.2.1 Origine de la semi-transparence du lointain infrarouge au proche ultraviolet	9
1.2.2 Le concept de corps noir	10
1.2.3 L'Équation du Transfert Radiatif (E.T.R.)	11
1.3 Propriétés radiatives spectrales des milieux multiphasiques	15
1.3.1 Cas pratique de la lame à faces parallèles	15
1.3.2 Les différents types de réflexion	16
1.3.3 Émittance d'un corps réel	18
1.3.4 Mesure des propriétés radiatives spectrales	19
1.3.5 Simulation des propriétés radiatives spectrales de milieux poreux	21
1.4 Identification des caractéristiques radiatives spectrales de milieux poreux	22
1.4.1 Caractéristiques effectives ou intrinsèques	22
1.4.2 Les méthodes d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque	23
Conclusion	25
2 Méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral de microconstituants semi-transparents	27
Introduction	28
2.1 Principe général de la méthodologie	28
2.2 Dispositifs expérimentaux de spectroscopie FTIR du CEMHTI	30
2.2.1 Mesures de réflectance et transmittance normales-hémisphériques à température ambiante	30
2.2.2 Mesure d'émittance directionnelle en température	32
2.3 Génération de milieux poreux numériques	35
2.3.1 Étude morphologique de la microstructure	35

2.3.2	Le générateur d'objets	37
2.4	Lancer de rayon par méthode de Monte Carlo	41
2.4.1	Approximation de l'optique géométrique	41
2.4.2	Fonctionnement général du code	41
2.4.3	Intersections entre un rayon et une capsule	43
2.4.4	Incertitudes numériques et temps de calcul	47
2.4.5	Influence de la découpe de l'échantillon numérique sur la simulation MCRT	49
2.5	Algorithme d'optimisation	50
2.5.1	Pre-processing	51
2.5.2	Optimisation à partir des spectres de réflectance et de transmittance à température ambiante	53
2.5.3	Optimisation à partir de spectres d'émittance en température	53
2.5.4	Critères de convergence et contraintes d'optimisation	53
2.6	Validation numérique de la méthodologie	54
2.6.1	Cas général	54
2.6.2	Sensibilité de l'indice de réfraction complexe optimisé à la microstructure numérique	60
2.6.3	Sensibilité de l'indice de réfraction complexe spectral optimisé au bruit de mesure	68
2.6.4	Sensibilité des propriétés radiatives à l'indice de réfraction complexe	70
	Conclusion	74
3	Identification de l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque de microstructures hétérogènes semi-transparentes	75
	Introduction	76
3.1	Identification de l'indice de réfraction complexe spectral de fibres micrométriques en silice	76
3.1.1	Génération d'une microstructure numérique représentative du SilPower®	76
3.1.2	Identification de l'indice de réfraction complexe spectral du SilPower® à partir d'une microstructure numérique non contrainte	82
3.1.3	Identification de l'indice de réfraction complexe spectral à partir de microstructures numériques incluant des hétérogénéités millimétriques	89
3.1.4	Conclusion de l'application de la méthodologie d'identification sur le SilPower®	95
3.2	Identification des indices de réfraction complexes spectraux d'un matériau multiphasique : le FOX imprégné	96
3.2.1	Génération d'une microstructure numérique représentative du FOX imprégné	96
3.2.2	Identification de l'indice de réfraction complexe spectral du FOX pur	100
3.2.3	Identification de l'indice d'absorption de l'aérogel	104
3.2.4	Conclusion de l'application de la méthodologie d'identification à un matériau multiphasique	110
	Conclusion	111
4	Modélisation des échanges conducto-radiatifs en milieux microporeux semi-transparentes	113
	Introduction	114
4.1	La modélisation du couplage conducto-radiatif en milieu poreux	114
4.1.1	Modélisation du transfert couplé sur des structures numériques 3D	115
4.1.2	Couplage faible ou couplage fort ?	115
4.1.3	Prise en compte de la semi-transparence dans la simulation du transfert radiatif	116
4.2	Modélisation du transfert couplé conducto-radiatif par bandes spectrales sur des structures 3D voxelisées	117
4.2.1	Convection au sein des matériaux étudiés	117
4.2.2	Caractéristiques thermophysiques et radiatives des matériaux	118

4.2.3	Démarche de résolution numérique	118
4.3	Calculs de conductivités thermiques apparentes de microstructures poreuses réfractaires	126
4.3.1	Calcul de la conductivité apparente du SilPower® à partir d'un modèle conducto-radiatif gris.	127
4.3.2	Calcul de la conductivité radiative effective du SilPower® par un modèle à bandes spectrales	129
4.3.3	Influence de la semi-transparence sur les performances d'isolation du SilPower®	131
4.4	Modélisation des échanges couplés conducto-radiatifs de milieux poreux semi-transparents en régime transitoire	133
4.4.1	L'expérience <i>ECOTHERM</i>	134
4.4.2	Simulation du champ de température du FOX imprégné en régime transitoire	138
4.4.3	Comparaison des comportements thermiques du FOX pur et du FOX imprégné	140
	Conclusion	143
	Conclusion générale	145
A	Distributions de paramètres géométriques de fibres	147
A.1	Distributions des fibres micrométriques de SilPower®	147
A.2	Distributions des fibres micrométriques de FOX	153
B	Intégration de la loi de Planck sur une bande spectrale	159
	Liste des figures	167
	Liste des tableaux	170
	Bibliographie	177

Nomenclature

Constantes

π	Nombre Pi
σ_{SB}	Constante de Stefan-Boltzmann
c	Vitesse de la lumière dans le vide
g	Accélération de la pesanteur
h	Constante de Planck
k_B	Constante de Boltzmann

Exposants

$'$	Grandeur directionnelle
$\cap$	Grandeur hémisphérique
e	Grandeur entrante
mes	Grandeur mesurée (pre-processing)
p	Phase d'un matériau multiphasique
sim	Grandeur simulée (pre-processing)
s	Grandeur sortante
$total$	Grandeur totale

Indices

σ	Grandeur spectrale
$cond$	Contribution au transfert par conduction
eff	Grandeur effective
$MCRT$	Grandeur simulée par le code de MCRT
mes	Grandeur mesurée
rad	Contribution au transfert par rayonnement
m	Grandeur associée à une bande spectrale m

Grandeurs physiques

α	Absorbance
β	Coefficient de dilatation thermique volumétrique

β_{ext}	Coefficient d'extinction
Δ	Pas de temps
δ	Taille d'un voxel
$\hat{\alpha}, \hat{\beta}, \hat{\chi}$	Angles d'Euler
$\hat{\sigma}$	Écart-type
κ_{abs}	Coefficient d'absorption
κ_{sca}	Coefficient de diffusion
λ	Longueur d'onde
$\lambda_{\times \times \times}$	Conductivité thermique
ν	Fréquence
ν_c	Viscosité cinématique
Ω	Direction de propagation du rayonnement
$\bar{\mu}$	Moyenne statistique
Φ	Fonction de phase
ϕ	Angle azimutal
ρ	Réflectance
ρ_v	Masse volumique
σ	Nombre d'onde
τ	Transmittance
θ	Angle polaire
$\tilde{n}$	Indice de réfraction complexe
ε	Émittance
φ	Flux
a	Diffusivité thermique
C_p	Capacité calorifique massique
d	Épaisseur
$d\Omega$	Angle solide
F	Facteur de forme avec absorption
F_O	Facteur de forme avec absorption opposé
F_{Vol}	Fraction volumique

F_V	Facteur de forme avec absorption voisin	R	Facteur de réflexion
h	Coefficient d'échange convectif	r	rayon géométrique
I_0	Intensité initiale d'un rayon lumineux	R_∞	Réflexion de surface
I_{finale}	Intensité finale d'un rayon lumineux	Ra	Nombre de Rayleigh
k	Indice d'absorption	s	Abscisse curviligne
L	Luminance	T	Température
l	Distance parcourue par un rayon	t	Temps
L^o	Luminance du corps noir	T_∞	Température d'écoulement
L_c	Longueur caractéristique d'écoulement	T_{env}	Température de l'environnement
M^o	Exitance du corps noir	T_{imp}	Température imposée
n	Indice de réfraction réel	T_p	Température de paroi
N_{rayons}	Nombre de rayons total dans une simulation MCRT	Tr	Facteur d'atténuation
		V	Volume

Introduction générale

Le centre d'étude du Ripault du CEA dédie une part de ses activités au développement de matériaux innovants pour des applications hautes températures comme la rentrée atmosphérique d'engins spatiaux. Des démarches "*matériaux numériques*", initiées d'une part sur le centre du CEA depuis une quinzaine d'années et, d'autre part, par le CEMHTI sur la même période, ont pour objectif l'optimisation des performances de ces nouveaux matériaux par la simulation, permettant ainsi de réaliser des économies de temps et de ressources non négligeables jusqu'à l'élaboration du matériau final.

Ces travaux de thèse s'inscrivent ainsi dans une démarche d'optimisation numérique des performances thermiques de matériaux céramiques microporeux. Ces matériaux contenant relativement peu de matière solide, les échanges thermiques par conduction sont alors limités, ce qui fait d'eux de bons isolants. Toutefois, pour les hautes températures, le rayonnement thermique devient le mode de transfert prépondérant et des modèles couplés conduction-rayonnement (ou conducto-radiatifs) sont nécessaires pour simuler correctement le comportement thermique des matériaux. Ces modèles, généralement complexes à implémenter, ne sont pertinents que si les caractéristiques thermophysiques qu'ils utilisent sont représentatives des matériaux étudiés. Or, l'identification des caractéristiques radiatives (l'indice de réfraction complexe) de milieux microporeux est loin d'être évidente. La structure désordonnée de ces derniers ainsi que les formes géométriques irrégulières des microconstituants limitent généralement le processus d'identification à des caractéristiques effectives, c'est-à-dire représentatives d'un volume spécifique et desquelles il n'est pas possible de différencier les contributions radiatives de chacune des phases en présence.

La plupart des matériaux utilisés pour l'isolation haute température sont semi-transparents, ce qui signifie que les échanges radiatifs au sein de ces milieux dépendent de la longueur d'onde du rayonnement électromagnétique mais aussi de la température. Des expériences menées sur le centre du Ripault du CEA suggèrent que cette dépendance spectrale a une influence non négligeable sur les performances d'isolation thermique des matériaux et ce sont en partie ces résultats qui ont conduit à l'élaboration de ce sujet de thèse. Il est donc nécessaire, pour une étude pertinente des isolants haute température semi-transparents, de connaître les évolutions spectrales et en température de leurs caractéristiques radiatives.

L'objectif principal de cette thèse est d'intégrer la dépendance spectrale des échanges radiatifs dans un modèle couplé conducto-radiatif déjà fonctionnel du CEA (*THERMIVOX*) dans l'optique d'affiner les prédictions des champs de températures des matériaux étudiés. Ces simulations sont réalisées sur des reconstructions 3D et voxélisées de microstructures réelles, ce qui implique alors de connaître les caractéristiques radiatives spectrales à l'échelle des microconstituants des matériaux étudiés. L'identification de telles caractéristiques n'a, à notre connaissance, pas encore été réalisée. Cela représente donc un premier verrou à lever avant de s'intéresser aux transferts thermiques en milieux semi-transparents.

Par conséquent, deux études sont présentées dans ce manuscrit. La première concerne la mise en place d'une nouvelle méthodologie permettant d'identifier l'indice de réfraction complexe spectral de microconstituants semi-transparents en fonction de la température. Cette démarche d'identification innovante, qui couple des outils numériques et expérimentaux du CEMHTI, permet d'identifier une caractéristique radiative d'intérêt à l'échelle microscopique seulement à partir de mesures macroscopiques et de contourner ainsi les difficultés expérimentales encore importantes qui existent pour réaliser des mesures de grandeurs radiatives à l'échelle micrométrique et à haute température.

La seconde étude est quant à elle dédiée à l'implémentation d'un modèle à bandes spectrales dans le code de transferts conducto-radiatifs du CEA qui permet de prendre en compte la dépendance du transfert radiatif à la fréquence du rayonnement électromagnétique. Les simulations des champs de température réalisées avec ce nouveau modèle et à partir des indices de réfraction complexes spectraux identifiés lors de la première étude, doivent alors permettre la simulation du comportement thermique de matériaux semi-transparents multiphasiques qui ne sont pas prédictibles avec des modèles conducto-radiatifs classiques (modèles gris).

Ce document est organisé en quatre chapitres. Le premier chapitre permet d'introduire, dans un premier temps, les concepts physiques essentiels à l'étude des transferts radiatifs en milieux poreux. Dans un second temps, une étude bibliographique des différentes techniques d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral est réalisée pour identifier les outils numériques et expérimentaux les plus pertinents pour la réalisation des objectifs de cette thèse.

Le deuxième chapitre présente la méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral de microconstituants semi-transparents qui a été développée lors de ces travaux. Le principe général de celle-ci ainsi que le fonctionnement de chacun des outils qui la composent sont détaillés. Une étude numérique a pour objectif, à la fin de ce chapitre, de valider la méthodologie.

Le troisième chapitre est dédié aux applications de la méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral à des matériaux poreux semi-transparents : un matériau monophasique et un matériau multiphasique. Ces deux études ont pour objectif de montrer que la méthodologie développée permet de répondre aux besoins de la thèse. Elles permettent également d'identifier certaines limites de cette démarche de travail.

Le quatrième chapitre introduit le modèle conducto-radiatif développé au CEA ainsi que les améliorations qui lui ont été apportées, à savoir l'implémentation d'un modèle à bandes spectrales en régime stationnaire et transitoire. Des exemples de simulations sur les matériaux dont l'indice de réfraction complexe a été identifié au troisième chapitre sont finalement présentés et permettent de conclure quant à la pertinence d'une étude spectrale des échanges radiatifs en milieux semi-transparents.

Chapitre 1

Caractéristiques et propriétés radiatives de milieux poreux semi-transparentes

Introduction

Ce premier chapitre a pour objectif de réaliser une étude théorique préliminaire des milieux poreux semi-transparents soumis à des hautes températures. Celui-ci va permettre d'introduire les concepts physiques essentiels à la description du transfert radiatif dans de tels milieux et de recenser les différentes techniques permettant l'identification des caractéristiques et propriétés radiatives spectrales, grandeurs d'intérêts pour la simulation des transferts thermiques et la caractérisation des milieux poreux dans leur régime de fonctionnement.

Dans ce manuscrit, les caractéristiques radiatives font référence aux propriétés intrinsèques du milieu étudié, et sont fonction, par exemple, de la composition chimique ou encore du procédé d'élaboration. Les propriétés radiatives sont, quant à elles, définies comme les propriétés permettant de rendre compte du comportement radiatif d'un volume à l'échelle macroscopique. Cette différenciation entre caractéristiques et propriétés est faite pour éviter les confusions entre les grandeurs utilisées.

La première partie de ce chapitre est consacrée à l'aspect morphologique des milieux poreux. Celle-ci permet, dans un premier temps, de présenter les échelles caractéristiques ainsi que les géométries rencontrées. Dans un second temps, les différentes techniques d'imagerie permettant l'étude de ces structures à des échelles microscopiques sont recensées, ainsi que les différentes techniques permettant la reproduction numérique des milieux étudiés.

La deuxième partie de ce chapitre a pour objectif de présenter les notions de base du rayonnement thermique et de détailler les interactions entre ce dernier et la matière. Un tour d'horizon des différentes techniques de résolution de l'équation régissant ces interactions permet ainsi d'introduire les propriétés et caractéristiques radiatives essentielles à l'évaluation des échanges radiatifs au sein des milieux poreux semi-transparents.

Les troisième et quatrième parties de ce chapitre sont consacrées au recensement des techniques (ainsi que de leur limites) permettant l'identification des propriétés et caractéristiques radiatives spectrales des milieux poreux.

En fin de chapitre, il est finalement possible de conclure quant au choix des outils expérimentaux et numériques les plus pertinents pour la mise en place d'une nouvelle méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque, caractéristique radiative d'intérêt des constituants de milieux poreux pour les calculs thermiques présentés au Chapitre 4.

1.1 Considérations morphologiques des milieux poreux

Avant de discuter du comportement thermique des milieux poreux et des caractéristiques qui leur sont associées, il est nécessaire de les étudier d'un point de vue morphologique. En effet, c'est cet agencement bien spécifique entre les différentes phases, solides et fluides, qui va nous permettre d'expliquer en partie les bonnes performances énergétiques de ce type de milieux.

1.1.1 Types de milieux poreux étudiés

Un milieu poreux ouvert peut simplement être défini comme une matrice solide avec des espaces de vide interconnectés. Ces espaces vides, les pores, sont généralement remplis par une phase fluide, le plus souvent de l'air. La matrice peut être continue, comme c'est le cas des mousses (AUGUST & NESTLER, 2020) ou certaines structures réalisées par fabrication additive (KUSCHMITZ et al., 2021)(HEISEL, 2019). Elle peut également être composée d'un assemblage de constituants comme

des grains (FU et al., 2016) ou des fibres (S. WANG et al., 2020). Dans certains cas, le milieu peut être composé de plusieurs phases solides, par exemple une matrice fibreuse dans laquelle viennent s'agréger des opacifiants, assimilables à des particules sphériques.

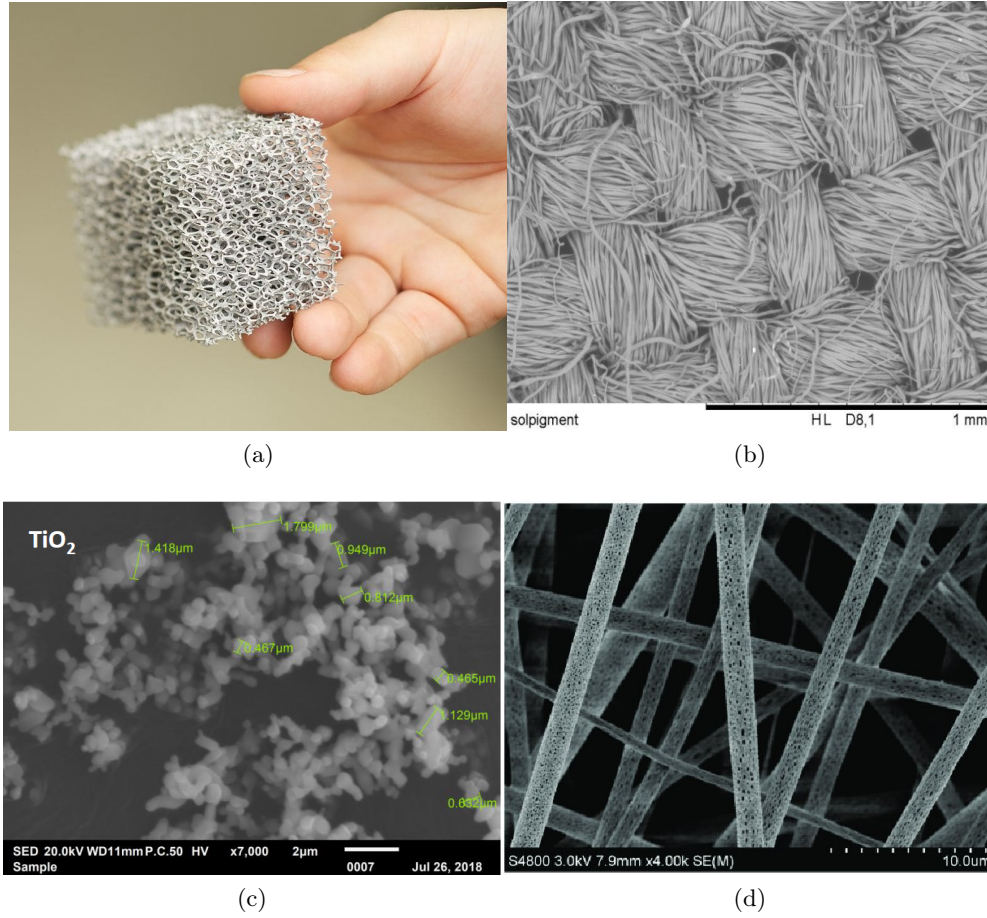


FIGURE 1.1 – Milieux poreux à différentes échelles : (a) Photographie d'une mousse métallique, (b) image par microscopie à balayage (MEB) d'un échantillon de coton (RASHID et al., 2019), (c) image MEB d'opacifiants micrométriques et (d) image MEB de fibres nano-poreuses (TIAN et al., 2018).

La Figure 1.1 présente quelques exemples de ces milieux poreux. Différentes échelles spatiales peuvent ainsi être rencontrées. En effet, les pores ou les constituants peuvent mesurer de quelques millimètres (Fig. 1.1a) à seulement quelques microns (Fig. 1.1c) voire quelques nanomètres (Fig. 1.1d). Ce faisant, des comportements physiques bien différents peuvent être observés, en particulier au niveau de la phase fluide dont la capacité à se mouvoir est alors plus ou moins limitée. C'est pourquoi il est nécessaire de connaître l'agencement spatial des milieux étudiés pour prévoir au mieux leur comportement (thermique, mécanique...). Et lorsque les échelles caractéristiques des milieux sont très petites (typiquement quelques microns), ces observations peuvent être réalisées par des techniques d'imagerie associées à une reconstruction numérique par ordinateur.

1.1.2 Étude morphologique de milieux poreux par des techniques d'imagerie

L'imagerie est un outil puissant qui permet, de nos jours, d'obtenir des informations qualitatives voire quantitatives et potentiellement en plusieurs dimensions sur des objets ne mesurant pas plus de quelques microns. Dans cette section sont présentées, de façon non exhaustive, quelques-unes des techniques récurrentes utilisées pour l'étude du squelette solide des milieux poreux.

Lorsque l'on parle d'imagerie, on pense évidemment à la microscopie. Celle-ci peut être optique, à sonde locale ou encore électronique. Parmi les microscopes optiques, on retrouve notamment le microscope confocal à balayage laser. Comparé aux autres microscopes de cette catégorie, celui-ci permet de réaliser des coupes en profondeur dans un volume et de reconstruire la microstructure 3D par traitement informatique (SHAH et al., 2017). Des résolutions d'environ 600 nm peuvent être atteintes dans l'épaisseur de l'échantillon observé (qui doit être transparent).

Le fonctionnement des microscopes électroniques est similaire à celui des microscopes optiques à ceci près que la source de rayonnement est un faisceau d'électrons plutôt qu'un faisceau de photons (lumière visible), ce qui permet d'atteindre un grossissement et une résolution beaucoup plus importants. Parmi les dispositifs de microscopie électronique, on retrouve notamment la microscopie électronique à balayage (MEB), qui permet d'obtenir des images avec une bonne résolution et surtout une grande profondeur de champ. Ainsi, il est quand même possible d'obtenir des informations qualitatives sur la structure en 3D d'un milieu malgré l'acquisition d'images 2D (e. g. Fig. 1.1d). Ces microscopes peuvent également être couplés avec des dispositifs de spectroscopie (type sonde EDS de l'anglais *Energy Dispersive Spectroscopy*) pour réaliser des études qualitatives de la composition chimique aux échelles observées par le microscope. Un des inconvénients de la microscopie électronique est le potentiel besoin de préparer les échantillons pour que ceux-ci interagissent avec les électrons. Donc, même si la technique n'est pas destructive en elle-même, certains échantillons ne peuvent pas être récupérés par la suite. Certains MEB sont également couplés à une sonde à ions focalisée. Cette sonde bombarde l'échantillon avec des ions qui arrache alors les atomes en surface. En réalisant des découpes successives et des images MEB, il est alors possible de reconstruire la microstructure 3D de l'échantillon.

Le troisième type de microscopie est la microscopie à sonde locale. Celle-ci permet de cartographier la surface d'un échantillon et d'atteindre des grossissements de la taille d'un atome. Il n'est cependant pas possible de réaliser une étude 3D dans le volume avec cette technique (PAREDES et al., 2002).

La microtomographie par rayons X est une technique non destructive d'imagerie permettant une reconstruction numérique en 3D d'un volume étudié (voir Fig. 1.2). Un échantillon, placé sur une platine rotative, est illuminé par une source de rayons X. Les rayons se propagent au travers de l'échantillon et leurs intensités sont plus ou moins atténuées en fonction de leurs trajectoires et interactions dans les différentes phases du matériau. Ces rayons atteignent ensuite un photo-détecteur, ce qui permet d'obtenir une projection 2D (une carte d'intensité) de l'échantillon pour une position angulaire donnée de la platine rotative. Pour chaque rotation de cette dernière, une nouvelle projection est obtenue. Un traitement de ces projections par des algorithmes de reconstruction permet finalement de reproduire numériquement le volume de l'échantillon étudié sous la forme d'une série de coupes sur lesquelles on observe la configuration microstructurale en tout point du volume. L'étape de reconstruction de volume est cruciale pour une étude par microtomographie car de nombreuses difficultés peuvent être rencontrées et générer des erreurs de représentation importantes, comme la présence d'artefacts (informations présentes sur les images qui n'existent pas en réalité) ou la difficulté à différencier (segmenter) correctement les phases du matériau.

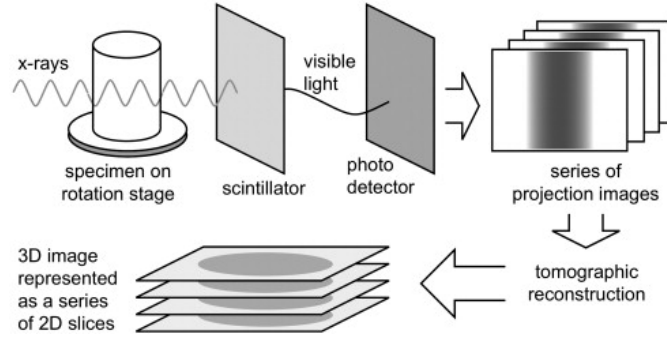


FIGURE 1.2 – Principe de mesures par microtomographie à rayons X (LANDIS & KEANE, 2010).

Il existe plusieurs types de microtomographes, permettant d’atteindre des résolutions plus ou moins grandes. En laboratoire, on retrouve typiquement des appareils pouvant atteindre quelques microns de résolution. Pour obtenir des résolutions plus grandes, on utilise d’autres sources de rayonnement X, plus énergétiques, comme le rayonnement synchrotron généré dans des accélérateurs de particules. Une présentation plus complète de la technique peut être trouvée ici (LANDIS & KEANE, 2010).

Un panel de dispositifs suffisamment important est donc disponible pour pouvoir caractériser en détail la morphologie des matériaux étudiés. Les informations (volumiques ou surfaciques) qu’il est possible d’extraire sont essentielles pour la simulation, car c’est à partir de celles-ci que l’on va pouvoir réaliser des hypothèses et construire des modèles physiques adaptés aux études.

1.1.3 Représentation numérique de microstructures poreuses

Avec le développement croissant des moyens informatiques, de nombreux codes de simulation (CFD, transferts thermiques, mécanique) ont vu le jour pour essayer de prédire les comportements des matériaux. Les techniques d’imagerie comme la microtomographie présentées ci-dessus sont alors très intéressantes, puisque qu’elles permettent de réaliser des répliques numériques fidèles de microstructures réelles en 3D et d’effectuer les simulations sur celles-ci directement, plutôt que sur un milieu approché (e. g. (KHAJEH & MAIJER, 2010)(JAYAKUMAR & A, 2021)).

Cette façon de procéder est cependant limitée par la taille des constituants du milieu et du besoin en résolution. Plus les constituants vont être petits, plus la résolution devra être grande pour pouvoir les identifier correctement, et moins le volume de matériau observé sera important car la taille des détecteurs reste limitée. Pour pallier cette difficulté, les microstructures réelles sont parfois remplacées par des milieux numériques statistiquement équivalents à ceux observés par imagerie. Cette démarche permet alors de générer des volumes beaucoup plus importants, avec des dimensions satisfaisantes pour des simulations prédictives (e. g. un échantillon de plusieurs millimètres d’épaisseur avec des constituants micrométriques). Cette démarche a été validée par plusieurs applications, comme les milieux fibreux générés par Dauvois *et al.* (DAUVOIS *et al.*, 2016) ou lors de l’étude de verres de silice contenant des bulles d’air par Rozenbaum *et al.* (ROZENBAUM *et al.*, 2019).

Cependant, que la simulation soit réalisée sur une réplique numérique ou un échantillon statistiquement équivalent, il est toujours nécessaire de se poser la question de la représentativité du volume étudié. En d’autres termes, on doit se demander si le volume reproduit numériquement rend suffisamment compte de l’organisation spatiale moyenne du milieu. Lors de l’étude de milieux poreux, il est donc nécessaire de rechercher un volume élémentaire représentatif (V.E.R.), qui correspond au volume minimal sur lequel les résultats d’une mesure ou d’une simulation seront équivalents aux

résultats que l'on pourrait obtenir sur un volume beaucoup plus important du même matériau. Il sera montré par la suite que pour des matériaux très hétérogènes, l'identification de ce V.E.R. peut être complexe et limitante pour caractériser des milieux.

1.1.4 La simulation des transferts thermiques en milieux poreux, un problème complexe

Évaluer les échanges thermiques au sein de milieux poreux, notamment lorsque ceux-ci sont fortement hétérogènes, est tout sauf trivial. En effet, au sein d'une géométrie déjà très complexe combinant phases fluide et solides (aléatoires), plusieurs des trois modes de transferts thermiques (conduction, convection, rayonnement) peuvent intervenir en même temps voire être fortement couplés (BOUALLOU & SACADURA, 1991), (DEGHAN et al., 2015), (VIGNOLES et al., 2021).

La composition chimique des différentes phases du matériau peut augmenter elle aussi la complexité du calcul des transferts thermiques, car si les échanges par conduction se déroulent en phase solide et ceux par convection au sein de la phase fluide, les transferts par rayonnement peuvent intervenir dans les deux phases à la fois. Des difficultés de calcul supplémentaires, comme l'anisotropie de certaines propriétés thermiques peuvent parfois s'ajouter (ZEGHONDY et al., 2006). C'est pourquoi, dans de nombreux cas d'étude, l'évaluation des transferts thermiques au sein de tels milieux n'est possible qu'en réalisant des hypothèses simplificatrices, adaptées à la nature du problème étudié. L'environnement et le régime de fonctionnement (gammes de température, de pression) des matériaux sont des paramètres primordiaux dans le choix de ces hypothèses.

Dans ce manuscrit, des matériaux composés de fibres céramiques micrométriques semi-transparentes et destinés à des applications hautes températures (environ 1000 °C) sont étudiés. La phase poreuse de ces matériaux est composée d'air. Celle-ci peut-être vue comme un ensemble de pores interconnectés de dimension caractéristique inférieure à 100 µm. Dans ces conditions, l'air a peu de place pour se mouvoir dans les pores micrométriques et son déplacement n'en est que plus limité par sa viscosité qui augmente avec la température (KADOYA et al., 1985). On suppose alors que les échanges thermiques par convection au sein du milieu (on ne parle pas ici des conditions aux limites) sont très faibles et qu'ils peuvent être négligés dans les calculs. La validité de cette hypothèse est vérifiée plus loin (§4.2.1) grâce au nombre de Rayleigh (RAYLEIGH, 1916).

D'autre part, pour des températures élevées, comme c'est le cas ici, les échanges radiatifs deviennent majoritaires par rapport aux échanges conductifs dans les milieux poreux. Une modélisation qui décrit convenablement les échanges thermiques passe donc par une modélisation efficace des échanges radiatifs avec, dans le cas présent, la prise en compte de la nature semi-transparente des milieux étudiés (§1.2.1) et de la dépendance des transferts radiatifs à la fréquence du rayonnement électromagnétique.

Dans le cadre de notre étude, une évaluation pertinente des transferts thermiques au sein des milieux étudiés revient donc à réaliser des calculs où conduction et rayonnement sont couplés et dans lesquels les échanges radiatifs (et donc les caractéristiques radiatives associées) sont fonction de la fréquence du rayonnement et de la température. La section suivante permet justement d'introduire le mode de transfert de chaleur qu'est le rayonnement thermique. Une discussion autour de la conduction est quant à elle développée dans le quatrième chapitre de ce manuscrit.

1.2 Introduction au rayonnement thermique

Le rayonnement thermique est l'un des trois modes de transfert de chaleur. Tout corps dont la température est supérieure au zéro absolu émet de l'énergie par ce biais. À la différence des deux autres modes (la conduction et la convection), le rayonnement peut également se propager dans le vide. Sa propagation est alors seulement conditionnée par la transparence du milieu traversé.

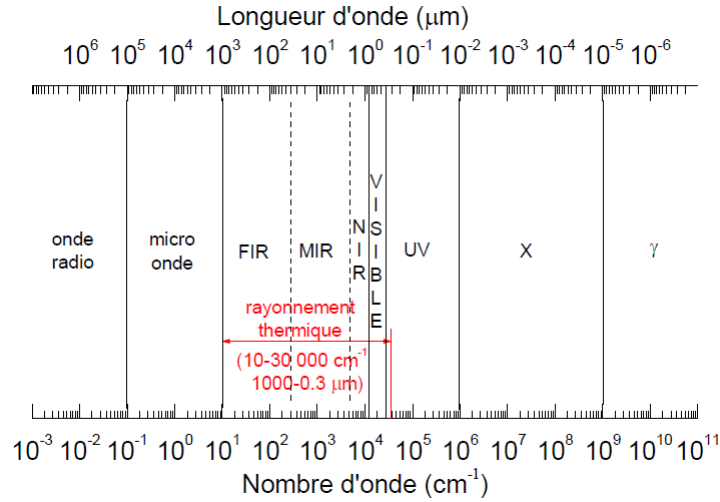


FIGURE 1.3 – Gamme spectrale du rayonnement thermique sur le spectre électromagnétique (BRUN, 2003). FIR correspond au lointain, MIR au moyen et NIR au proche infrarouge.

Comme la lumière visible ou les micro-ondes, le rayonnement thermique s'étend sur une gamme de fréquence qui lui est propre, à savoir du lointain infrarouge au proche ultraviolet (Fig. 1.3). Dans ce document, l'étude du comportement des matériaux vis-à-vis du rayonnement électromagnétique se limitera ainsi à ce domaine de nombres d'onde.

1.2.1 Origine de la semi-transparence du lointain infrarouge au proche ultraviolet

Comme cela a été évoqué dans la section §1.1.4, de nombreux matériaux utilisés pour les applications hautes températures sont semi-transparents. En d'autres termes, cela signifie que le rayonnement peut être en partie absorbé, transmis ou réfléchi par le milieu. Certains matériaux, et tout particulièrement ceux étudiés dans ce manuscrit, ont également un comportement évolutif vis-à-vis du rayonnement électromagnétique en fonction de la longueur d'onde de ce dernier et de la température. Ce comportement est dû aux différentes interactions qu'il peut y avoir entre rayonnement et matière sur des gammes de fréquences bien précises. Les mécanismes physiques pouvant intervenir sur la réponse optique d'un matériau sont multiples. L'objectif n'est pas d'en faire une liste exhaustive, mais de citer les principaux mécanismes ayant une influence sur le comportement radiatif des matériaux dans la gamme de l'infrarouge au proche ultraviolet.

Une première contribution au comportement radiatif est l'absorption électronique. Dans ce cas, la réponse des matériaux vis à vis du rayonnement varie logiquement en fonction de leur nature. Ainsi, la réponse des matériaux conducteurs dans l'infrarouge est majoritairement due à l'oscillation collective des électrons, que l'on nomme plasmon, alors que la réponse des semi-conducteurs est pilotée par le nombre de porteurs de charges libres (électrons, trous) (ECKES, 2012). Pour certains matériaux, e. g. les oxydes noirs, la densité de défauts de charge (polarons) peut-être suffisante pour provoquer une absorption électronique importante sur une large gamme spectrale (ROUSSEAU, 2001).

La dynamique vibrationnelle des molécules est une autre source d'absorption du rayonnement (BRUN, 2003). L'absorption est alors due à un moment dipolaire oscillant provoqué par les modes propres de vibration d'une molécule ou d'un ion moléculaire. Les modes propres de vibration des réseaux cristallins contribuent également à l'absorption dans l'infrarouge. Les bandes d'absorption sont d'ailleurs centrées autour des fréquences de résonance du réseau, et dans le cas de milieux désordonnés, celles-ci ont tendance à s'élargir.

Dans le cas des matériaux diélectriques, comme ceux étudiés par la suite, les mécanismes d'absorption de premier ordre se limitent aux transitions électroniques et aux contributions de la dynamique vibrationnelle. En revanche, des mécanismes d'ordres supérieurs induits par l'anharmonicité du réseau, (les processus multi-phonons (ECKES, 2012)) contribuent également au comportement radiatif des milieux.

Les contributions à l'absorption du rayonnement sont donc multiples et agissent sur des gammes spectrales spécifiques. Dans les sections suivantes, on montrera qu'en fonction de la température et de la composition chimique du matériau, ces gammes spectrales pourront être plus ou moins en adéquation avec la gamme spectrale où le transfert radiatif se déroule et influencer ainsi fortement sur les échanges thermiques au sein du matériau.

1.2.2 Le concept de corps noir

La théorie des transferts radiatifs amène également à aborder un concept physique indispensable : le corps noir. Ce concept sert de référence et va nous permettre de quantifier par la suite le rayonnement de corps réels. Il a été introduit en 1862 par G. Kirchhoff puis formalisé par M. Planck en 1900. Le corps noir absorbe tout le rayonnement électromagnétique qu'il reçoit, qu'importe la fréquence ou la direction d'incidence : c'est l'absorbeur parfait. C'est également un émetteur parfait, car la totalité du rayonnement qu'il absorbe à une fréquence donnée est réémise de façon isotrope dans l'hémisphère le surplombant.

Le flux rayonné par un corps noir se calcule analytiquement par la loi de Planck (Eq. 1.1), exprimée ici en fonction du nombre d'onde σ qui est l'inverse de la longueur d'onde λ . Il est choisi de travailler avec cette grandeur car celle-ci est fréquemment utilisée en spectroscopie infrarouge, technique amplement utilisée par la suite.

$$L^o(\sigma, T) = \frac{2hc^2\sigma^3}{e^{\frac{C\sigma}{T}} - 1} \quad (1.1)$$

- T est la température du corps noir,
- h est la constante de Planck égale à $6,626.10^{-34}$ J.s,
- c est la vitesse de la lumière dans le vide égale à $2,998.10^8$ m.s⁻¹,
- $C = \frac{hc}{k_B}$ avec k_B la constante de Boltzmann égale à $1,381.10^{-23}$ J.K⁻¹.

En intégrant cette expression sur toute la gamme spectrale, on obtient la loi de Stefan-Boltzmann représentant la puissance totale surfacique émise par un corps noir, autrement appelée exitance ou pouvoir émissif et exprimée en W.m⁻².

$$M^o(T) = \pi L^o = \sigma_{SB} T^4 \quad (1.2)$$

σ_{SB} est la constante de Stefan-Boltzmann égale à $5,67 \times 10^{-8}$ W.m⁻².K⁻⁴.

La Figure 1.4a, présente l'évolution de la luminance spectrale du corps noir en fonction du nombre d'onde pour différentes températures. Plus la température augmente, plus la quantité d'énergie rayonnée est importante. Il est intéressant de noter que chacune de ces luminances passe par un

maximum et que ce dernier se décale vers les grands nombres d'ondes (ou petites longueurs d'ondes) plus la température augmente (Fig. 1.4b). Le nombre d'onde de ce maximum σ_{max} se calcule à l'aide de la loi de déplacement de Wien (en $\text{cm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$) :

$$\frac{\sigma_{max}}{T} = 1,9609 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1} \quad (1.3)$$

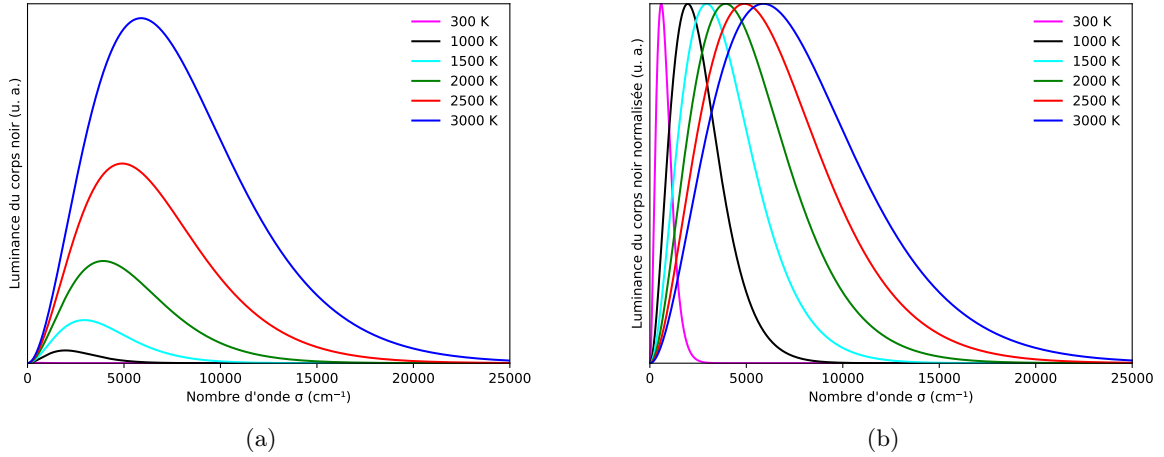


FIGURE 1.4 – (a) Luminance spectrale et (b) luminance spectrale normalisée du corps noir à différentes températures.

Le comportement du corps noir varie donc sensiblement en fonction de la fréquence du rayonnement et de la température étudiées.

1.2.3 L'Équation du Transfert Radiatif (E.T.R.)

Les transferts de chaleur par rayonnement sont régis par l'Équation du Transfert Radiatif (E.T.R.). Cette équation décrit la variation de luminance spectrale directionnelle $L_\sigma(s, \Omega)$ en un point s pour une direction donnée Ω . La luminance est une grandeur photométrique, exprimée en $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1}$ qui représente la puissance rayonnée dans un angle solide. Ce dernier correspond à la portion de l'espace comprise dans un cône dont la surface au sommet se trouve sur une sphère de rayon R (Fig. 1.5).

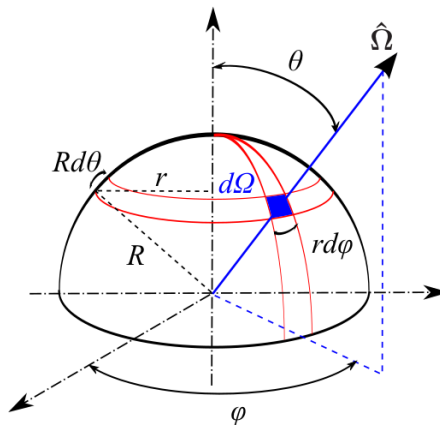


FIGURE 1.5 – Angle solide $d\Omega$ défini par ses coordonnées sphériques.

Cet angle solide peut également être perçu comme une variation de la direction angulaire de propagation du rayonnement $d\Omega$ dans l'espace. En coordonnées sphériques, l'angle solide est fonction de deux composantes : l'angle polaire θ et l'angle azimutal φ . Il est alors égal à :

$$d\Omega = \sin\theta d\theta d\varphi \quad (1.4)$$

Dans le cadre d'un milieu beerien, (i. e. lorsque l'énergie est atténuée de façon exponentielle en traversant le milieu), non gris (dépendant de la fréquence), absorbant, diffusant et émettant, l'E.T.R. peut s'écrire (HOWELL et al., 2021) :

$$\frac{dL_\sigma(s, \Omega)}{ds} = -(\kappa_{abs, \sigma} + \kappa_{sca, \sigma})L_\sigma(s, \Omega) + \frac{\kappa_{sca, \sigma}}{4\pi} \int_{(4\pi)} L_\sigma(s, \Omega) \Phi_\sigma(\Omega', \Omega) d\Omega' + \kappa_{abs, \sigma} n_\sigma^2 L_\sigma^o[T(s)] \quad (1.5)$$

- $\kappa_{abs, \sigma}$ est le coefficient d'absorption, en m^{-1}
- $\kappa_{sca, \sigma}$ est le coefficient de diffusion, en m^{-1}
- $\Phi_\sigma(\Omega', \Omega)$ est la fonction de phase, c'est à dire la probabilité que le rayonnement provenant de la direction Ω' et confiné dans $d\Omega$ soit diffusé dans la direction Ω ,
- n_σ est l'indice de réfraction réel,
- $L_\sigma^o[T(s)]$ est la loi de Planck (voir Eq. 1.1) calculée à la température T au point s .

La dépendance spectrale des grandeurs introduites ici est marquée par le nombre d'onde σ . On rappelle que $\sigma = \nu/c$, avec ν la fréquence du rayonnement en Hertz et c la vitesse de la lumière dans le vide en $m.s^{-1}$. D'un point de vue physique, la variation de luminance est donc due à une extinction par absorption et diffusion et à un gain par émission propre et diffusion du rayonnement provenant des autres directions.

La résolution de l'E.T.R. se révèle complexe du fait des dépendances spatiales et angulaires et une solution analytique directe est difficilement atteignable. De nombreuses techniques numériques ont donc été développées pour s'approcher de la solution exacte et les plus usuelles d'entre elles sont présentées ci-après.

1.2.3.1 Méthodes de résolutions déterministes de l'E.T.R.

La résolution de l'E.T.R. par des méthodes discrètes oblige de réaliser deux discrétisations : une pour le domaine spatial et une pour le domaine angulaire. La résolution se fait donc en combinant à minima deux techniques numériques. Bien que l'on ait tendance à classer ces techniques en deux catégories bien distinctes, celles pour le domaine spatial et celles pour le domaine angulaire, il sera montré que certaines d'entre elles peuvent être applicables sur les deux domaines, aussi on s'efforcera à préciser les domaines d'applications possibles. D'autre part, une des difficultés de la résolution de l'E.T.R. dans le domaine angulaire repose sur l'expression de la fonction de phase Φ_σ qu'il peut être difficile de définir. En effet, selon les milieux, les schémas de diffusion (e. g. isotropie ou préférence directionnelle) peuvent être très variés. Le choix de la méthode de résolution va donc dépendre du comportement diffusif du matériau étudié et/ou des hypothèses qu'il est possible de faire à ce sujet.

La méthode des différences finies est un schéma de résolution dit "différentiel". Les dérivées de l'équation sont alors définies comme étant la différence entre les valeurs d'une même fonction évaluée en deux points suffisamment proches. Cette méthode est relativement simple à implémenter mais est très peu adaptée aux géométries complexes sur lesquelles le maillage du domaine s'avèrera compliqué. Elle est essentiellement utilisée pour la discrétisation spatiale et a été choisie, par exemple, par Niezgoda *et al.* (NIEZGODA et al., 2012) pour évaluer les transferts radiatifs au sein de microstructures 3D voxélisées (voir Chapitre 4, §4.2).

Les méthodes des éléments finis (MEF) et des volumes finis (MVF) suivent des schémas de résolution dit "intégraux". Le domaine est donc discrétisé en éléments (ou volumes de contrôles pour la MVF) dans lesquels l'équation différentielle est approchée par une forme intégrale. Ces deux méthodes ont l'avantage d'être applicables à des géométries complexes. La convergence de la MEF est cependant plus difficile lorsque l'équation différentielle n'est pas linéaire et la MVF, plus polyvalente lui sera préférée. Ces deux méthodes peuvent être utilisées pour discrétiser le domaine spatial mais aussi angulaire. Favennec *et al.* (FAVENNEC et al., 2019) ou encore Castro et Trelles (CASTRO & TRELLES, 2015) réalisent ainsi la discrétisation des deux domaines de leur E.T.R. par deux MEFs.

Le modèle à deux flux, qui a été introduit indépendamment par Schuster (SCHUSTER, 1905) puis Schwarzschild (SCHWARZSCHILD, 1906) permet de séparer la direction de propagation de la luminance en deux hémisphères : une vers l'avant et l'autre vers l'arrière du point étudié. Ce modèle implique alors l'isotropie des luminances dans chaque hémisphère. Niezgoda *et al.* (NIEZGODA et al., 2012), puis par la suite Heisel (HEISEL, 2019), utilisent cette méthode pour évaluer les luminances des 6 faces de chacun des voxels qui composent les microstructures qu'ils étudient. Des améliorations de ce modèle à deux flux ont été proposées, par exemple par Wang *et al.* (L. WANG et al., 2014) ou Brucato *et al.* (BRUCATO et al., 2006) qui ont établi respectivement des modèles à quatre et six flux. Ces nouveaux modèles sont très intéressants car ils permettent, de façon relativement simple, d'approcher une solution de l'E.T.R. suffisamment précise pour des milieux très diffusants.

La méthode des harmoniques sphériques (ou méthode P_N) revient à écrire l'E.T.R. en une combinaison de plusieurs équations aux dérivées partielles. L'espace angulaire est alors divisé en N termes à partir d'harmoniques sphériques. La méthode P_1 (donc tronquée au premier terme) est la plus utilisée car elle permet d'obtenir, pour des matériaux opaques ou à diffusion isotrope, des résultats convenables pour des temps de calculs rapides. Plus le nombre de termes N est important, plus la solution approchée de l'E.T.R. est précise, comme le montrent Ge *et al.* (GE et al., 2015) qui ont développé leur système jusqu'à P_7 . Cependant, ces méthodes d'ordres supérieurs sont rarement utilisées car très complexes à résoudre d'un point de vue mathématique.

Avec la méthode des ordonnées discrètes (ou méthode S_N) (FIVELAND, 1987)(MORENO et al., 2019), l'espace angulaire est discrétisé en N directions et l'E.T.R. devient alors un système à N équations, une pour chaque direction de propagation. Cette technique est pertinente pour calculer les échanges radiatifs dans des milieux diffusants anisotropes car un poids peut être associé à chacune des directions de propagation.

De nombreuses combinaisons des méthodes listées ci-dessus ont été testées et ont permis d'approcher des solutions suffisamment précises de l'E.T.R. (RAITHBY & CHUI, 1990), notamment en 3D (LE HARDY et al., 2017). Plus les maillages sont fins, plus les solutions approchées par ces méthodes de résolution sont précises. En revanche, sur des géométries complexes comme celles des milieux poreux, les calculs peuvent devenir rapidement coûteux en mémoire vive car il est nécessaire de discrétiser des volumes suffisamment importants pour que ceux-ci soient considérés comme représentatifs (§1.1.3). C'est pourquoi d'autres méthodes, comme le lancer de rayons présenté ci-après, sont utilisées pour limiter ces besoins en mémoire vive.

1.2.3.2 Une méthode de résolution stochastique de l'E.T.R. : le lancer de rayons Monte Carlo

Le lancer de rayons par la méthode de Monte Carlo (ou MCRT, de l'anglais *Monte Carlo Ray Tracing*) est une technique numérique stochastique très répandue dans la communauté des transferts radiatifs car elle permet justement d'évaluer les échanges radiatifs sans avoir à résoudre l'E.T.R. de façon directe.

Bien qu'il existe quelques variantes d'implémentation, le principe de fonctionnement est généralement le suivant : une quantité importante de rayons est générée à une fréquence (ou nombre d'onde) donnée et ceux-ci se propagent alors en ligne droite dans un échantillon numérique. Cet échantillon peut-être une réplique d'un échantillon réel (JAYAKUMAR & A, 2021) ou alors une représentation statistique (ROZENBAUM et al., 2019).

À chaque fois qu'un rayon rencontre une interface (donc un milieu avec un indice de réfraction différent), un test est effectué pour déterminer sa nouvelle direction. La course d'un rayon se termine lorsque celui-ci sort de l'échantillon ou est absorbé par le milieu. Sa dernière position ainsi que son intensité sont alors sauvegardées, ce qui permet de remonter ensuite au flux radiatif se propageant dans le milieu. La technique MCRT se base sur l'hypothèse de l'optique géométrique, solution particulière de la théorie de Mie (MISHCHENKO, 2009). Celle-ci n'est valable que si les particules du milieu sont grandes devant la longueur d'onde du rayonnement. Les interactions électromagnétiques que sont la diffraction et les interférences peuvent alors être négligées.

Cette technique est très avantageuse car elle ne nécessite pas forcément de mailler la structure étudiée et simplifie parfois les études sur les géométries complexes que sont les milieux poreux, comme des mousses (VIGNOLES, 2016), des milieux contenant des bulles ou des particules sphériques (YANG et al., 1983)(RANDRIANALISOA & BAILLIS, 2010) ou encore des milieux fibreux (ARAMBAKAM et al., 2012), (DAUVOIS et al., 2016), (RANDRIANALISOA et al., 2017). En revanche, pour limiter les incertitudes de calcul, il est nécessaire de lancer une quantité de rayons importante et les temps de calculs deviennent rapidement déraisonnables en travaillant avec des V.E.R. de grandes dimensions, même pour des codes parallélisés fonctionnant sur des clusters de calcul à haute performance. En fonction des besoins, e. g. lorsqu'il est nécessaire de connaître la propagation des rayons/quanta à seulement certaines positions, certains auteurs utilisent alors la méthode de Monte Carlo Inverse. Cette méthode, basée sur le principe de réciprocité (CASE, 1957), (LE FOLL et al., 2017), consiste à suivre les quanta d'énergie à partir de leur position finale et de remonter jusqu'à la position de leur émission, ce qui permet de gagner en temps de calcul.

1.2.3.3 Quelles données pour la résolution de l'E.T.R. ?

Les méthodes de résolution de l'E.T.R. sont multiples et le couplage de plusieurs d'entre elles permet de gérer de nombreux cas d'études, plus ou moins complexes. Cependant, quelles que soient les méthodes employées, il est nécessaire d'alimenter les algorithmes avec des caractéristiques (n_σ , $\kappa_{abs,\sigma}$, $\kappa_{sca,\sigma}$) ou propriétés radiatives (e. g. l'émittance spectrale ε pour (VIGNOLES, 2016), voir section §1.3) qui soient représentatives des milieux étudiés. Or, ce n'est pas toujours le cas, car ces données sont souvent extraites de la littérature, et appartiennent à des matériaux dont la rugosité de surface, le procédé d'élaboration ou même la concentration en impuretés diffèrent du matériau à caractériser. Il est alors nécessaire d'identifier les caractéristiques ou propriétés propres au matériau en question. La suite de ce chapitre se consacre donc à définir ces grandeurs radiatives d'intérêt et à recenser les différentes techniques d'identification de celles-ci pour pouvoir résoudre l'E.T.R. et ainsi évaluer les échanges radiatifs au sein de milieux poreux semi-transparents.

1.3 Propriétés radiatives spectrales des milieux multiphasiques

Cette section a pour objectif de définir trois propriétés radiatives spectrales macroscopiques d'intérêt, représentatives d'un volume, et qui vont permettre, dans la suite de ces travaux, de remonter à des caractéristiques radiatives à l'échelle microscopique.

1.3.1 Cas pratique de la lame à faces parallèles

Les propriétés radiatives qui nous intéressent pour l'étude des milieux hétérogènes peuvent être définies par l'étude d'un cas pratique simple : la réalisation du bilan énergétique d'une lame homogène à faces parallèles (en 2D), d'épaisseur d , soumise à un rayonnement électromagnétique d'incidence normale ($\theta = 0$).

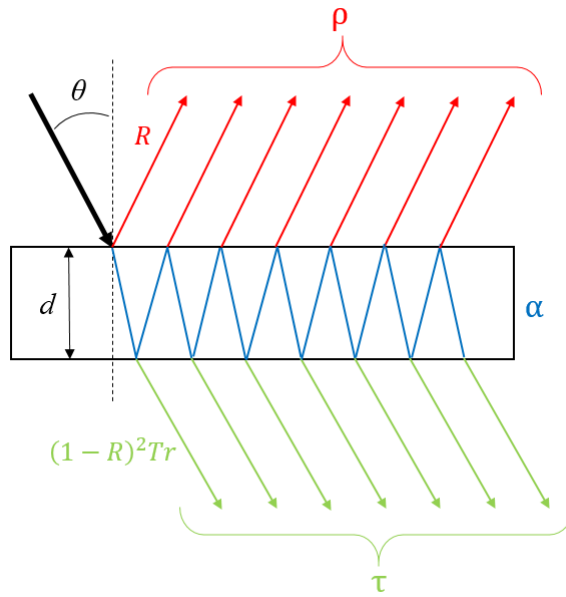


FIGURE 1.6 – Réflexions et transmissions multiples sur une lame homogène à faces parallèles.

On suppose ici que le milieu d'incidence est le vide et que les interférences sont négligeables. Le bilan énergétique de la lame peut être séparé en trois contributions : une partie du rayonnement est réfléchi en surface, une partie est transmise au travers de la lame et une partie est absorbée. Ces différentes contributions sont calculées à l'aide d'un facteur de réflexion R à l'interface et d'un facteur d'atténuation T_r . Les démonstrations mathématiques menant aux expressions de ces facteurs ne sont pas détaillées dans le présent document mais peuvent être trouvées dans (BRUN, 2003).

Le facteur de réflexion $R(\sigma, T)$ à l'interface s'exprime comme une fonction de l'indice de réfraction complexe spectral $\tilde{n}_\sigma$ (Eq. 1.7) dont la partie réelle est l'indice de réfraction spectral n_σ et la partie imaginaire est l'indice d'absorption spectral k_σ ¹ :

$$R(\sigma, T) = \left| \frac{\tilde{n}_\sigma - 1}{\tilde{n}_\sigma + 1} \right|^2 \quad (1.6)$$

$$\tilde{n}_\sigma = n_\sigma + ik_\sigma \quad (1.7)$$

1. Note : La communauté scientifique "matériaux" a tendance à définir la partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe comme étant le coefficient d'extinction. La communauté des "transferts radiatifs" lui préfère souvent le terme d'indice d'absorption, que nous choisissons pour ce manuscrit.

On suppose que l'on se trouve dans un milieu beerien. Le facteur d'atténuation de l'intensité du rayonnement qui traverse l'épaisseur d de la lame peut donc s'exprimer selon la loi exponentielle suivante :

$$Tr(\sigma, T) = e^{-\kappa_{abs,\sigma} d} \quad (1.8)$$

On note ici que le coefficient d'absorption $\kappa_{abs,\sigma}$ peut s'exprimer comme une fonction de la partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe $\tilde{n}_\sigma$:

$$\kappa_{abs,\sigma} = 4\pi\sigma k_\sigma \quad (1.9)$$

On remarque que les deux facteurs présentés ci-dessus s'expriment en fonction des caractéristiques radiatives du milieu n_σ et k_σ .

La fraction totale du rayonnement incident réfléchi par la lame après de multiples réflexions est la réflectance $\rho(\sigma, T)$ et s'exprime ainsi :

$$\rho(\sigma, T) = R(\sigma, T) \left[1 + \frac{(1 - R(\sigma, T))^2 Tr(\sigma, T)^2}{1 - R(\sigma, T)^2 Tr(\sigma, T)^2} \right] \quad (1.10)$$

La fraction du rayonnement transmise au travers, que l'on nomme transmittance $\tau(\sigma, T)$, est égale à :

$$\tau(\sigma, T) = Tr(\sigma, T) \frac{1 - R(\sigma, T)}{1 + R(\sigma, T)} \frac{1 - R(\sigma, T)^2}{1 - R(\sigma, T)^2 Tr(\sigma, T)^2} \quad (1.11)$$

Si l'on effectue un bilan d'énergie sur la lame, nous avons :

$$\alpha(\sigma, T) + \rho(\sigma, T) + \tau(\sigma, T) = 1 \quad (1.12)$$

avec $\alpha(\sigma, T)$ la fraction du rayonnement incident absorbée par la lame. Or à l'équilibre thermique, d'après la première loi de Kirchhoff, le rayonnement absorbé par la lame est également réémis, d'où :

$$\alpha(\sigma, T) = \varepsilon(\sigma, T) \quad (1.13)$$

L'émittance $\varepsilon(\sigma, T)$, capacité du milieu à émettre du rayonnement, est alors égale à :

$$\varepsilon(\sigma, T) = 1 - \rho(\sigma, T) - \tau(\sigma, T) = \frac{(1 - R(\sigma, T))(1 - Tr(\sigma, T))}{1 - R(\sigma, T)Tr(\sigma, T)} \quad (1.14)$$

Cette étude de la lame homogène permet donc d'identifier trois propriétés radiatives d'intérêt : la réflectance ρ , la transmittance τ et l'émittance ε . Ces grandeurs macroscopiques, propres à un certain volume, découlent des caractéristiques radiatives de la matière, et ce lien sera utile par la suite. Les expressions des propriétés radiatives présentées ici ne sont pas directement applicables aux milieux poreux. En effet, l'état de surface de ces derniers peut être très différent et une interaction supplémentaire peut se produire au sein du milieu à cause des hétérogénéités : la diffusion du rayonnement.

1.3.2 Les différents types de réflexion

Dans le cas de matériaux réels, la réflexion du rayonnement sur une interface peut être de différentes natures à cause de la rugosité optique de surface. On définit la rugosité optique comme étant l'état de surface à l'échelle de la longueur d'onde du rayonnement.

Lorsque la surface est optiquement lisse (cas de la lame à faces parallèles), le rayonnement est réfléchi de façon spéculaire (ou directionnelle), i. e. dans une direction privilégiée (Fig. 1.7a). Les lois de Snell-Descartes et Fresnel sont alors applicables.

Si la surface est optiquement rugueuse, la réflexion est alors diffuse (Fig. 1.7b). La réflexion mixte est finalement une combinaison des deux précédents types de réflexion. Le rayonnement est alors réfléchi de façon diffuse autour d'une direction principale qui est celle de la réflexion spéculaire (Fig. 1.7c).

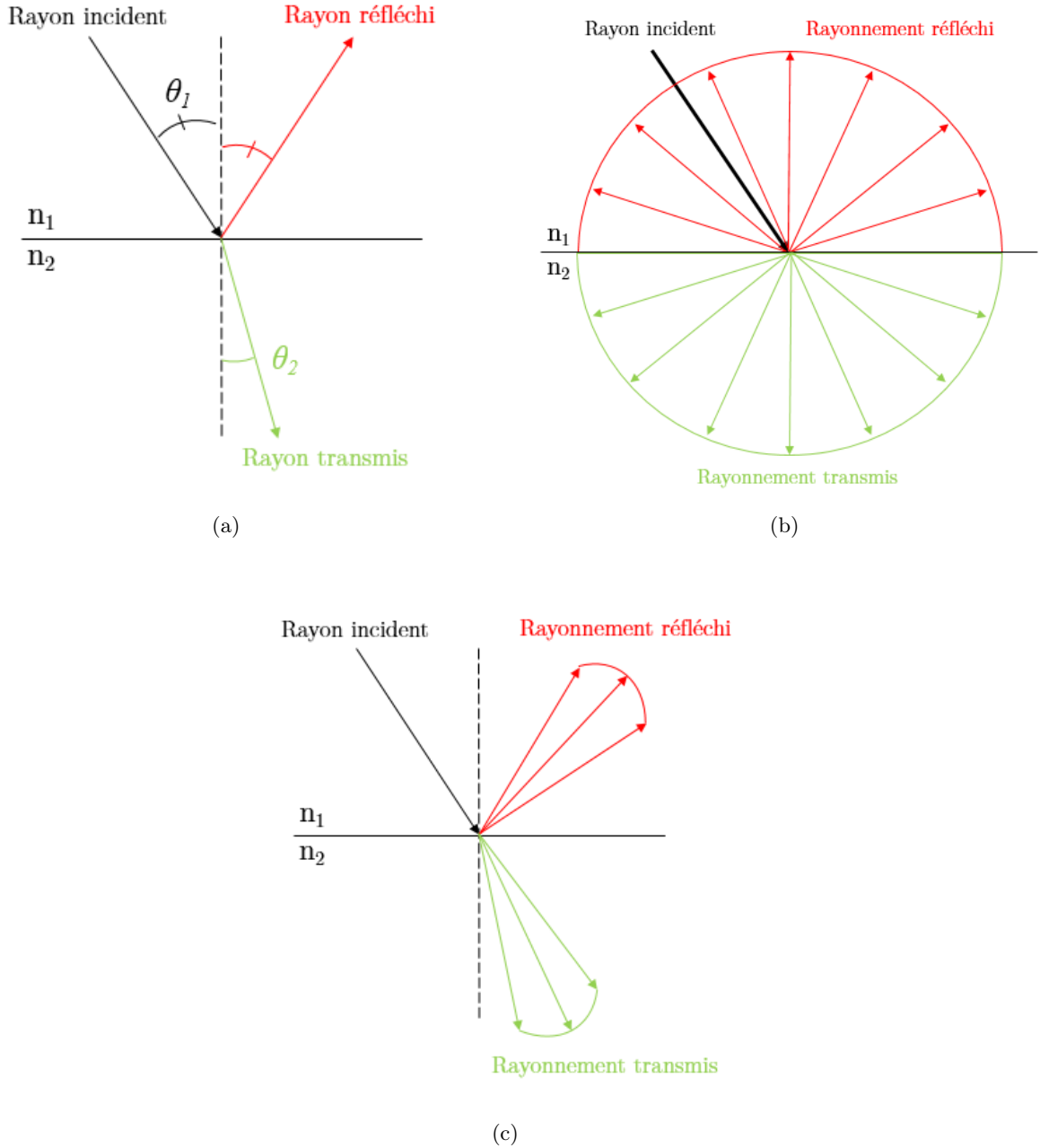


FIGURE 1.7 – Schémas de (a) la réflexion spéculaire, (b) de la réflexion diffuse isotrope et (c) de la réflexion mixte.

La nature semi-transparente des matériaux poreux étudiés dans ce document implique également de tenir compte de la réflexion diffuse en volume. En effet, la part du rayonnement qui n'est pas réfléchi en surface du matériau (qui est donc transmise en son sein) peut subir des réflexions supplémentaires à chaque nouvelle interface rencontrée dans le volume avant de quitter le milieu par la surface d'incidence. On introduit alors la réflectance diffuse $\rho^\cap(\sigma, T)$ (ou hémisphérique)

comme la somme des contributions des différentes types de réflexion (de surface et de volume). La transmittance diffuse $\tau^\cap(\sigma, T)$ correspond, selon le même raisonnement, à la part du rayonnement transmise au travers du matériau après avoir subi de multiples réflexions et réfractions au sein du volume.

À l'aide de ces deux grandeurs, il est possible d'établir une nouvelle expression de la loi de Kirchhoff (Eq. 1.15), cette fois-ci valable pour les milieux hétérogènes semi-transparents :

$$\varepsilon(\sigma, T) = 1 - \rho^\cap(\sigma, T) - \tau^\cap(\sigma, T) \quad (1.15)$$

1.3.3 Emittance d'un corps réel

L'émittance d'un corps réel peut être calculée par la loi de Kirchhoff (Eq. 1.15) mais aussi en utilisant les propriétés du corps noir. L'émittance spectrale directionnelle (ou spéculaire) d'un corps réel est définie comme le rapport entre la luminance spectrale directionnelle de ce dernier et la luminance d'un corps noir (voir Eq. 1.1) :

$$\varepsilon(\sigma, T, \Omega) = \frac{L(\sigma, T, \Omega)}{L^o(\sigma, T)} \quad (1.16)$$

On rappelle que Ω est la direction angulaire de propagation du rayonnement, définie en coordonnées polaires par deux composantes, θ et φ .

L'intégration de la luminance spectrale directionnelle du corps réel sur le demi-espace permet ainsi de calculer une émittance spectrale hémisphérique :

$$\varepsilon^\cap(\sigma, T) = \frac{\int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi/2} L(\sigma, T, \Omega) \sin\theta d\theta d\varphi}{\int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi/2} L^o(\sigma, T) \sin\theta d\theta d\varphi} \quad (1.17)$$

L'émittance totale directionnelle correspond quant à elle à une moyenne de l'émittance sur l'ensemble du spectre.

$$\varepsilon^{total}(T, \Omega) = \frac{\int_0^\infty L(\sigma, T, \Omega) d\sigma}{\int_0^\infty L^o(\sigma, T) d\sigma} \quad (1.18)$$

Finalement, l'émittance totale hémisphérique est la résultante d'une intégration sur le demi-espace angulaire ainsi que sur tout le domaine spectral :

$$\varepsilon^{total, \cap}(T) = \frac{\int_0^\infty \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi/2} L(\sigma, T, \Omega) \sin\theta d\theta d\varphi d\sigma}{\int_0^\infty \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi/2} L^o(\sigma, T) \sin\theta d\theta d\varphi d\sigma} \quad (1.19)$$

L'émittance d'un milieu peut donc être évaluée de différentes façons : elle peut être déduite des valeurs de réflectance et transmittance (Eq. 1.15) ou calculée en s'appuyant sur le concept du corps noir (Eq. 1.16).

Cette section ainsi que la précédente ont permis d'établir les différentes expressions des propriétés radiatives en fonction des domaines d'études (angulaires et spectraux). Il s'agit donc ensuite d'identifier les différentes techniques existantes, analytiques, numériques ou expérimentales, permettant d'extraire ces propriétés de milieux réels.

1.3.4 Mesure des propriétés radiatives spectrales

Les mesures des propriétés radiatives spectrales impliquent le plus souvent l'utilisation d'un spectromètre Infrarouge à Transformée de Fourier (ou spectromètre FTIR pour *Fourier Transform InfraRed*). Un spectromètre FTIR permet d'éclairer un échantillon avec une source polychromatique. Grâce à un interféromètre de Michelson (présenté brièvement par la suite) et un traitement mathématique des données récupérées par le détecteur (une transformée de Fourier), il est alors possible d'acquérir la réponse de l'échantillon vis-à-vis de la source lumineuse sur une large gamme de nombres d'onde.

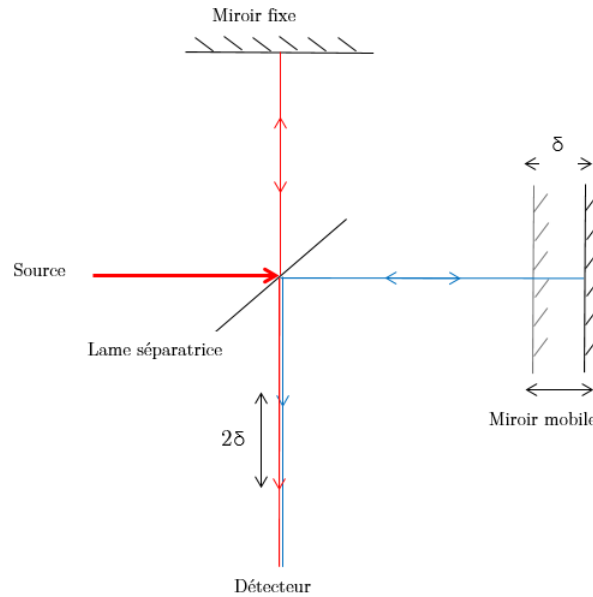


FIGURE 1.8 – Schéma d'un interféromètre de Michelson.

Un interféromètre de Michelson est un montage optique, composé de plusieurs miroirs et d'une lame séparatrice, schématiquement représenté sur la Figure 1.8. Une source lumineuse polychromatique est séparée par une lame en deux contributions d'intensités égales. Une première contribution est réfléchiée par un miroir fixe et la seconde par un miroir mobile qui se déplace d'une distance δ . Les deux signaux se rejoignent à nouveau sur la lame séparatrice pour être réfléchis vers le détecteur. Ces signaux sont alors en décalage d'une distance 2δ , appelée différence de marche. Des interférences entre les deux signaux lumineux sont observées en fonction du déplacement du miroir mobile. Le signal enregistré est un interférogramme. L'opération mathématique qu'est la transformée de Fourier permet finalement de convertir cet interférogramme en spectre en passant du domaine spatial au domaine spectral. On obtient alors une évolution de l'intensité lumineuse (flux transmis ou réfléchi par l'échantillon selon la configuration) en fonction du nombre d'onde. Des explications plus détaillées sur l'interféromètre de Michelson et la spectroscopie infrarouge en général peuvent être trouvées dans (LARKIN, 2018).

1.3.4.1 Mesures à température ambiante

En couplant une sphère intégrante au spectromètre, il est possible de mesurer des réflectances et transmittances normales-hémisphériques (Fig. 1.7b) et d'en déduire une émittance directionnelle (normale dans le cas présent) à partir de l'équation 1.15. Une sphère intégrante est une sphère creuse dont la surface interne est très réfléchissante (e. g. en or) et qui comporte un voire plusieurs orifices par lesquels une source lumineuse se propage. Le rayonnement incident est réfléchi de multiples fois à

l'intérieur de la sphère et est diffusé de façon uniforme au sein de celle-ci. L'intensité du rayonnement est ainsi conservée dans la sphère, mais on perd l'information sur la direction d'incidence. Un photodétecteur est généralement connecté à la sphère pour capter le flux diffusé.

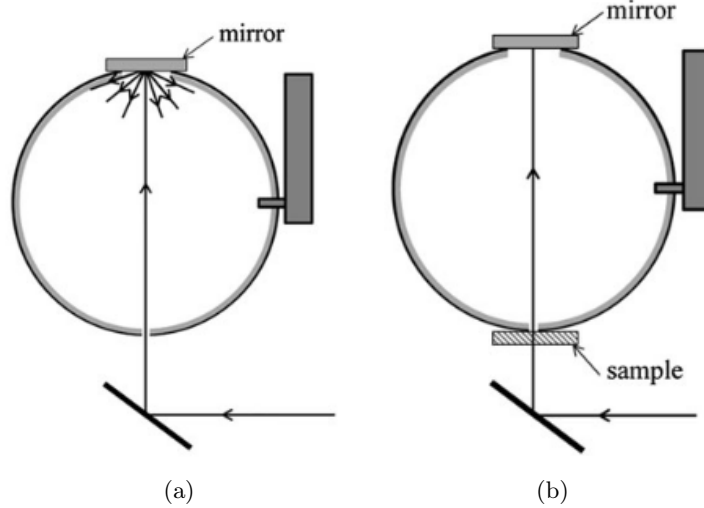


FIGURE 1.9 – Exemple de mesure de (a) réflectance et (b) transmittance normales-hémisphériques en sphère intégrante (DUPLEIX *et al.*, 2013).

Dombrovsky *et al.* (DOMBROVSKY *et al.*, 2007) ont ainsi mesuré les réflectance et transmittance normales-hémisphériques de céramiques poreuses en zircone, Fu *et al.* (FU *et al.*, 2016) celles d'aérogels de silice et Rozenbaum *et al.* (ROZENBAUM *et al.*, 2019) celles de verres de silice contenant des bulles d'air. D'autres montages expérimentaux sont quant à eux destinés à des mesures de propriétés bidirectionnelles comme celui développé par Baillis *et al.* (BAILLIS *et al.*, 2002). L'échantillon est alors placé sur une platine rotative pour pouvoir mesurer le flux rayonné dans différentes directions. L'intérêt de ce type de mesures est notamment de pouvoir déduire la fonction de phase d'un matériau (présente dans l'E.T.R.) dont la diffusion est anisotrope.

Cependant, les dispositifs présentés ci-dessus ne permettent pas (ou alors très difficilement) de mesurer des propriétés radiatives spectrales en température. Or les propriétés radiatives de matériaux peuvent sensiblement varier avec celle-ci. Plusieurs méthodes ont donc été mises au point afin de pouvoir observer cette variation de comportement.

1.3.4.2 Mesures en température

Toujours à l'aide de sphères intégrantes, Retaillieu *et al.* (RETAILLEAU *et al.*, 2022) ont mis au point un dispositif pour mesurer la réflectance et la transmittance de matériaux composites semi-transparents jusqu'à 450°C mais seulement pour trois nombres d'ondes distincts.

Le CEMHTI (DE SOUSA MENESES *et al.*, 2015) a développé un banc de mesures qui permet d'évaluer l'émittance spectrale directionnelle sur une large gamme spectrale et jusqu'à des températures élevées (environ 2000 K) en comparant le flux émis par un échantillon chauffé à l'aide d'un laser CO_2 au flux émis par un four faisant office de corps noir. Un autre dispositif, basé sur un principe similaire de mesure de flux émis par un échantillon a été utilisé par Le Foll *et al.* (LE FOLL *et al.*, 2017) pour évaluer l'émittance spectrale d'échantillons de fibres de silice jusqu'à 2000 K. Cependant, pour les deux montages expérimentaux mentionnés ci-dessus, il n'est pas possible, dans le cadre de l'étude de milieux semi-transparents, de déterminer la réflectance ou la transmittance.

Manara *et al.* (MANARA et al., 2009) ont développé la méthode des "conditions limites du corps noir", ce qui leur a permis d'extraire l'émittance spectrale directionnelle et la transmittance spectrale directionnelle-hémisphérique de milieux semi-transparents jusqu'à 1100K. Cette méthode atteint cependant ces limites lorsqu'elle est appliquée à des céramiques microporeuses qui sont fortement diffusantes. Jeon *et al.* (JEON et al., 2010) ont alors proposé une nouvelle méthode, la "méthode des deux substrats" pour évaluer simultanément l'émittance, la transmittance et la réflectance d'un échantillon d'alumine poreux à 300°C. Ils montrent également que l'émittance des substrats (liée à leur nature chimique) et les phénomènes de réflexions multiples peuvent avoir une influence non négligeable sur la mesure des propriétés radiatives. La technique est donc limitée par la composition du matériau étudié.

En conclusion, plusieurs techniques expérimentales ont été mises au point pour mesurer les propriétés radiatives de milieux poreux et semi-transparents. Les mesures à température ambiante sont relativement bien maîtrisées, et la difficulté repose sur l'évaluation des propriétés à plus haute température. En effet, chaque technique présente ses limites et il s'agit donc de choisir la méthode la plus adaptée en fonction de la nature du matériau, de la gamme spectrale et de la plage de température étudiées.

1.3.5 Simulation des propriétés radiatives spectrales de milieux poreux

Des simulations de propriétés radiatives spectrales sont réalisées pour deux raisons principales. Premièrement, il a été montré qu'en fonction des matériaux étudiés, les mesures des propriétés peuvent être relativement compliquées à réaliser, notamment en température. La simulation des propriétés radiatives permet ainsi d'accéder aux propriétés beaucoup plus rapidement et d'économiser des ressources, matérielles ou humaines. C'est ainsi une aide à la conception de matériaux aux propriétés ciblées. Deuxièmement, en conséquence du lien physique qui existe entre propriétés et caractéristiques radiatives, de nombreuses méthodes inverses d'identification de ces dernières ont été développées. Il est donc nécessaire d'avoir des modèles permettant d'alimenter ces méthodes inverses.

Les propriétés radiatives étant définies à partir de flux radiatifs (e.g. la réflectance est définie comme le flux réfléchi par un milieu par rapport au flux incident), on retrouve logiquement parmi les méthodes de simulation certains modèles utilisés pour résoudre l'E.T.R (§1.2.3). Dombrovsky *et al.* (DOMBROVSKY et al., 2007) ont ainsi développé un modèle à deux flux modifiés leur permettant d'approcher les réflectance et transmittance normales-hémisphériques de milieux composés de fibres de zircone. Baillis *et al.* (BAILLIS et al., 2002) calculent des transmittances et réflectances bi-directionnelles en discrétisant l'espace angulaire par la méthode des ordonnées discrètes.

D'autres méthodes de simulation se basent sur des solutions particulières des équations de Maxwell, en particulier la théorie de Mie. Cette théorie permet de modéliser le comportement radiatif de milieux diffusants composés de particules assimilables à des sphères ou des cylindres par le calcul de sections efficaces de diffusion et d'absorption, soit la probabilité qu'une particule diffuse ou absorbe le rayonnement qu'elle reçoit. Tong *et al.* (TONG et al., 2015) ont ainsi calculé les propriétés radiatives de fibres servant à la conception de nouveaux textiles technologiques.

Les méthodes de lancer de rayons sont également largement utilisées (ROZENBAUM et al., 2019) et servent même parfois de référence (lorsque les mesures sont indisponibles) dans certaines méthodes inverses d'identification de caractéristiques radiatives (RANDRIANALISOA et al., 2017).

1.4 Identification des caractéristiques radiatives spectrales de milieux poreux

Un code de calcul des échanges conducto-radiatifs a été développé par Niezgoda (NIEZGODA, 2012) puis Heisel (HEISEL, 2019) au centre d'études du CEA Le Ripault depuis 2012. Ce moyen, qui fait l'objet d'une étude dans le Chapitre 4, n'a besoin que de deux caractéristiques radiatives comme données d'entrée : l'indice de réfraction n_σ et l'indice d'absorption k_σ (Eq. 1.7). Les méthodes d'identification présentées par la suite concernent donc cet indice complexe en particulier, dans une optique de répondre aux besoins du CEA et de pouvoir alimenter le code d'échanges conducto-radiatif.

1.4.1 Caractéristiques effectives ou intrinsèques

Avant de présenter les différentes techniques permettant l'identification des caractéristiques radiatives que sont l'indice de réfraction réel n_σ et l'indice d'absorption k_σ , il est nécessaire d'introduire les notions de grandeurs effectives ou intrinsèques. En effet, un milieu poreux est composé à minima de deux phases, une fluide (ou vide) et une solide. Si l'on souhaite résoudre l'E.T.R. dans un tel milieu, deux considérations sont alors possibles.

La première consiste à travailler sur un volume minimum que l'on suppose représentatif du comportement global du milieu à plus grande échelle (e. g. la répartition spatiale est statistiquement équivalente dans tout le milieu). Dans ce cas, il est possible d'assimiler le milieu poreux à un milieu homogène. Il est alors seulement nécessaire d'identifier un jeu unique de caractéristiques radiatives, celles de ce volume représentatif. On parle ainsi de caractéristiques effectives. En revanche, l'utilisation de ces dernières est limitée pour trois raisons principales.

Premièrement, les caractéristiques identifiées sont associées à un volume bien spécifique et ne sont donc valables que pour des milieux équivalents à ce volume. Prenons l'exemple d'un milieu fibreux dont les fibres sont orientées aléatoirement dans l'espace. Les caractéristiques effectives identifiées sur ce milieu ne seront pas valables sur un second volume composé des mêmes fibres mais cette fois-ci avec une orientation préférentielle. Pour chaque changement d'agencement spatial, il faut donc caractériser à nouveau le matériau même si les microconstituants restent les mêmes (même procédé d'élaboration et même composition chimique). Deuxièmement, dans le cas de l'étude d'un matériau à plusieurs phases solides tel que celui présenté en Figure 1.10, l'identification de caractéristiques radiatives effectives ne permet pas de distinguer les contributions de chacune des phases au comportement radiatif du matériau.

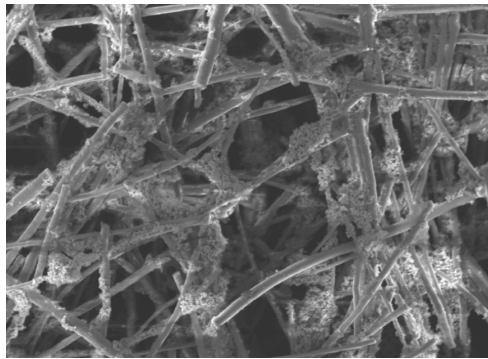


FIGURE 1.10 – Image MEB d'un échantillon fibreux avec des opacifiants. Le diamètre des fibres est de quelques microns.

Finalement, les caractéristiques géométriques des constituants des milieux poreux ainsi que la plage spectrale d'étude sont une limite supplémentaire à l'utilisation de ces modèles d'homogénéisation, puisque ces derniers ne sont valables que lorsque la longueur d'onde est très grande devant la taille caractéristique des constituants (e. g. leurs rayons).

Pour contourner ces trois obstacles, il est possible de considérer le milieu tel qu'il est réellement, c'est à dire en identifiant les caractéristiques radiatives de chacune des phases qui le composent. On parle alors de caractéristiques intrinsèques (ou locales). Ce sont ces dernières qui nous intéressent pour alimenter le code du CEA par la suite (voir Chapitre 4).

1.4.2 Les méthodes d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque

À ce jour, et à notre connaissance, les techniques permettant d'extraire un indice complexe spectral intrinsèque de milieux hétérogènes et en température sont très peu nombreuses, voire inexistantes. La grande majorité des travaux présents dans la littérature portent sur l'identification d'indices effectifs, et bien souvent les identifications de la partie réelle n_σ et de la partie imaginaire k_σ sont réalisées séparément, par deux méthodes distinctes. Les techniques d'identification directes des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction complexe spectral permettent seulement d'extraire un indice complexe effectif $\tilde{n}_{\sigma,eff}$. Ces techniques se basent par exemple sur les approximations de milieux effectifs telles que celle de Maxwell Garnett (MAXWELL GARNETT, 1904), qui ne sont d'ailleurs applicables que dans certaines configurations, e. g. lorsque les particules sont sphériques et petites devant la longueur d'onde du rayonnement.

L'identification de l'indice de réfraction n_σ et de l'indice d'absorption k_σ séparément est sans surprise soumise aux mêmes limites : il est seulement possible d'extraire des caractéristiques effectives. Néanmoins, de nombreux moyens ont été développés (ils sont présentés ci-après) pour identifier des caractéristiques effectives et certains d'entre eux sont des candidats prometteurs à l'élaboration d'une méthodologie permettant l'identification d'un indice complexe spectral intrinsèque.

Les méthodes d'identification de l'indice de réfraction spectral $n_{\sigma,eff}$ (toujours effectif) sont essentiellement des méthodes d'identification inverses. À partir des propriétés radiatives (§1.3) mesurées par spectroscopie ou ellipsométrie (KRZYŻANOWSKA et al., 1998), et injectées dans des modèles analytiques comme les relations de Fresnel (KITAMURA et al., 2007) ou la fonction diélectrique (DE SOUSA MENESES et al., 2004), il est possible d'extraire l'indice de réfraction. Ces différentes méthodes, finalement peu nombreuses en comparaison des méthodes d'identification de l'indice d'absorption, peuvent être retrouvées dans (PALIK, 1998).

Les méthodes d'identification du coefficient d'absorption $\kappa_{abs,\sigma}$ (et donc par extension de l'indice d'absorption k_σ) sont directes ou inverses. Parmi les méthodes directes, on retrouve les modèles numériques décrivant les interactions entre des particules simples ou des agrégats avec le rayonnement électromagnétique (GUERRA et al., 2021). Cependant, il est relativement compliqué de développer ces modèles pour des milieux dispersés, hétérogènes, ou composés de constituants de formes géométriques irrégulières. Pour les milieux denses, les interactions entre les particules sont très nombreuses, ce qui rend la résolution des modèles complexe et peut mener, en admettant que ceux-ci arrivent à converger, à des temps de calculs extrêmement longs. C'est pourquoi des méthodes inverses ont été développées.

Ces méthodes inverses se basent sur la relation forte qui existe entre coefficient d'absorption et propriétés radiatives, comme cela a été montré en section §1.3. En effet, les propriétés radiatives du matériau sont mesurées par spectroscopie infrarouge et comparées à leurs équivalents numé-

riques qui sont estimés par un modèle qui est fonction du coefficient d'absorption. Un algorithme d'optimisation permet alors de proposer une valeur de ce coefficient qui va minimiser les écarts entre la mesure et la simulation. Suivant ce principe, Sacadura et Baillis (SACADURA & BAILLIS, 2002) identifient le coefficient d'absorption de milieux fibreux et de mousses en minimisant par une méthode de Gauss les écarts entre des mesures de réflectance et transmittance bi-directionnelles ou normales-hémisphériques avec leurs équivalents obtenus par une résolution directe de l'E.T.R.. De la même façon, Zhao *et al.* (S. ZHAO et al., 2020) identifient le coefficient d'absorption d'un feutre de fibres imprégné d'aérogel de silice.

Pour pallier la complexité d'implémentation et le coût élevé en calcul d'une résolution directe de l'E.T.R., Dombrovsky *et al.* (DOMBROVSKY et al., 2007) utilisent un modèle à deux flux modifiés pour extraire le coefficient d'absorption de transport de céramiques de zircone poreuses. Ce modèle a l'avantage d'être simple d'implémentation car il n'a besoin que de quatre paramètres d'entrée. D'autres auteurs préfèrent remplacer les modèles analytiques ou les techniques déterministes par le lancer de rayons par méthode de Monte Carlo (MCRT), qui, comme cela a été montré dans la section §1.2.3.2 est adapté pour l'étude de géométries complexes. Maanane *et al.* (MAANANE et al., 2020) ont ainsi extrait le coefficient d'absorption d'un échantillon de silice fibreux à l'aide de mesures de réflectance et de transmittance normales-hémisphériques et d'une méthode de lancer de rayons Monte Carlo Symbolique. Les travaux de Le Foll *et al.* (LE FOLL et al., 2017) sont particulièrement intéressants, car ils couplent la méthode de Monte Carlo Inverse à des mesures en température. De ce fait, il leur est possible d'identifier des coefficients d'absorption à des températures élevées (au dessus de 1500 K), qui sont des données peu présentes dans la littérature.

Finalement, il peut être conclu de cet état de l'art que la spectroscopie infrarouge est un outil performant pour identifier l'indice d'absorption par méthode inverse. Sur l'aspect numérique, les méthodes MCRT se démarquent des autres techniques lorsqu'il s'agit de travailler sur des géométries complexes. Les besoins en mémoire vive sont alors beaucoup plus faibles et les rayons peuvent se propager sur des microstructures générées numériquement ou bien des répliques réelles extraites à l'aide de techniques d'imagerie sans forcément nécessiter un maillage du milieu (cf. §1.1.3).

Li *et al.* (Y. LI et al., 2021) se sont servis de ces deux outils pour initier une nouvelle démarche de travail : identifier l'indice d'absorption intrinsèque à température ambiante de mousses en alumine à partir de mesures macroscopiques (spectroscopie FTIR) et d'une simulation du comportement radiatif à l'échelle microscopique. L'échantillon numérique qu'ils ont utilisé pour leur méthode inverse est une réplique numérique de la microstructure de leur mousse obtenue par microtomographie à rayons X. De cette façon, ils montrent que l'indice d'absorption intrinsèque des liaisons des mousses d'alumine est différent de celui d'un matériau d'alumine massique et que cette différence est non-négligeable, d'où la pertinence d'extraire des caractéristiques intrinsèques plutôt qu'effectives. L'indice de réfraction qu'ils utilisent pour réaliser leurs simulations MCRT est en revanche extrait de la littérature. Il faut donc supposer que la valeur de ce dernier a une influence négligeable sur les résultats de leur démarche d'optimisation et donc sur la valeur de l'indice d'absorption qu'ils identifient finalement. Leur dispositif expérimental ne permet pas une identification de cette caractéristique radiative à des températures élevées.

Conclusion du premier chapitre

Ce premier chapitre a permis de définir les notions essentielles à la compréhension des phénomènes physiques intervenant lors des échanges radiatifs en milieux poreux semi-transparentes, à des échelles (microscopiques) et des régimes de fonctionnement (températures élevées) bien spécifiques.

Un premier état de l'art, dédié aux techniques de caractérisation et de reproduction numérique de microstructures poreuses, a permis d'identifier les outils les plus pertinents pour générer des microstructures numériques fidèles, puisque la représentativité de ces dernières est essentielle pour mener à bien ces travaux.

Une étude bibliographique des différentes méthodes de résolution de l'E.T.R., l'équation régissant le transfert radiatif, a mis en exergue le besoin d'identifier les caractéristiques spectrales des milieux étudiés à l'échelle des constituants, données presque inexistantes dans la littérature et qui seraient pourtant d'une grande utilité à la communauté des transferts radiatifs ou de l'optique pour alimenter des codes de calculs.

Bien qu'aucune méthode n'existe pour identifier l'indice de réfraction complexe spectral et intrinsèque en fonction de la température $\tilde{n}_\sigma(T)$, certains outils ont été identifiés comme étant de bons candidats pour la mise en place d'une nouvelle méthodologie d'identification de cet indice : la spectroscopie FTIR ainsi que la méthode de lancer de rayons Monte Carlo.

Selon une démarche similaire aux travaux initiés par Li *et al.* (Y. LI et al., 2021), une nouvelle méthodologie d'identification combinant techniques expérimentales et numériques a donc été mise au point pour identifier l'indice de réfraction complexe spectral de milieux poreux semi-transparentes et ce à l'échelle locale (intrinsèque) et en fonction de la température. La présentation de cette nouvelle méthodologie et des outils qui la composent fait l'objet du deuxième chapitre de ce manuscrit.

Chapitre 2

Méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral de microconstituants semi-transparents

Introduction

L'objectif principal de ce chapitre est d'identifier l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque des microconstituants de milieux poreux pour alimenter un code de calcul de transferts thermiques du CEA par la suite. La méthodologie d'identification qui a été mise en place et qui est présentée ci-après n'a donc pas vocation à identifier un indice avec une précision extrêmement élevée mais bien à extraire des valeurs suffisamment approchées des valeurs réelles pour permettre une simulation pertinente du comportement thermique des matériaux étudiés.

Dans le chapitre précédent, il a été montré qu'une telle identification était tout sauf triviale, notamment à cause de la difficulté de réaliser des mesures à l'échelle des microconstituants pour extraire les indices par méthode inverse. Cependant, il s'est aussi avéré que la combinaison de certaines techniques utilisées pour l'identification d'indices effectifs soit une solution au développement d'une nouvelle méthodologie d'identification adaptée pour les échelles locales.

Dans un premier temps, la démarche d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral mise en place est présentée, puis chacun des outils qui la composent est détaillé de façon exhaustive. Finalement, une première étape de validation, purement numérique, permettra de valider la méthodologie d'un point de vue théorique mais également d'identifier les limites, forces et faiblesses de celle-ci.

2.1 Principe général de la méthodologie

La méthodologie mise en place repose sur le principe d'identification de paramètres par méthode inverse (Fig. 2.1) très largement utilisé, notamment en thermique pour l'identification de la diffusivité (MARIANI & DOS SANTOS COELHO, 2009).

Prenons l'exemple d'un milieu poreux dont la matrice est composée de fibres micrométriques. Des mesures par spectroscopie FTIR ① réalisées sur un échantillon de ce matériau permettent d'extraire les propriétés radiatives de ce volume, à savoir la réflectance $\rho_{\sigma}^{\cap}$ et la transmittance $\tau_{\sigma}^{\cap}$ hémisphériques spectrales et l'émittance spectrale ε_{σ} .

En parallèle, une étude de la microstructure du matériau est réalisée par microtomographie à rayons X ②. L'analyse des images ainsi obtenues permet d'extraire des lois de distributions des caractéristiques géométriques des fibres (rayon, longueur, orientation). Ces lois sont ensuite utilisées pour générer une microstructure statistiquement représentative de la microstructure réelle ③.

L'émittance ε_{σ} , la transmittance $\tau_{\sigma}^{\cap}$ et la réflectance $\rho_{\sigma}^{\cap}$ numériques sont simulées par un code de lancer de rayons par la méthode de Monte Carlo ④, qui prend comme données d'entrée l'indice de réfraction complexe spectral (la caractéristique recherchée), l'épaisseur de l'échantillon et la microstructure numérique générée préalablement. En supposant que l'épaisseur de l'échantillon étudié soit constante en tout point (i. e. que ces faces sont parallèles et que les variations d'épaisseur dues aux rugosités de surface sont négligeables) et que la microstructure numérique est suffisamment représentative de la microstructure réelle, alors les résultats de la simulation MCRT ne sont fonction que des valeurs de l'indice de réfraction complexe spectral tant que l'hypothèse de l'optique géométrique se vérifie.

Si des écarts sont observés entre les propriétés expérimentales et simulées, cela signifie que l'indice de réfraction complexe spectral utilisé pour la simulation n'est pas celui des constituants étudiés. Le cas échéant, un algorithme d'optimisation basé sur une méthode de minimisation des moindres carrés de type Levenberg-Marquardt permet alors d'extraire l'indice de réfraction complexe spectral

réel, pour lequel les écarts entre la simulation MCRT et l'expérience FTIR sont minimaux.

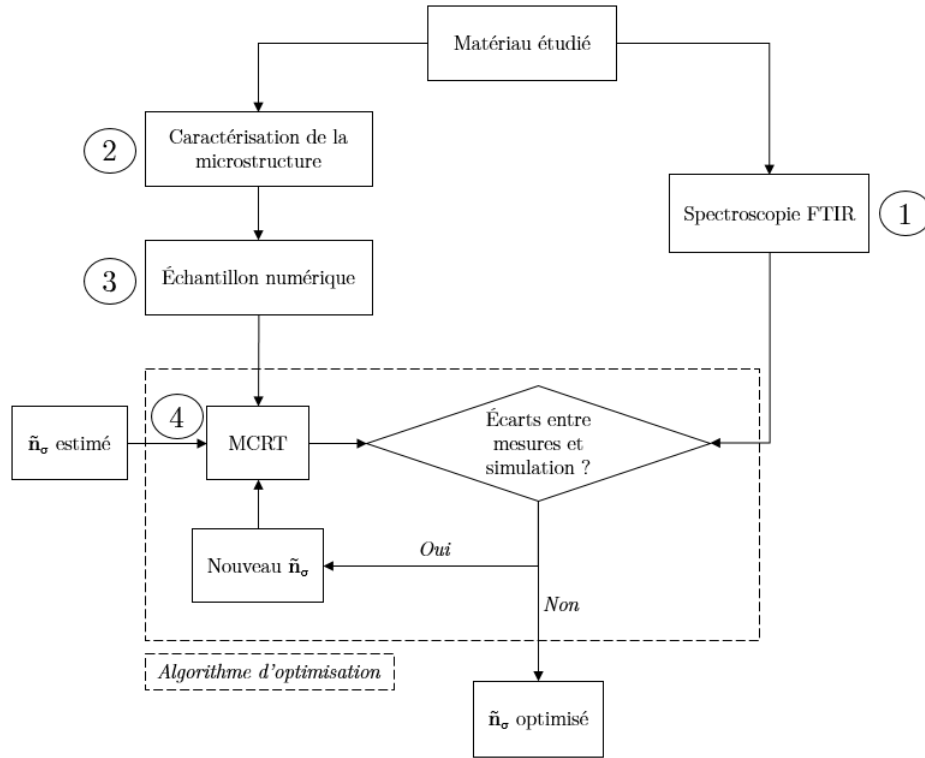


FIGURE 2.1 – Schéma de principe détaillant les étapes de la méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral.

Dans le cas d'un matériau composé de plusieurs phases solides, l'identification des indices de chacune des phases se fait de façon itérative. Par exemple, dans le cas d'un matériau fibreux composé de particules opacifiantes (Fig. 2.2), l'indice de réfraction complexe des fibres sera extrait à partir de la matrice fibreuse seule, puis, connaissant cet indice, il sera ensuite possible d'extraire l'indice des opacifiants en étudiant le milieu multiphasique directement.

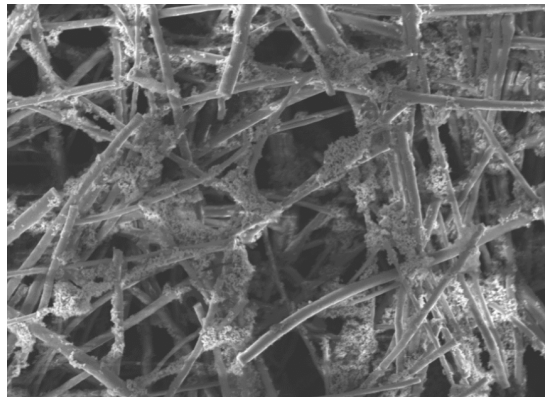


FIGURE 2.2 – Image MEB d'un échantillon fibreux avec des opacifiants. Le diamètre des fibres est de quelques microns.

L'intérêt de cette méthodologie est donc double. Dans un premier temps, celle-ci permet d'identifier l'indice de réfraction complexe spectral à une échelle microscopique à partir de mesures macroscopiques en distinguant la contribution de chacune des phases. Dans un second temps, elle permet de concevoir, à partir des indices identifiés et des outils numériques présentés ci-après, de nouveaux matériaux avec des propriétés ciblées et ce plus rapidement et simplement qu'en réalisant un nombre conséquent d'élaborations coûteuses en ressources.

2.2 Dispositifs expérimentaux de spectroscopie FTIR du CEMHTI

Deux dispositifs de spectroscopie FTIR disponibles au laboratoire CEMHTI ont été utilisés au cours de ces travaux. Le premier a permis de réaliser des mesures de réflectance et de transmittance normales-hémisphériques à température ambiante et le second des mesures d'émittance normale en température.

2.2.1 Mesures de réflectance et transmittance normales-hémisphériques à température ambiante

Le dispositif expérimental de mesure de propriétés à température ambiante est composé d'un spectromètre Vertex V70 produit par Bruker, d'un jeu de miroirs, et d'une sphère intégrante en or connectée à un détecteur MCT refroidi par azote liquide et couvrant une gamme spectrale de 450 à 9000 cm^{-1} . L'acquisition et le traitement des spectres se fait à l'aide du logiciel OPUS (développé par Bruker).

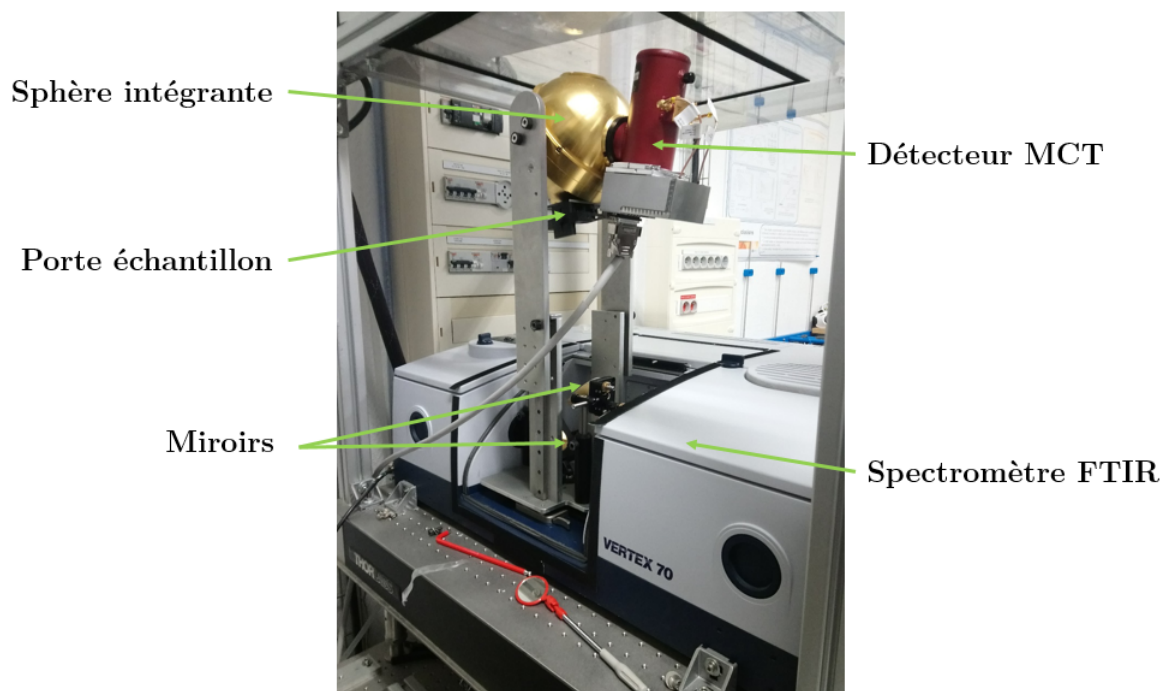


FIGURE 2.3 – Photographie du dispositif expérimental de spectroscopie FTIR à température ambiante.

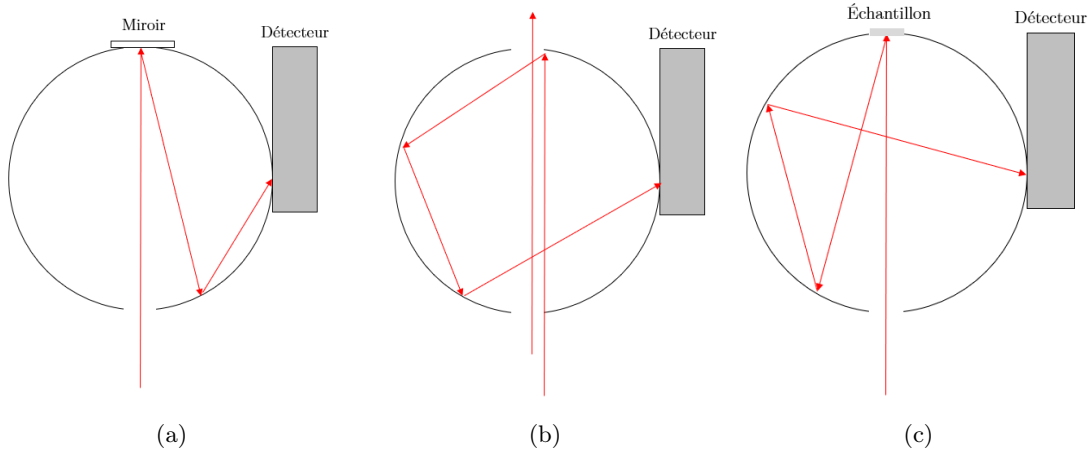


FIGURE 2.4 – Illustrations des différentes mesures de flux permettant le calcul d’une réflectance normale-hémisphérique : (a) F_{ref} (b) F_{trou} (c) F_{ech} . Des exemples de chemins optiques du rayonnement sont illustrés en rouge. La mesure $F_{ambient}$ correspond au schéma (a) mais sans source lumineuse.

Le spectromètre possède deux sources de rayonnement, dans les gammes NIR et MIR. La réflectance normale-hémisphérique se calcule par les contributions de 4 mesures. La première consiste à placer un miroir sur le haut de la sphère (Fig. 2.4a). De cette façon, tout le rayonnement incident est réfléchi dans la sphère et capté par le détecteur. Cette mesure, nommée F_{ref} sert de référence.

Une deuxième mesure est réalisée dans la même disposition mais cette fois-ci en coupant la source de rayonnement. Le flux mesuré $F_{ambient}$ (Fig. 2.4a sans la source lumineuse) correspond alors au bruit induit par l’environnement et l’électronique (qui chauffe donc rayonne également). La troisième mesure F_{trou} (Fig. 2.4b) consiste à enlever le miroir au dessus de la sphère. Cela permet de déterminer le flux qui est réfléchi par les bords de la sphère.

Finalement, la dernière mesure F_{ech} consiste à placer l’échantillon sur le dessus de la sphère (Fig. 2.4c). La réflectance normale-hémisphérique est alors égale à :

$$\rho_{\sigma,mes}^{\cap} = \frac{F_{ech} - (F_{trou} - F_{ambient})}{F_{ref} - (F_{trou} - F_{ambient})} \quad (2.1)$$

Une mesure de transmittance normale-hémisphérique est plus simple à réaliser. En effet, celle-ci correspond au ratio du flux transmis dans la sphère après avoir traversé l’échantillon F_{ech} et le flux transmis lorsque l’échantillon n’est pas présent F_{ref} (Eq. 2.2 et Fig. 2.5).

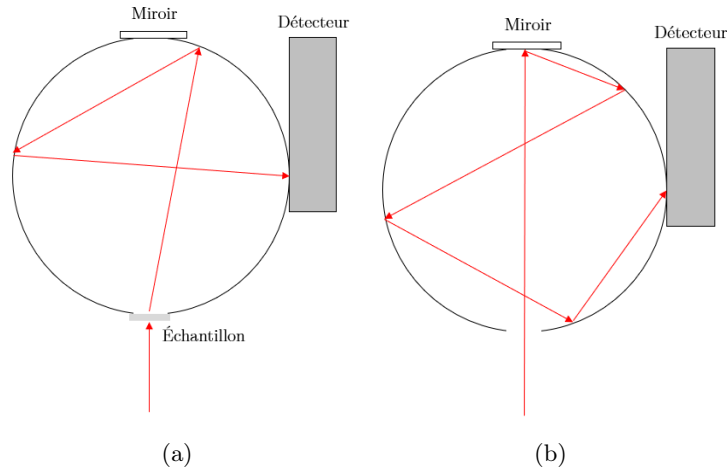


FIGURE 2.5 – Illustration des différentes mesures de flux permettant le calcul d'une transmittance normale-hémisphérique : (a) F_{ech} (b) F_{ref} .

$$\tau_{\sigma,mes}^{\cap} = \frac{F_{ech}}{F_{ref}} \quad (2.2)$$

L'incertitude expérimentale sur les mesures de réflectance et transmittance est estimée à 0,01 en absolu dans les gammes spectrales de semi-transparence et transparence.

2.2.2 Mesure d'émittance directionnelle en température

Comme cela a été montré dans le Chapitre 1 (§1.3.3), l'émittance d'un corps réel peut s'exprimer comme le ratio de sa luminance avec celle du corps noir à la même température. C'est sur cette propriété thermo-radiative particulière que repose le dispositif expérimental présenté ci-après (Fig. 2.6 et 2.7).

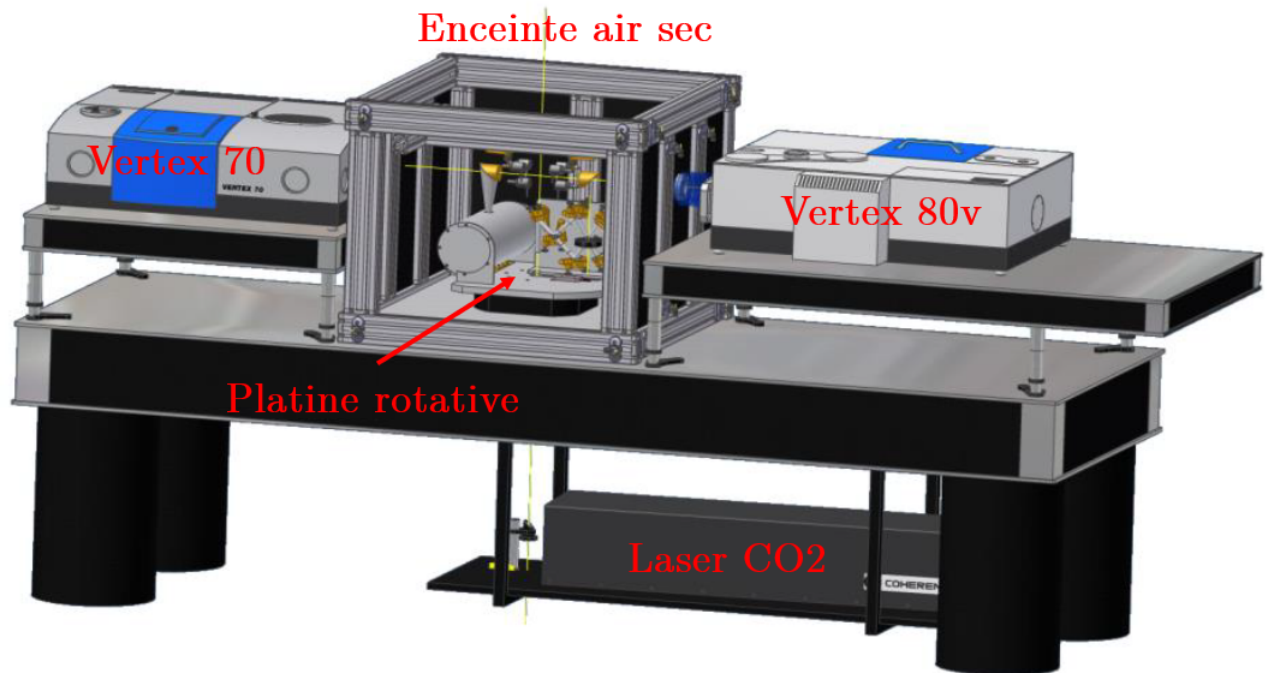


FIGURE 2.6 – Dispositif expérimental de mesure d'émittance directionnelle en température.

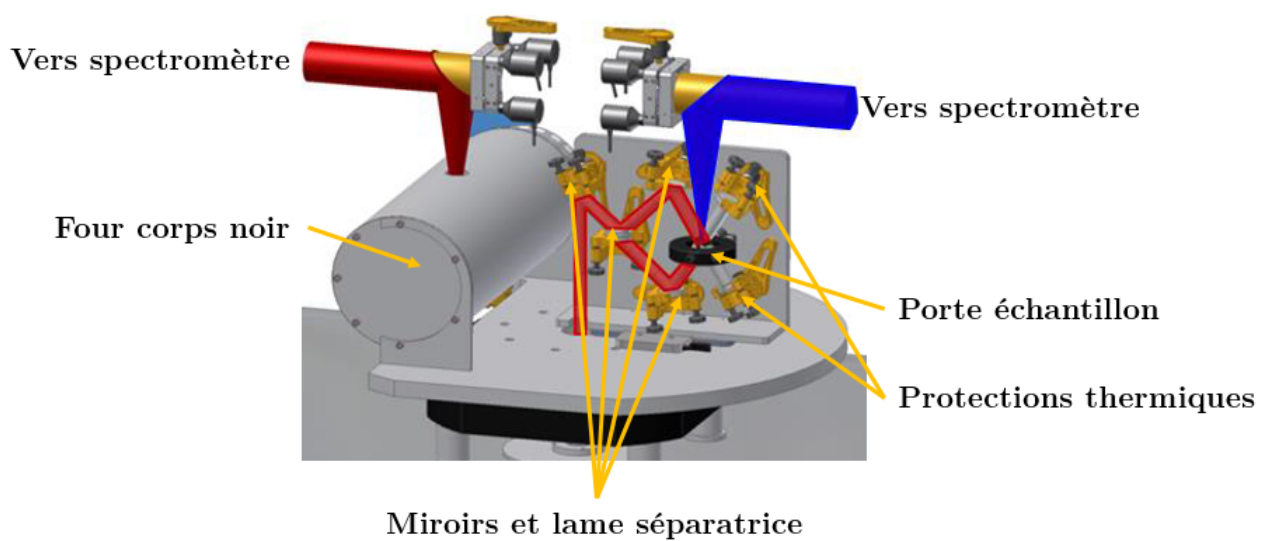


FIGURE 2.7 – Platine "trois positions" du dispositif expérimental.

Il est tout d'abord composé d'une enceinte sous air sec (H_2O est purgé). À l'intérieur de celle-ci, on trouve une platine rotative "trois positions" (Fig. 2.7) sur laquelle sont positionnés un four corps noir et un système optique permettant le chauffage homogène d'un échantillon par laser CO_2 (détaillé ci-dessous). Deux spectromètres FTIR de chez Bruker, le Vertex 70 travaillant sous air sec et un Vertex 80v travaillant sous vide, sont raccordés à l'enceinte pour mesurer les flux émis par le four, l'échantillon ou le flux ambiant dans l'enceinte.

L'intérêt de travailler avec deux spectromètres est de pouvoir couvrir une large gamme spectrale. En effet, en faisant tourner la platine, il est possible de mesurer consécutivement un flux dans le visible et le NIR avec le Vertex 70 et un flux dans le MIR voire le FIR avec le Vertex 80v pour une même température. La Table 2.1 présente les différentes configurations de mesure possibles et les gammes spectrales associées.

	Détecteur	Séparatrice	Gamme spectrale
Vertex 80v	Bolomètre	Mutlilayer	30-650 cm^{-1}
	DTGS	Ge/KBr	370-7000 cm^{-1}
	DTGS	Ge/KBr	370-7000 cm^{-1}
Vertex 70	InGaAs	Si/Quartz	4000-12000 cm^{-1}
	Diode Si	Si/Quartz	9000-17000 cm^{-1}

TABLE 2.1 – Configurations de mesure des spectromètres Vertex 70 et Vertex 80v.

Le four corps noir est un four Pyrox PY8 (voir Fig. 2.7). Celui-ci est composé d'une cavité cylindrique en chromite de lanthane. Une ouverture de 8 mm de diamètre sert de cible pour la mesure de flux par les spectromètres. Sauf pour des mesures à très hautes températures qui nécessitent d'obtenir une mesure de référence jusque dans le visible, le four est maintenu à une température de 1000°C.

Le chauffage homogène de l'échantillon est assuré par un laser CO_2 de 500 W de 11 mm de diamètre. La zone de mesure du spectromètre est un disque de 2 mm de diamètre. À l'aide de plusieurs miroirs ainsi que d'une lame séparatrice permettant de scinder le faisceau en deux parties de puissances égales, l'échantillon est chauffé sur sa face supérieure et inférieure simultanément (Fig. 2.8).

Le laser utilisé permet de porter l'échantillon jusqu'à environ 2000 K. Deux supports supplémentaires avec des cibles en alumine sont positionnés après le porte-échantillon (en noir sur la Fig. 2.8) pour bloquer le faisceau laser et ne pas endommager le dispositif si jamais l'échantillon venait à se dégrader.

Le spectromètre Vertex 80v fonctionne également comme un pyromètre car il permet de calculer une température grâce au point de Christiansen (ROUSSEAU et al., 2005), nombre d'onde pour lequel un matériau diélectrique se comporte comme un quasi-corps noir et dont l'émittance $\varepsilon_{Christiansen}$ est considérée égale à 1.

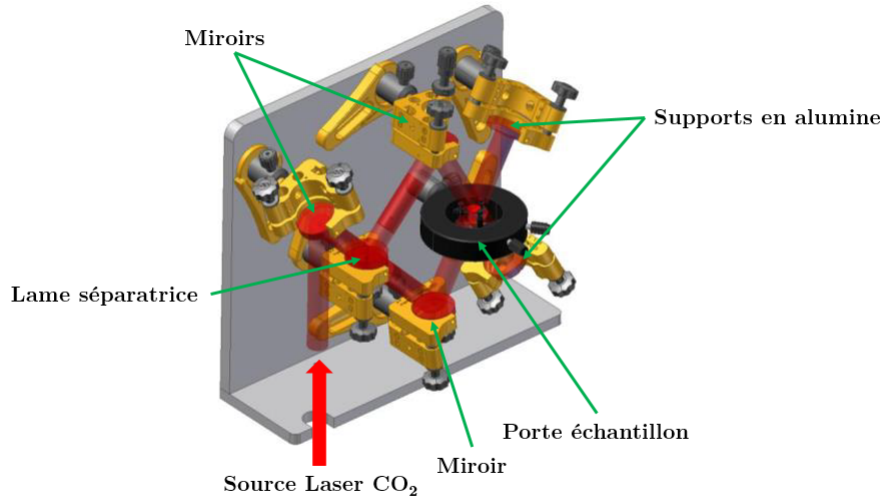


FIGURE 2.8 – Modélisation du trajet optique du laser (en rouge) permettant le chauffage homogène de l'échantillon positionné sur le porte échantillon (en noir).

L'équation 1.16, présentée au chapitre précédent et rappelée ici, n'est pas applicable directement à cause du rayonnement parasite qui est induit par l'environnement et l'instrumentation.

$$\varepsilon(\sigma, T, \Omega) = \frac{L(\sigma, T, \Omega)}{L^o(\sigma, T)} \quad (1.16)$$

Il est nécessaire de réaliser certaines corrections sur le spectre qui sont amplement détaillées dans ces deux références (DE SOUSA MENESES et al., 2015)(BOUVRY, 2015). L'incertitude de mesure du dispositif est estimée à 0,02 en absolu sur les gammes spectrales de semi-transparence et transparence.

2.3 Génération de milieux poreux numériques

Le CEMHTI a développé un code de génération d'objets permettant de créer des structures numériques poreuses à partir d'éléments géométriques simples et de lois de distributions statistiques des propriétés des objets (e. g. rayon, orientation) (BOUVRY, 2015)(NZIE, 2021). L'intérêt d'une telle démarche est de pouvoir générer des échantillons de grandes tailles en comparaison à celles de leurs constituants et ce dans un laps de temps relativement court pour des puissances de calculs disponibles sur un ordinateur classique (e. g. ordinateur destiné à la bureautique). L'utilisation de ce programme ne peut se faire sans une étude préalable de la microstructure du matériau d'intérêt. Le déroulement de cette étude est justement décrit dans la section ci-après. Le fonctionnement du programme en lui-même est développé ensuite.

2.3.1 Etude morphologique de la microstructure

Dans ces travaux, l'étude morphologique des matériaux a été réalisée principalement par microtomographie à rayons X. En effet, comme cela a été vu au chapitre précédent (§1.1.2), cette technique non destructive présente l'avantage de pouvoir sonder un volume et pas seulement une surface. De plus, certains dispositifs disponibles sur les lignes synchrotron comme ceux de l'ESRF (ESRF, 2022) atteignent des résolutions telles qu'il est possible d'analyser et de reconstruire en 3D les microconstituants des matériaux étudiés dans ces travaux.

Les données extraites d'une mesure par microtomographie sont un ensemble de coupes 2D en niveau de gris (des images) issues d'une étape de reconstruction 3D de la microstructure. Un traitement est alors nécessaire pour distinguer correctement les différentes phases entre elles (segmentation) et identifier séparément chacun des microconstituants (labellisation). Cette dernière étape permet alors de déduire des lois de distributions statistiques pour chacune des phases solides du milieu.

Dans cette étude, ces étapes de traitement d'image ont été réalisées à l'aide du logiciel IPSDK développé par l'entreprise Reactiv'Ip (IPSDK, 2022). La concaténation des coupes 2D seuillées permet d'obtenir un volume en 3D segmenté. Plusieurs cas appliqués sont présentés au Chapitre 3.

La Figure 2.9 est un exemple des différentes étapes de traitement des images décrites ci-dessus.

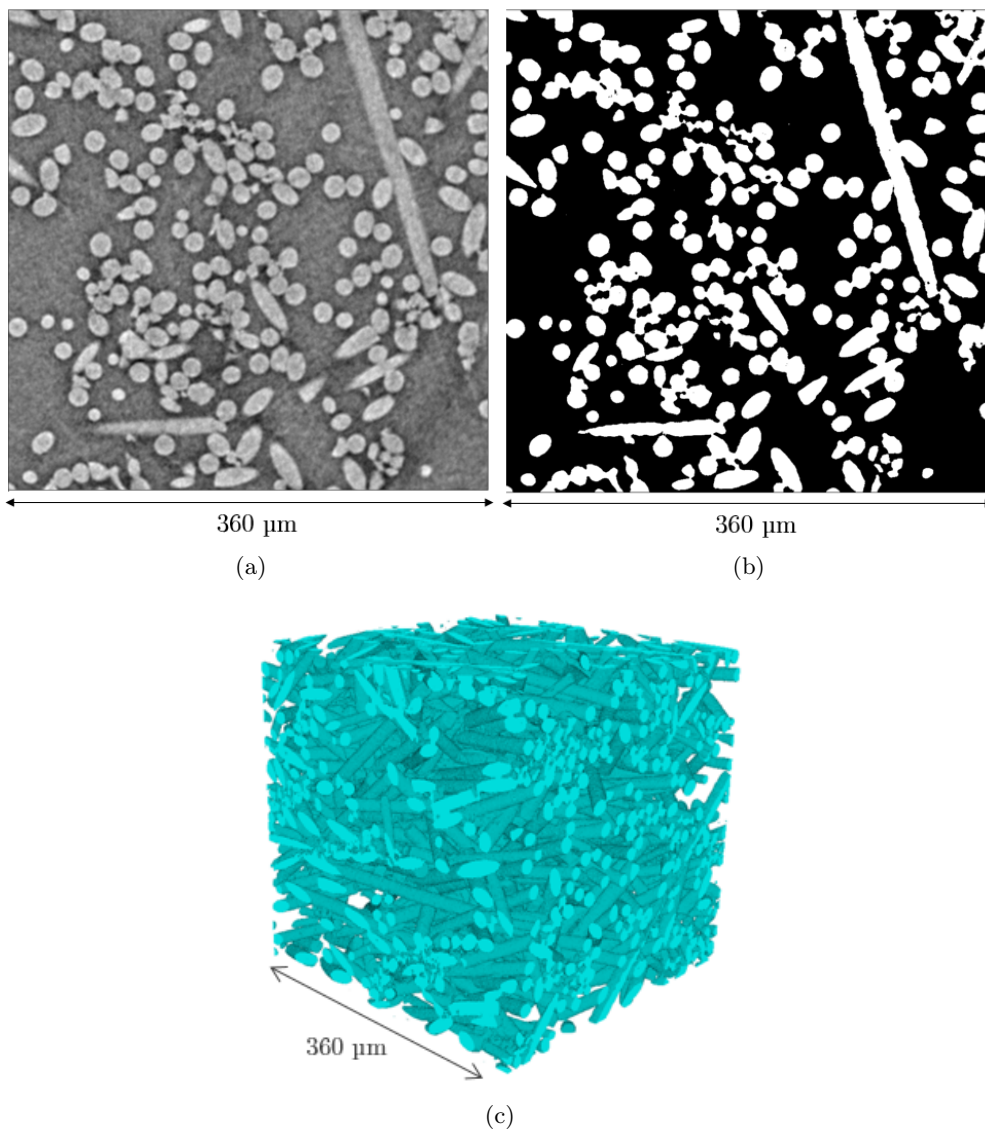


FIGURE 2.9 – Coupes 2D obtenues par microtomographie X sur un feutre de silice fibreux (a) en niveau de gris, (b) segmentée (les fibres sont en blanc et la phase fluide en noir), et (c) une reconstruction 3D de la microstructure segmentée. Les voxels mesurent $0,360\ \mu\text{m}$ de côté.

2.3.2 Le générateur d'objets

Trois types d'objets sont modélisables avec le générateur : des sphères, des ellipsoïdes et des capsules. Ceux-ci sont générés à partir des lois de distribution statistiques extraites des volumes tomographiés.

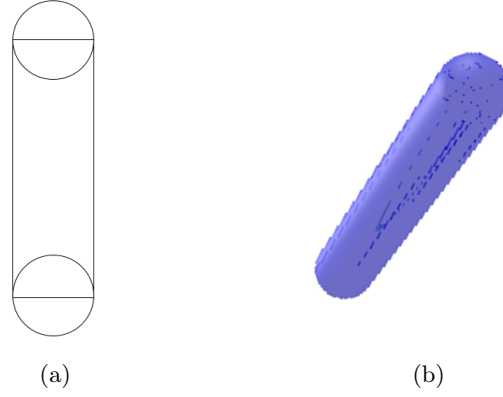


FIGURE 2.10 – (a) Schéma d'une capsule, objet composé de deux sphères et d'un cylindre fini et (b) une représentation en 3D.

Une capsule est un objet composé d'un cylindre fini et de deux sphères dont les centres sont ceux des bases du cylindre (Fig. 2.10). Cet objet permet de modéliser des fibres. Le choix de travailler avec celui-ci plutôt qu'avec des cylindres finis uniquement est justifié plus loin dans cette section.

2.3.2.1 Propriétés géométriques des objets

Les sphères sont définies par une loi de distribution en taille unique pour leur rayon. Les ellipsoïdes sont définies par six lois, une pour leurs dimensions dans chaque direction de l'espace et une pour leurs orientations dans l'espace (angles d'Euler $\hat{\alpha}$, $\hat{\beta}$, $\hat{\chi}$) par rapport à chacun des axes. Les capsules, qui représentent les fibres, sont définies par une première loi pour leurs rayons, une deuxième pour leurs longueurs et trois lois pour leurs orientations dans l'espace. L'orientation est calculée grâce à la matrice de rotation $R(\hat{\chi}, \hat{\beta}, \hat{\alpha})$, produit de trois matrices de rotations élémentaires résultantes des rotations autour des axes x , y et z consécutivement (Fig. 2.11).

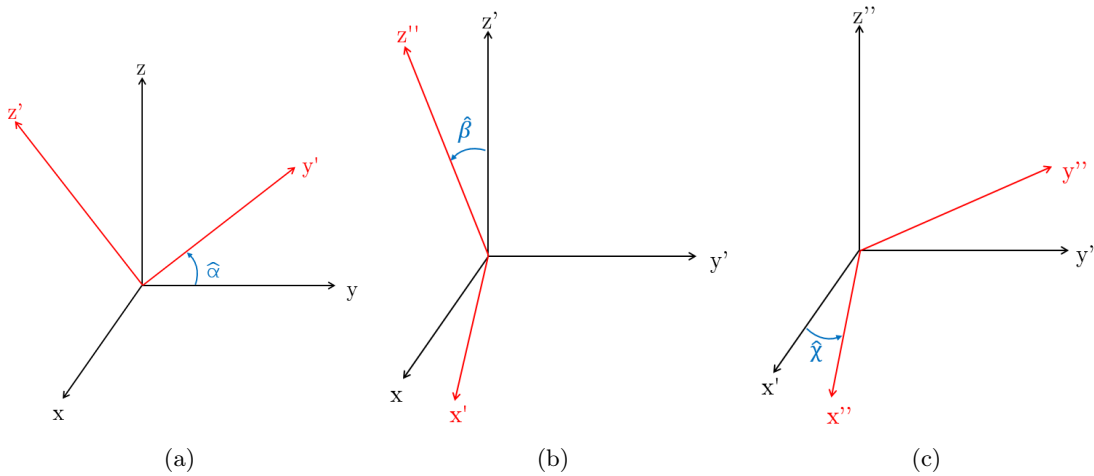


FIGURE 2.11 – Convention géométrique utilisée pour le calcul de l'orientation des objets numériques.

Les conventions de rotation du code du CEMHTI sont les mêmes que celles employées par le logiciel IPSDK, soit :

$$R(\hat{\chi}, \hat{\beta}, \hat{\alpha}) = R_z(\hat{\chi})R_y(\hat{\beta})R_x(\hat{\alpha}) \quad (2.3)$$

$$R_x(\hat{\alpha}) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\hat{\alpha}) & -\sin(\hat{\alpha}) \\ 0 & \sin(\hat{\alpha}) & \cos(\hat{\alpha}) \end{pmatrix} \quad (2.4)$$

$$R_y(\hat{\beta}) = \begin{pmatrix} \cos(\hat{\beta}) & 0 & \sin(\hat{\beta}) \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin(\hat{\beta}) & 0 & \cos(\hat{\beta}) \end{pmatrix} \quad (2.5)$$

$$R_z(\hat{\chi}) = \begin{pmatrix} \cos(\hat{\chi}) & -\sin(\hat{\chi}) & 0 \\ \sin(\hat{\chi}) & \cos(\hat{\chi}) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

$$R(\hat{\chi}, \hat{\beta}, \hat{\alpha}) = \begin{pmatrix} \cos(\hat{\chi})\cos(\hat{\beta}) & \cos(\hat{\chi})\sin(\hat{\beta})\sin(\hat{\alpha}) - \sin(\hat{\chi})\cos(\hat{\alpha}) & \cos(\hat{\chi})\sin(\hat{\beta})\cos(\hat{\alpha}) + \sin(\hat{\chi})\sin(\hat{\alpha}) \\ \sin(\hat{\chi})\cos(\hat{\beta}) & \sin(\hat{\chi})\sin(\hat{\beta})\sin(\hat{\alpha}) + \cos(\hat{\chi})\cos(\hat{\alpha}) & \sin(\hat{\chi})\sin(\hat{\beta})\cos(\hat{\alpha}) - \cos(\hat{\chi})\sin(\hat{\alpha}) \\ -\sin(\hat{\beta}) & \cos(\hat{\beta})\sin(\hat{\alpha}) & \cos(\hat{\beta})\cos(\hat{\alpha}) \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

2.3.2.2 Fonctionnement général du générateur

Le générateur d'objet permet de créer des volumes d'échantillons de formes cylindriques (Fig. 2.12a) ou parallélépipédiques (2.12b), avec des morphologies différentes (Fig. 2.12d). Pour fonctionner, le programme doit être alimenté par un fichier d'entrée renseignant plusieurs informations :

- la forme et les dimensions de l'échantillon,
- les dimensions de la cellule élémentaire si l'échantillon est périodique (voir §2.3.2.3),
- les propriétés de chacune des phases (type d'objet, fraction volumique, distributions de taille et d'orientation).

Pour chaque nouvel objet d'une phase, la taille et l'orientation (si ce n'est pas une sphère) sont déterminées à partir des lois statistiques données en entrée (distribution de dirac, uniforme, normale, log-normale, de Weibull, de Cauchy et loi de puissance). La position de l'objet dans le volume est ensuite choisie aléatoirement selon une loi de distribution uniforme. Si les objets peuvent s'intersecter entre eux alors l'objet est généré à la position choisie, sinon un test est réalisé pour vérifier que la place est libre. Si ce n'est pas le cas, une nouvelle position est de nouveau choisie aléatoirement et les tests sont renouvelés. Les objets sont ainsi générés jusqu'à ce que la fraction volumique de la phase soit atteinte. Les différentes opérations détaillées ci-dessus sont répétées pour chacune des phases. Les dimensions des objets générés, leur orientation (s'il y a lieu), leur position ainsi que la phase à laquelle ils appartiennent sont finalement enregistrées dans un fichier qui peut être lu par le code MCRT.

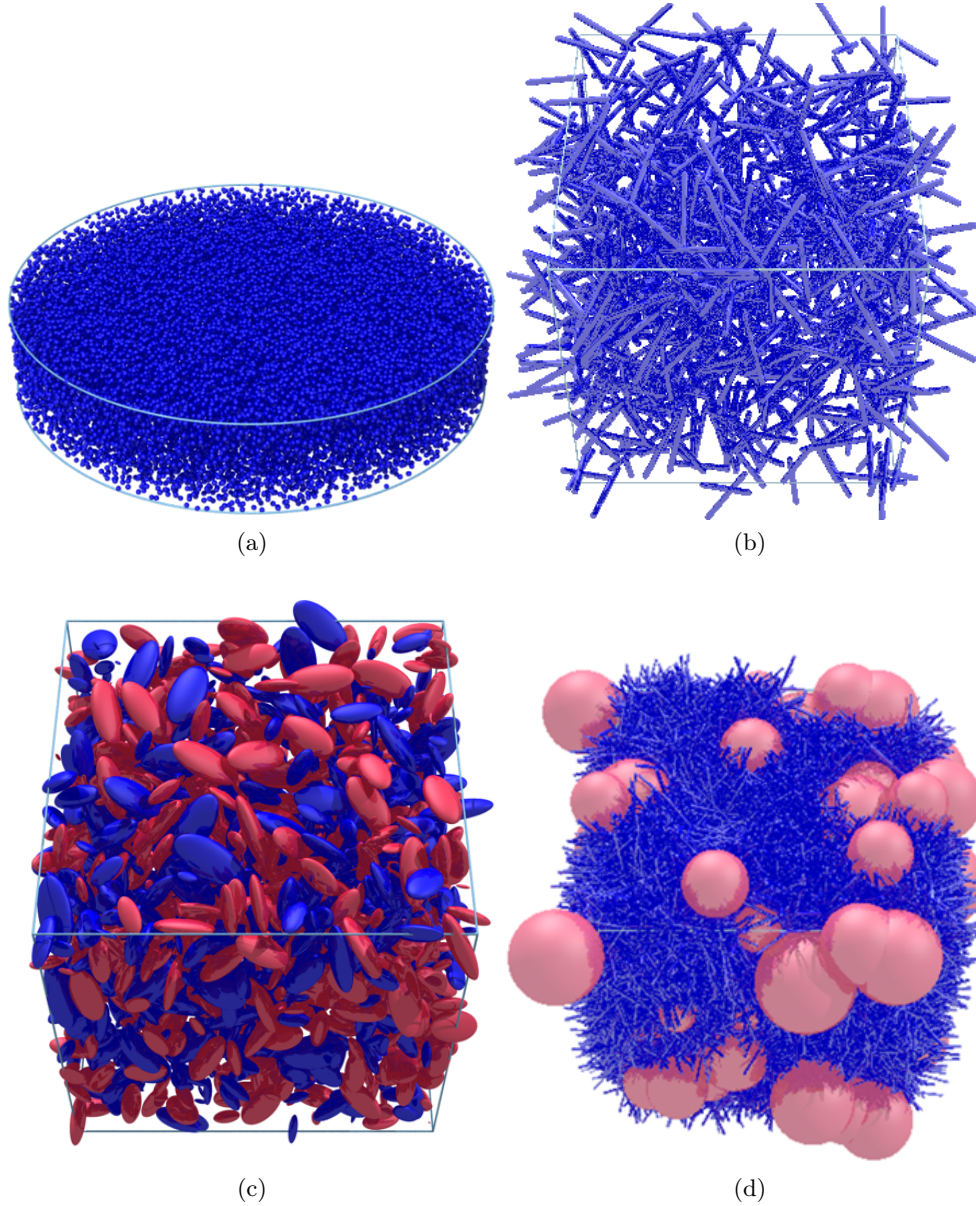


FIGURE 2.12 – Microstructures numériques générées avec l’outil du CEMHTI et composées de : (a) sphères, (b) de capsules, (c) d’ellipsoïdes, (d) de capsules et de sphères.

2.3.2.3 Périodicité des échantillons

L’échantillon numérique final peut être généré à partir d’une cellule élémentaire périodisée et dupliquée dans les trois dimensions de l’espace. De cette façon, il est possible de générer des échantillons dont les dimensions correspondent aux volumes utilisés en spectroscopie FTIR mais avec un besoin en mémoire limité.

La périodisation consiste à reproduire la portion du volume d’un objet sortant de la cellule élémentaire sur la face opposée de cette dernière (Fig. 2.13). En trois dimensions, la gestion de la périodicité est un peu plus complexe, notamment dans certains cas, comme lorsqu’un objet chevauche plusieurs arrêtes de la cellule élémentaire en même temps. C’est pour cela que les capsules ont été préférées aux cylindres finis pour représenter les fibres. En effet, il est plus simple de réaliser des tests d’intersections et de périodiser des sphères dans l’espace plutôt que des disques. Le nombre

de tests et leur complexité étant réduits, les milieux sont alors générés beaucoup plus rapidement. Cette approximation de modélisation est acceptable car les fibres sont, dans le cas présent, beaucoup plus longues que larges. Par conséquent, il y aura peu d'interactions entre les rayons du MCRT et les extrémités des capsules.

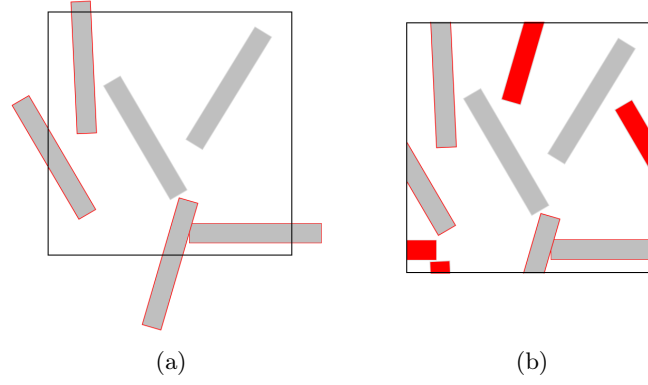


FIGURE 2.13 – (a) Cas 2D d'une cellule élémentaire d'un milieu fibreux, (b) la portion des objets traversant les frontières de la cellule est périodisée (en rouge).

La cellule élémentaire périodique permet de conserver les informations statistiques essentielles de la microstructure. Les dimensions de l'échantillon sont atteintes en dupliquant cette cellule dans l'espace puis en découpant l'échantillon (Fig. 2.14).

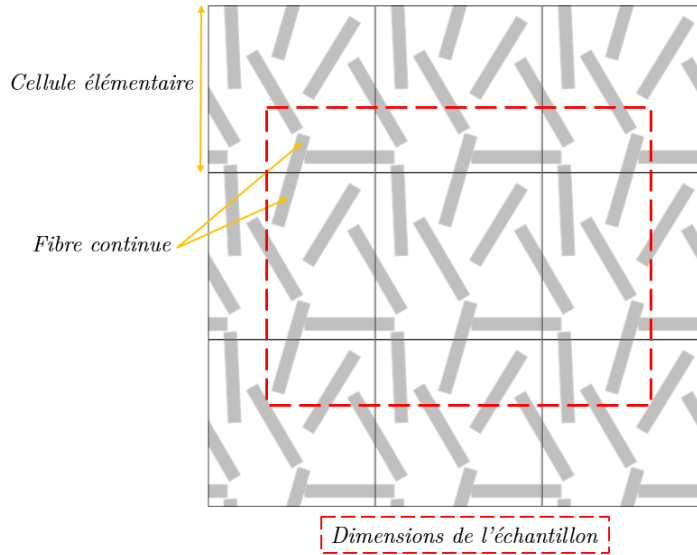


FIGURE 2.14 – Découpe d'un échantillon à partir d'un volume de cellules élémentaires dupliquées.

Lors du découpage, le centre de l'échantillon correspond au centre de la structure dupliquée. L'influence de la découpe (interactions aux limites de l'échantillon) sur la simulation des propriétés radiatives est discutée dans une des sections suivantes (§2.4.5). Il sera montré par la suite que les dimensions de la cellule élémentaire à dupliquer doivent être adaptées au matériau étudié pour obtenir un volume élémentaire représentatif.

2.4 Lancer de rayon par méthode de Monte Carlo

Ces travaux de thèse se sont appuyés sur un code de lancer de rayons par méthode de Monte Carlo (MCRT) en développement au CEMHTI depuis la fin des années 90. Jusqu'au début de ces travaux de thèse, celui-ci permettait de simuler les propriétés radiatives de milieux constitués de sphères ou d'ellipsoïdes. Il a donc été nécessaire de modifier ce code pour pouvoir modéliser les interactions entre des rayons et des capsules.

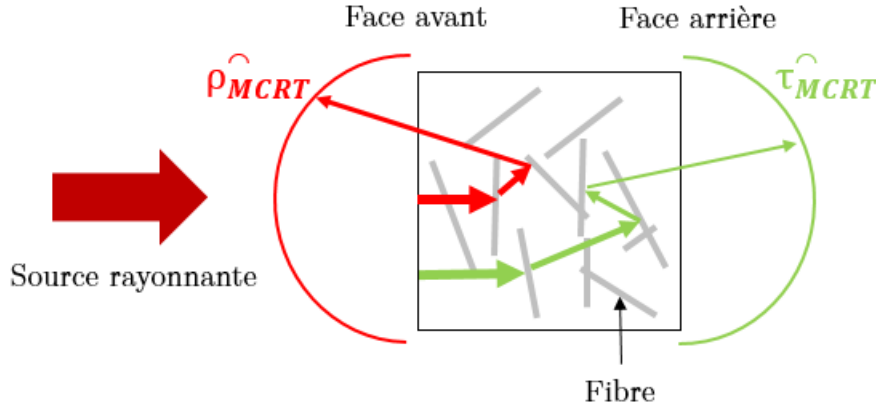


FIGURE 2.15 – Schéma de principe d'une simulation réalisée avec le code MCRT. Les rayons quittant l'échantillon par la face avant (en rouge) participent au calcul de la réflectance hémisphérique alors que ceux qui quittent l'échantillon par la face arrière (en vert) permettent le calcul de la transmittance hémisphérique.

L'objectif du code est de propager une quantité importante de rayons lumineux dans un échantillon numérique pour calculer une réflectance et une transmittance normales-hémisphériques spectrales en comptabilisant les intensités des rayons quittant les échantillons en face avant et arrière (Fig. 2.15) et d'en déduire une émittance (le déroulement du calcul est détaillé plus loin).

2.4.1 Approximation de l'optique géométrique

La technique MCRT se base sur l'approximation de l'optique géométrique. Les rayons lumineux se propagent alors en lignes droites et la réflexion aux interfaces est spéculaire. Un critère utile de validité de cette approximation est le paramètre de taille x qui doit être grand devant l'unité, ou, en d'autres termes, que la taille caractéristique des particules (i. e. leur rayon r) est grande devant la longueur d'onde du rayonnement.

$$x = 2\pi r\sigma > 1 \quad (2.8)$$

Le domaine d'applicabilité de cette technique varie donc en fonction de la taille caractéristique des particules et de la gamme spectrale étudiée. Il ne sera par exemple pas possible de simuler les propriétés radiatives de sphères micrométriques dans le lointain infrarouge avec celle-ci.

2.4.2 Fonctionnement général du code

Le code ainsi développé au CEMHTI est écrit en langage *C++*. Celui-ci n'est pas parallélisé mais cela est clairement une voie d'amélioration de l'outil à emprunter par la suite. Un échantillon numérique est éclairé par une source lumineuse modélisée par un ensemble de rayons. Chaque rayon

suit un parcours aléatoire et l'étude de ce dernier ainsi que de la position finale du rayon (sortie de l'échantillon ou absorption en son sein) permet de déterminer une réflectance et une transmittance hémisphérique (Fig. 2.15).

2.4.2.1 Initialisation du calcul

La structure numérique est tout d'abord chargée à partir d'un fichier regroupant plusieurs informations issues du générateur d'objet :

- sa forme (parallélépipédique ou cylindrique) et ses dimensions,
- les dimensions de la cellule élémentaire si la structure est périodique (voir §2.3.2.3),
- la forme (sphère, ellipsoïde ou capsule), la position, les dimensions et la phase de chaque constituant composant la structure.

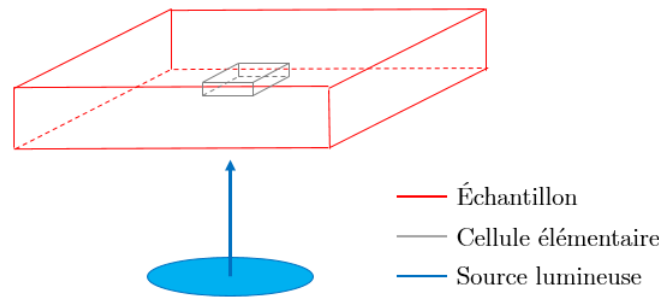


FIGURE 2.16 – Initialisation d'une simulation MCRT : l'échantillon (en rouge), composé d'une cellule élémentaire périodisée (en gris), est limité par une source rayonnante (en bleu).

Les paramètres suivant complètent l'initialisation du calcul :

- la position, la forme, les dimensions ainsi que la direction de la source lumineuse. Celle-ci est généralement orientée normalement à la structure pour reproduire les conditions expérimentales des dispositifs de spectroscopie FTIR,
- l'indice de réfraction et l'indice d'absorption (§1.4) de chacune des phases pour chaque nombre d'onde,
- le nombre de rayons à générer,
- la plage spectrale et le nombre de points (de nombres d'onde) à simuler sur celle-ci,
- le maximum d'interactions que chaque rayon peut réaliser avant d'être considéré comme absorbé,
- les données à enregistrer en sortie.

2.4.2.2 Déroulement du calcul

Pour chaque nombre d'onde, un nombre de rayons N_{rayons} d'intensités propres I_0 est généré. Chaque rayon part d'une position aléatoire sur la section du faisceau lumineux et se propage en ligne droite jusqu'à rencontrer une première interface (celle d'un objet). À chaque fois qu'un rayon rencontre une interface, un nombre aléatoire compris entre zéro et l'unité est comparé au coefficient de Fresnel (HOWELL et al., 2021) calculé avec les indices des deux phases concernées par l'interface et l'angle d'incidence. Si ce nombre aléatoire est inférieur au coefficient de Fresnel, le rayon est réfléchi, sinon il est réfracté. La nouvelle direction de propagation est calculée par la loi de Snell-Descartes (réflexion spéculaire, (HOWELL et al., 2021)) à partir de la normale à l'interface au point d'intersection.

Chaque événement subi par un rayon est sauvegardé et le périple de ce dernier se termine lorsque qu'il quitte l'échantillon ou s'il a subi un nombre d'évènements suffisamment importants (e. g. 10^9 interactions) pour qu'il soit considéré comme absorbé à sa dernière position connue. Ce dernier critère d'arrêt évite qu'un rayon ne soit piégé trop longtemps dans l'échantillon, ce qui bloquerait alors la progression du calcul.

Comme l'historique du rayon est sauvegardée, on peut déterminer les distances l^p qu'il a parcourues dans chacune des phases p du milieu et calculer son intensité finale à l'aide de la loi de Beer-Lambert :

$$I_{finale} = I_0 \exp\left(-\sum_{p=1}^n \kappa_{abs,\sigma}^p \times l^p\right) \quad (2.9)$$

avec $\kappa_{abs,\sigma}^p$ le coefficient d'absorption spectral d'une phase p .

Lorsque tous les rayons ont été lancés pour un nombre d'onde donné, on peut alors calculer la réflectance et la transmittance normales-hémisphériques spectrales et en déduire l'émittance spectrale à l'aide de la loi de Kirchhoff définie pour un milieu diffusant (Eq. 1.15).

$$\varepsilon(\sigma, T) = 1 - \rho^\cap(\sigma, T) - \tau^\cap(\sigma, T) \quad (1.15)$$

La réflectance normale-hémisphérique spectrale est définie par le rapport entre la somme des intensités des rayons quittant l'échantillon par la face d'incidence du rayonnement sur l'intensité totale incidente :

$$\rho_{MCRT,\sigma}^\cap = \frac{\sum_{i=1}^{N_{rayons}} I_{finale,incidence,i}}{I_0 \times N_{rayons}} \quad (2.10)$$

La transmittance normale-hémisphérique spectrale se calcule de la même manière, mais cette fois-ci en considérant les intensités des rayons quittant l'échantillon par la face opposée :

$$\tau_{MCRT,\sigma}^\cap = \frac{\sum_{i=1}^{N_{rayons}} I_{finale,oppose,i}}{I_0 \times N_{rayons}} \quad (2.11)$$

Les échantillons étant généralement plus larges qu'épais, le transfert d'énergie se fait dans le sens l'épaisseur. Les pertes radiatives par les bords de l'échantillon sont alors négligeables (ce critère est vérifié à chaque calcul).

2.4.3 Intersections entre un rayon et une capsule

Comme cela a été présenté en section §2.3.2, une capsule est composée de deux sphères ainsi que d'un cylindre fini avec lesquels des tests d'intersections avec un rayon doivent être réalisés. Cette sous-section présente le développement mathématique permettant la réalisation de ces tests.

2.4.3.1 Intersection entre une droite et une sphère

Le calcul des intersections entre un rayon lumineux et une sphère peut être réalisé de plusieurs façons. La méthode de résolution choisie dans le cas présent est géométrique.

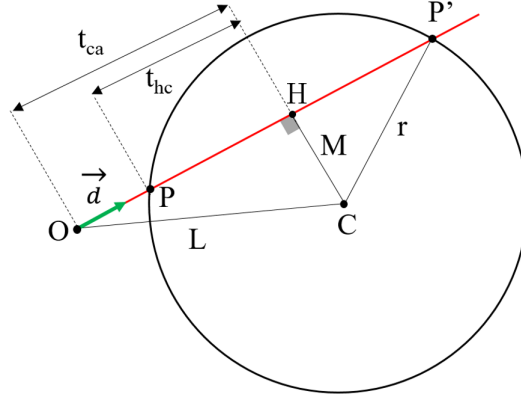


FIGURE 2.17 – Schéma d'intersection entre un rayon lumineux d'origine O et de direction $\vec{d}$ et une sphère. P et P' sont les deux solutions d'intersection possibles.

Lorsqu'il y a intersection entre une droite et une sphère, deux solutions sont à considérer : les points P et P' (Fig. 2.17), définis par :

$$\begin{cases} \vec{OP} = t_0 \vec{d} \\ \vec{OP'} = t_1 \vec{d} \end{cases} \quad (2.12)$$

On note que le cas particulier où le rayon lumineux est tangent à la sphère (un point d'intersection) n'est pas traité ici car cette situation n'est pas considérée comme une solution d'intersection dans le code.

Soit t_{ca} , le produit scalaire entre les vecteurs $\vec{OC}$ et $\vec{OP}$:

$$t_{ca} = \vec{OC} \cdot \vec{OP} \quad (2.13)$$

Si t_{ca} est négatif, le rayon pointe dans la mauvaise direction et il n'y a pas d'intersection avec la sphère considérée.

Soit L la norme du vecteur $\vec{OC}$ et M la norme du vecteur $\vec{CH}$. En appliquant tout simplement le théorème de Pythagore, on a :

$$M = \sqrt{L^2 - t_{ca}^2} \quad (2.14)$$

Si M est supérieur au rayon de la sphère, il n'y alors pas d'intersection. Finalement, en appliquant une seconde fois le théorème de Pythagore, on peut déterminer les deux solutions d'intersections t_0 et t_1 (r est le rayon de la sphère) :

$$M^2 + t_{hc}^2 = r^2 \quad (2.15)$$

$$t_{hc} = \sqrt{r^2 - M^2} \quad (2.16)$$

$$\begin{cases} t_0 = t_{ca} - t_{hc} \\ t_1 = t_{ca} + t_{hc} \end{cases} \quad (2.17)$$

La solution physique acceptable est alors celle la plus proche de la position d'origine O .

2.4.3.2 Intersection entre un rayon et un cylindre fini

Le calcul des intersections entre un rayon lumineux et un cylindre fini de rayon r peut également être réalisé par une approche géométrique (Fig. 2.18).

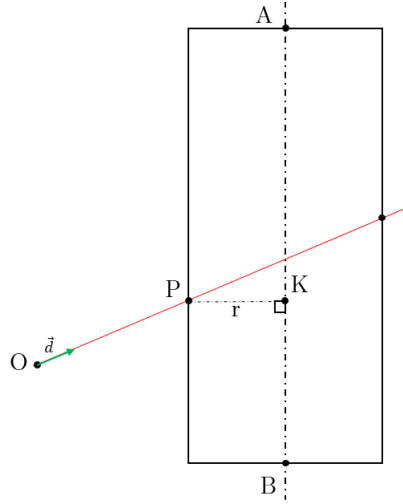


FIGURE 2.18 – Schéma d'intersection entre un cylindre fini de rayon r et un rayon lumineux d'origine O et de direction $\vec{d}$. Le point K est le projeté du point d'intersection P sur l'axe (AB) .

Soit un rayon lumineux défini par le système suivant :

$$\vec{OP} = t \vec{d} \quad (2.18)$$

Le projeté K du point P sur l'axe $\vec{AB}$ vérifie :

$$\vec{KA} = -t' \vec{AB} \quad (2.19)$$

ce qui mène à :

$$\vec{AB} \cdot \vec{KP} = 0 \quad (2.20)$$

D'après la relation de Chasles, il est possible d'écrire :

$$\begin{cases} \vec{KP} = \vec{KA} + \vec{AP} \\ \vec{AO} = \vec{AP} + \vec{PO} \end{cases} \quad (2.21)$$

donc :

$$\vec{AP} = \vec{AO} - \vec{PO} = \vec{AO} + \vec{OP} \quad (2.22)$$

En injectant les relations 2.18, 2.19 et 2.21 dans l'équation (2.20) :

$$\begin{aligned} \vec{AB} \cdot \vec{KP} &= \vec{AB} \cdot (\vec{KA} + \vec{AP}) \\ &= \vec{AB} \cdot (\vec{KA} + \vec{AO} + \vec{OP}) \\ &= \vec{AB} \cdot (\vec{AO} + t \vec{d} - t' \vec{AB}) = 0 \end{aligned} \quad (2.23)$$

$$\vec{AB} \cdot \vec{AO} + \vec{AB} \cdot t \vec{d} - t' \vec{AB} \cdot \vec{AB} = 0 \quad (2.24)$$

$$t' = \underbrace{\frac{\vec{AB} \cdot \vec{AO}}{\vec{AB} \cdot \vec{AB}}}_n + \underbrace{\frac{\vec{AB} \cdot \vec{d}}{\vec{AB} \cdot \vec{AB}}}_m t \quad (2.25)$$

$$t' = tm + n \quad (2.26)$$

Il existe au moins une intersection entre le corps de la capsule et un rayon si la norme de $\overrightarrow{KP}$ est égale au rayon r du cylindre.

$$\|\overrightarrow{KP}\| = \|\overrightarrow{AO} + t\overrightarrow{d} - \overrightarrow{AB}t'\| = r \quad (2.27)$$

Soit en exprimant t' comme une fonction de t (voir 2.26) :

$$\|\overrightarrow{AO} + t\overrightarrow{d} - \overrightarrow{AB}(tm + n)\| = r \quad (2.28)$$

$$(\overrightarrow{AO} + t\overrightarrow{d} - \overrightarrow{AB}(tm + n))^2 = r^2 \quad (2.29)$$

$$\overrightarrow{AO}^2 + 2\overrightarrow{AO} \cdot t\overrightarrow{d} - 2\overrightarrow{AO} \cdot \overrightarrow{AB}(tm + n) + t^2\overrightarrow{d}^2 - 2t\overrightarrow{d} \cdot \overrightarrow{AB}(tm + n) + \overrightarrow{AB}^2(tm + n)^2 - r^2 = 0 \quad (2.30)$$

$$(\overrightarrow{AO} - \overrightarrow{AB}n)^2 + t^2(\overrightarrow{d} - \overrightarrow{AB}m)^2 + 2t(\overrightarrow{AO} \cdot \overrightarrow{d} - \overrightarrow{AO} \cdot \overrightarrow{AB}m - \overrightarrow{d} \cdot \overrightarrow{AB}n + \overrightarrow{AB}^2mn) - r^2 = 0 \quad (2.31)$$

L'équation d'intersection peut finalement être réduite à une forme quadratique :

$$\underbrace{(\overrightarrow{AO} - \overrightarrow{AB}n)^2}_{R \cdot R} + 2t \underbrace{(\overrightarrow{AO} - \overrightarrow{AB}n)}_R \cdot \underbrace{(\overrightarrow{d} - \overrightarrow{AB}m)}_Q + t^2 \underbrace{(\overrightarrow{d} - \overrightarrow{AB}m)^2}_{Q \cdot Q} - r^2 = 0 \quad (2.32)$$

et son discriminant est égal à :

$$\Delta = b^2 - 4ac = 4(Q \cdot R)^2 - 4(Q \cdot Q)(R \cdot R - r^2) \quad (2.33)$$

La résolution est alors simple :

- $\Delta < 0$, il n'y a pas de solution, donc pas d'intersection entre le rayon et la fibre sur le corps du cylindre,
- $\Delta = 0$, il y a une intersection et une solution unique $t = \frac{-b}{2a}$
- $\Delta > 0$, deux solutions possibles, $t = \frac{-b \pm \sqrt{\Delta}}{2a}$.

2.4.3.3 Intersection entre un rayon et une capsule

Une capsule étant finalement composée de trois objets (deux sphères et un cylindre), plusieurs solutions mathématiques peuvent exister : un rayon lumineux peut intercepter une ou deux sphères et le cylindre sur son trajet. Des tests de priorité sont donc à réaliser pour déterminer laquelle des différentes solutions possibles est la solution physique. Quelques exemples de tests sont présentés en Figure 2.19.

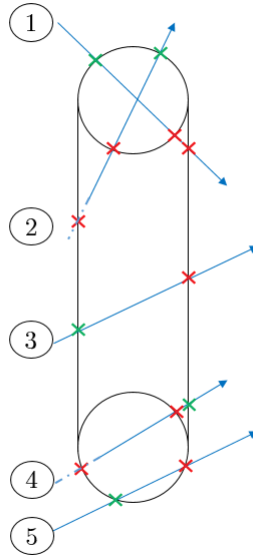


FIGURE 2.19 – Exemples d’intersections entre plusieurs rayons lumineux (en bleu) et une capsule. Plusieurs solutions sont à chaque fois disponibles. Les croix rouges représentent les solutions rejetées et les vertes celles qui sont acceptées. À cause des erreurs d’arrondis numériques, les positions d’origine des rayons ② et ④ se trouvent à l’intérieur de la capsule. Par conséquent, la solution la plus proche n’est pas une solution physique puisque que celle-ci se trouve dans la direction opposée de celle du rayon.

Les erreurs liées aux arrondis numériques doivent également être prises en compte lors du choix de la solution. En effet, le point d’intersection peut être légèrement décalé par rapport à l’interface ce qui génère des solutions supplémentaires qui ne sont pas acceptables.

2.4.4 Incertitudes numériques et temps de calcul

La méthode MCRT étant une méthode stochastique, la précision du calcul dépend du nombre d’échantillons (de rayons). Cependant, plus ce nombre est grand, plus les temps de calculs sont longs. Sur des échantillons poreux de quelques mm^3 et composés de microconstituants, le nombre d’objets peut rapidement devenir conséquent et les intersections entre ces derniers et les rayons très nombreuses. Le temps n’étant pas une ressource infinie, il est nécessaire de réaliser un compromis entre précision et temps de calcul.

Plusieurs simulations sont réalisées à différents nombres d’onde ($1500, 3750, 5000 \text{ cm}^{-1}$) sur un milieu fibreux représentatif des matériaux étudiés par la suite, i. e. avec des fibres orientées aléatoirement, dont les rayons mesurent quelques microns et les longueurs une centaine de microns. Les nombres d’onde étudiés sont représentatifs de gammes spectrales bien particulières, respectivement : zone d’opacité, de semi-transparence et de transparence. Pour chacun d’eux, la même simulation est réalisée 20 fois pour un nombre de rayons constant. La moyenne et l’écart-type de chacune des propriétés radiatives sont alors calculés.

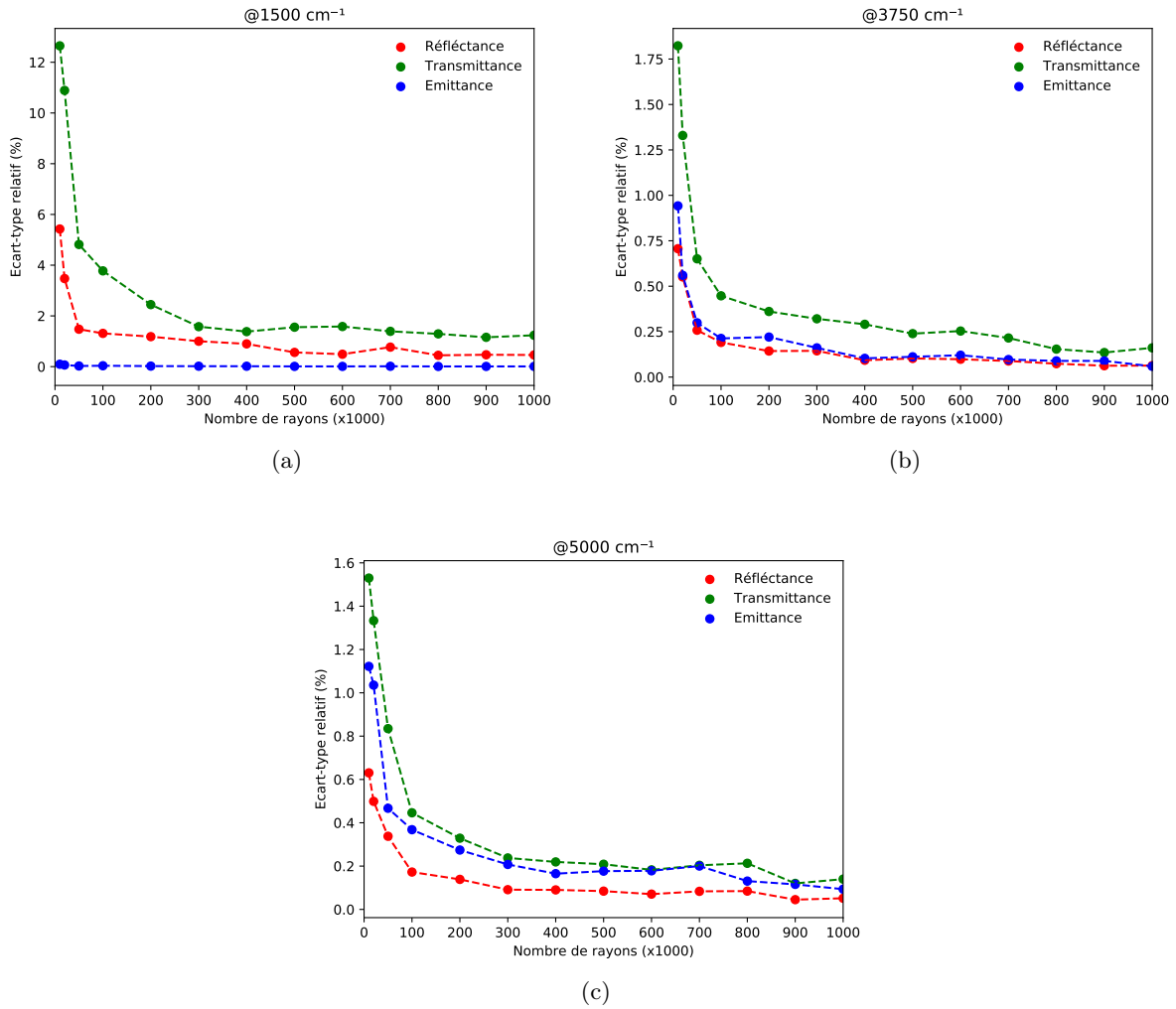


FIGURE 2.20 – Écarts-types relatifs aux propriétés radiatives simulées en fonction du nombre de rayons à 1500, 3750 et 5000 cm⁻¹.

La Figure 2.20 présente ainsi l'évolution de l'écart-type relatif des propriétés radiatives simulées par rapport au nombre de rayons utilisés et ce pour les trois nombres d'onde d'intérêt. Les écarts-types diminuent fortement avec l'augmentation du nombre de rayons jusqu'à une valeur seuil (vers $3 \cdot 10^5$ rayons) au delà de laquelle leur décroissance devient alors très faible voire nulle. Cependant, les écarts-types observés pour 10^5 rayons sont déjà suffisamment faibles. On rappelle qu'à 1500 cm⁻¹ (Fig. 2.20a), la transmittance tend vers zéro (zone d'opacité), un écart-type relatif de 4% est donc tout à fait acceptable.

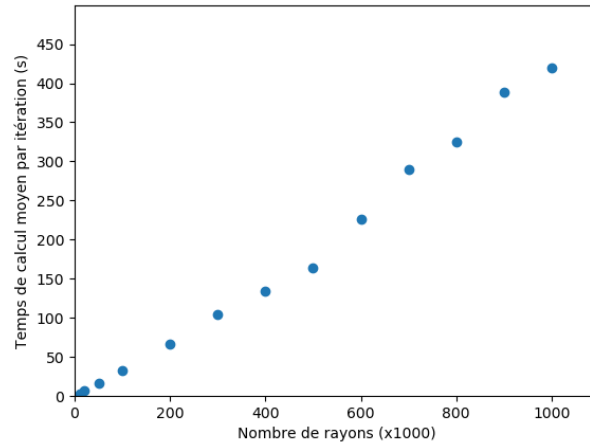


FIGURE 2.21 – Temps de calcul moyen d’une itération du code MCRT en fonction du nombre de rayons.

Par conséquent, un nombre de 10^5 rayons est choisi pour réaliser les simulations, car celui-ci permet d’être suffisamment précis tout en limitant le temps de calcul : pour le cas étudié dans cette section, une itération avec 10^5 rayons dure en moyenne 32,4 s contre 105,8 s pour une itération avec $3 \cdot 10^5$ rayons (Fig. 2.21).

2.4.5 Influence de la découpe de l’échantillon numérique sur la simulation MCRT

Comme cela a été décrit en §2.3.2.3, un échantillon numérique périodique est créé en "découpant" le volume requis au centre d’un plus grand volume composé de cellules élémentaires dupliquées (Fig. 2.14). Les objets chevauchant les limites géométriques de l’échantillon ne sont pas périodisés. La position de la découpe a donc une influence sur ce qui correspond, d’un point de vue physique, à la rugosité de surface de l’échantillon. En effet, en fonction des dimensions de la cellule élémentaire, la coupure pourra se trouver à la limite de celle-ci ou par exemple en son centre (Fig. 2.22).

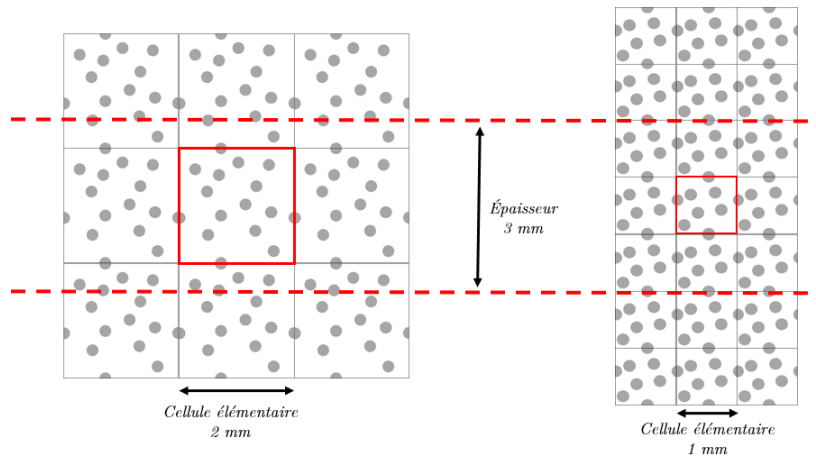


FIGURE 2.22 – Découpe d’un échantillon de 3 mm d’épaisseur à partir de cellules élémentaires de 2 et 1 mm de côté. L’échantillon coupe la cellule de 2 mm dans son épaisseur alors que 3 cellules complètes de 1 mm permettent d’atteindre les bonnes dimensions de l’échantillon.

L'objectif de cette section est donc de quantifier l'impact de la découpe de l'échantillon sur la simulation des propriétés radiatives. Pour cela, un échantillon de la forme d'un pavé de 1 cm de côté et de 3 mm d'épaisseur est généré à partir de deux cellules élémentaires cubiques : une première de 1 mm d'épaisseur et une seconde de 2 mm. Cette échantillon est, de façon similaire à l'étude réalisée en §2.4.4, représentatif des matériaux étudiés par la suite. Une simulation MCRT des propriétés radiatives est réalisée sur chacun des échantillons numériques avec les mêmes indices optiques.

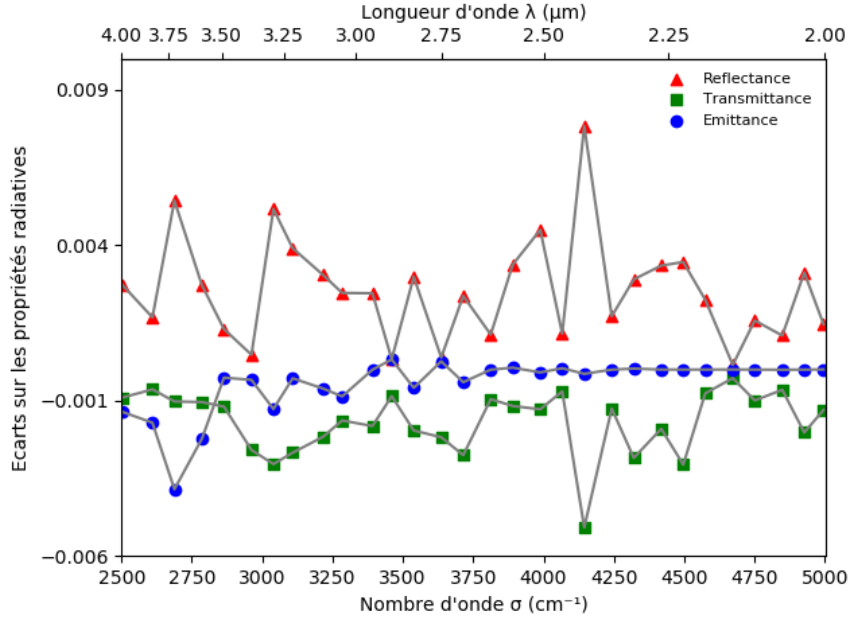


FIGURE 2.23 – Écarts absolus entre les propriétés radiatives simulées par MCRT de deux échantillons de 3 mm d'épaisseur générés avec des cellules élémentaires de respectivement 1 et 2 mm de côté.

Les écarts observés entre les deux simulations (Fig. 2.23) réalisées avec 10^5 rayons ne dépassent pas le pourcent. Ces écarts, inférieurs à l'incertitude de mesures, peuvent également être (en partie) dus à l'incertitude numérique du calcul (§2.4.4). Il est donc possible de conclure que la découpe n'a pas d'influence significative sur la simulation des propriétés radiatives, en supposant que la cellule élémentaire soit représentative du matériau (ce que l'on considère vrai ici).

2.5 Algorithme d'optimisation

L'algorithme d'optimisation de l'indice de réfraction complexe qui a été développé lors de cette thèse se base sur une méthode de minimisation des moindres carrés de type Levenberg-Marquardt (MARQUARDT, 1963). Cette méthode permet de résoudre des problèmes de minimisation non-linéaires de façon itérative par la combinaison de deux autres méthodes : la descente de gradient (CURRY, 1944) et la méthode de Gauss-Newton (BJÖRCK, 1996).

La méthode de Levenberg-Marquardt a été choisie pour sa robustesse et sa vitesse de convergence relativement élevée pour des modèles ayant peu de paramètres à optimiser (dans le cas présent, seulement deux). Celle-ci est également facile d'implémentation, de nombreuses bibliothèques étant disponibles en accès libre en ligne. Pour ces travaux, la bibliothèque ALGLIB (BOCHKANOV, 2022) a été utilisée.

L'algorithme d'optimisation a été spécialement développé pour la méthodologie. Il est écrit en langage *C++*. Son objectif est d'identifier la valeur de l'indice de réfraction complexe spectral

permettant de minimiser une fonction coût $f(n_\sigma, k_\sigma)$ dont l'expression mathématique est détaillée plus loin (§2.5.2 et §2.5.3). Il prend comme données d'entrée un fichier de mesures, un fichier d'indices optiques de départ, une structure numérique et les différents paramètres du calcul d'optimisation, notamment ceux du pre-processing, étape préliminaire du calcul d'optimisation.

En effet, il est courant lors d'un calcul d'optimisation que l'algorithme n'arrive pas à converger vers le minimum global du problème et s'oriente vers un minimum local si la valeur initiale des paramètres à optimiser est trop éloignée de la solution finale (voir Fig. 2.24). Le cas échéant, une étape de pre-processing permet de s'approcher suffisamment du minimum global pour que l'algorithme converge vers celui-ci.

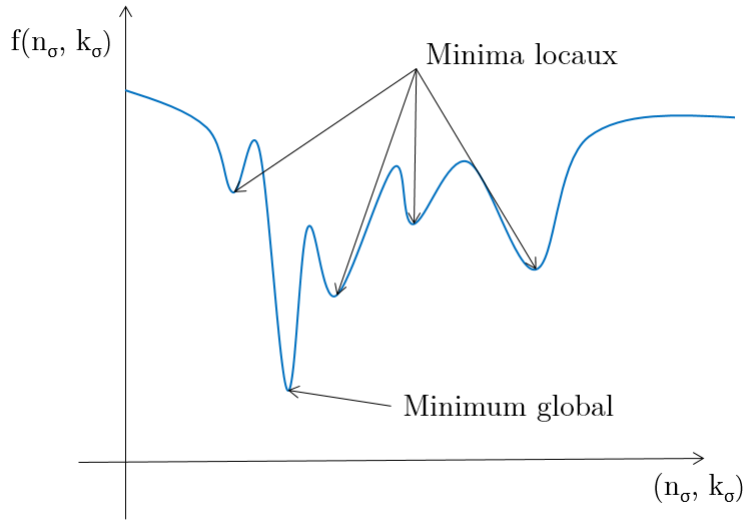


FIGURE 2.24 – Évolution schématique de la fonction coût $f(n_\sigma, k_\sigma)$ en fonction des valeurs des indices optiques.

Dans la présente situation, deux paramètres sont à optimiser : l'indice de réfraction n_σ et l'indice d'absorption k_σ . Pour les matériaux dont les microconstituants sont relativement purs (comme ceux présentés par la suite), l'indice de réfraction réel n_σ est peu différent de l'indice d'un matériau massif de même composition chimique. En effet, sur la gamme spectrale étudiée, il n'y pas de mécanismes d'absorption significatifs (e. g. absorption due aux phonons, effet polaronique) après le front de transmission qui modifieraient fortement la valeur de n_σ (ZENG et al., 1996). Par conséquent, un indice de réfraction identifié sur un matériau massif et extrait de la littérature ou issu de mesures précédentes sur le même type de matériau est un bon point de départ.

Cela est moins évident pour l'indice d'absorption k_σ . Sa valeur (à un nombre d'onde donné) peut varier de plusieurs ordres de grandeurs pour deux milieux de même composition chimique notamment à cause de la concentration en impuretés (e. g. groupes hydroxyles). Dans ce cas, l'algorithme d'optimisation n'arrive généralement pas à atteindre la solution. C'est pourquoi un modèle de pre-processing a été développé pour ce paramètre.

2.5.1 Pre-processing

Le modèle de pre-processing développé pour cette étude consiste ici à inverser un modèle semi-analytique permettant l'estimation de l'émittance du milieu. Ce modèle a été notamment utilisé par Bouvry *et al.* (BOUVRY et al., 2016) pour modéliser l'émittance ε_σ de céramiques semi-transparentes.

Celui-ci est décrit par l'équation suivante :

$$\varepsilon_\sigma = (1 - R_\infty)(1 - \exp(-\kappa_{abs,\sigma} d_{eff})) \quad (2.34)$$

R_∞ représente la réflexion de surface du matériau, d_{eff} l'épaisseur effective (i. e. la distance réellement parcourue par les rayons dans l'échantillon), $\kappa_{abs,\sigma}$ représente le coefficient d'absorption effectif du milieu.

L'objectif étant ici d'identifier les caractéristiques d'un matériau multiphasique, ce modèle a été adapté pour pouvoir distinguer les N phases composant le matériau en question :

$$\forall i \neq j \quad \varepsilon_\sigma = \left(1 - R_\infty\right) \left(1 - \exp\left(-\left(\sum_{i=0}^{N-1} \kappa_{abs,\sigma}^i F_{Vol}^i + \kappa_{abs,\sigma}^j F_{Vol}^j\right) d_{eff}\right)\right) \quad (2.35)$$

F_{Vol} représente les fractions volumiques respectives des différentes phases du matériau. Les phases i correspondent aux phases dont les indices sont connus. La phase j est la phase dont les indices sont à optimiser.

La première étape du pre-processing consiste à évaluer la réflexion de surface R_∞ . Pour cela, une simulation MCRT est réalisée avec un indice d'absorption très élevé, de sorte que l'échantillon numérique se comporte comme un milieu opaque. Le flux réfléchi n'est alors dû qu'à l'état de surface du milieu.

Pour calculer d_{eff} , il est tout d'abord nécessaire d'estimer un coefficient d'absorption (de la phase étudiée j) approché pour la simulation $\kappa_{abs,\sigma}^{j,sim}$ en inversant l'équation 2.35 et à partir de d_{ech} , l'épaisseur réelle de l'échantillon et ε_σ^{mes} l'émittance mesurée :

$$\kappa_{abs,\sigma}^{j,sim} = -\left(\frac{1}{d_{ech}} \ln\left(1 - \frac{\varepsilon_\sigma^{mes}}{1 - R_\infty}\right) + \sum_{i=0}^{N-1} \kappa_{abs,\sigma}^i F_{Vol}^i\right) \frac{1}{F_{Vol}^j} \quad (2.36)$$

L'émittance ε_σ^{sim} , simulée avec le code MCRT et avec comme donnée d'entrée $\kappa_{abs,\sigma}^{j,sim}$ peut s'écrire :

$$\varepsilon_\sigma^{sim} = \left(1 - R_\infty\right) \left(1 - \exp\left(-\left(\sum_{i=0}^{N-1} \kappa_{abs,\sigma}^i F_{Vol}^i + \kappa_{abs,\sigma}^{j,sim} F_{Vol}^j\right) d_{eff}\right)\right) \quad (2.37)$$

En inversant cette expression, on obtient alors l'épaisseur effective d_{eff} :

$$d_{eff} = -\ln\left(1 - \frac{\varepsilon_\sigma^{sim}}{1 - R_\infty}\right) \frac{1}{\sum_{i=0}^{N-1} \kappa_{abs,\sigma}^i F_{Vol}^i + \kappa_{abs,\sigma}^{j,sim} F_{Vol}^j} \quad (2.38)$$

Connaissant l'épaisseur effective d_{eff} , la réflexion de surface R_∞ ainsi que l'émittance mesurée ε_σ^{mes} , on calcule alors un coefficient d'absorption réel approché de la phase d'intérêt $\kappa_{abs,\sigma}^{i,mes}$ en inversant l'équation 2.35 :

$$\kappa_{abs,\sigma}^{j,mes} = -\left(\frac{1}{d_{eff}} \ln\left(1 - \frac{\varepsilon_\sigma^{mes}}{1 - R_\infty}\right) + \sum_{i=0}^{N-1} \kappa_{abs,\sigma}^i F_{Vol}^i\right) \frac{1}{F_{Vol}^j} \quad (2.39)$$

Cette démarche de pre-processing est effectuée pour chaque nombre d'onde étudié. Pour gagner en temps de calcul, R_∞ n'est calculé qu'une seule fois. En effet, sa valeur est pilotée par l'indice de réfraction n_σ qui varie peu sur la gamme spectrale étudiée. La variation de R_∞ est donc négligeable d'un nombre d'onde à l'autre.

En partant de la valeur du coefficient d'absorption estimée par l'équation 2.39, l'algorithme est alors plus à même de converger vers le minimum global de la fonction $f(n_\sigma, k_\sigma)$. On rappelle que

ce modèle de pre-processing a pour objectif de s'approcher du minimum global de la fonction coût et que les résultats obtenus ne sont en aucun cas exacts. De plus, il est important de noter que ce modèle n'est valable que pour des valeurs d'émittance faibles ou modérées (jusqu'à environ 0,5, donc dans la plage de semi-transparence). Pour des gammes spectrales où l'émittance est plus forte, il se peut que le modèle ne permette pas d'approcher suffisamment la valeur de l'indice d'absorption. Si besoin est d'identifier l'indice sur de telles gammes spectrales, un nouveau modèle de pre-processing devra être développé.

2.5.2 Optimisation à partir des spectres de réflectance et de transmittance à température ambiante

Comme cela a été présenté dans la section §2.2.1, le dispositif expérimental de spectroscopie FTIR du CEMHTI utilisant une sphère intégrante permet la mesure de deux propriétés radiatives spectrales : une réflectance $\rho_{mes,\sigma}^\cap$ et une transmittance $\tau_{mes,\sigma}^\cap$ normales-hémisphériques. L'objectif de l'algorithme d'optimisation étant de réduire les écarts entre mesure et simulation, la fonction de coût $f(n_\sigma, k_\sigma)$ s'exprime alors :

$$f(n_\sigma, k_\sigma) = (\rho_{mes,\sigma}^\cap - \rho_{MCRT,\sigma}^\cap)^2 + (\tau_{mes,\sigma}^\cap - \tau_{MCRT,\sigma}^\cap)^2 \quad (2.40)$$

Il y a ainsi un système de deux équations (une pour chaque propriété radiative) à deux inconnues (les deux indices à optimiser) pour chaque nombre d'onde, le problème est alors correctement posé d'un point de vue mathématique et n_σ et k_σ sont identifiables simultanément.

2.5.3 Optimisation à partir de spectres d'émittance en température

L'émittance $\varepsilon_{mes,\sigma}$ étant la seule propriété radiative mesurable en température au CEMHTI (§2.2.2), l'identification de l'indice de réfraction complexe en température se révèle plus compliquée qu'à température ambiante. En effet, il n'y a alors plus qu'une seule équation mais toujours deux inconnues à identifier : le problème est mal posé d'un point de vue mathématique.

Cependant, plusieurs études (THOMAS, 1998), (C. Z. TAN & ARNDT, 2000), (L.-Y. WEI et al., 2021) ont montré que l'indice de réfraction variait peu en température (c'est tout particulièrement le cas pour les oxydes qui sont étudiés par la suite). En supposant que cette variation est suffisamment négligeable et n'affecte pas les calculs de transferts thermiques, l'indice d'absorption est alors le seul paramètre à optimiser, ce qui revient à un système d'une équation à une inconnue. La fonction coût s'exprime alors comme :

$$f(k_\sigma) = (\varepsilon_{mes,\sigma} - \varepsilon_{MCRT,\sigma})^2 \quad (2.41)$$

Une optimisation en température se fait donc à posteriori d'une optimisation de l'indice de réfraction complexe spectral à température ambiante, car la partie réelle de ce dernier, l'indice de réfraction, doit nécessairement être connue pour optimiser l'indice d'absorption en température.

2.5.4 Critères de convergence et contraintes d'optimisation

La valeur de l'indice de réfraction complexe est considérée comme optimale lorsque l'un des deux critères suivants est vérifié :

- les gradients de n_σ et de k_σ sont inférieurs à 10^{-4} relativement à leur valeur respective,
- les écarts entre l'expérience et la simulation sont inférieurs à 0,01.

Le premier critère correspond à une variation de la valeur des indices qui a alors une influence négligeable sur la simulation des propriétés radiatives. Le second critère est associé aux incertitudes de mesure des propriétés radiatives. Il est en effet inutile de chercher à identifier un indice permettant

de simuler des propriétés radiatives avec une précision plus importante que ce qui est atteignable expérimentalement (0,01 pour les mesures de réflectance et transmittance et 0,02 pour les mesures d'émittance).

De nombreux codes d'optimisation utilisent des contraintes (fixes ou des fonctions de pénalité (PISCIA et al., 2013)) pour faciliter la convergence des algorithmes utilisés. Dans ces situations, le comportement physique du système et le domaine de solution des paramètres à identifier sont bien connus. Or, dans ces travaux et comme cela est montré dans la section suivante, les résultats de l'optimisation sont fortement dépendants de la microstructure et les indices intrinsèques identifiés peuvent être très différents (malgré l'étape de pre-processing) des indices de "départ" généralement extraits de matériaux massiques. L'application de contraintes pourrait ainsi limiter l'espace de recherche de solutions de l'algorithme qui aurait des difficultés à converger vers le minimum global de la fonction coût. Cette optimisation sans contraintes présente aussi un avantage pour la validation numérique de la méthodologie présentée ci-après car cela permet de quantifier les capacités de l'algorithme à converger de lui-même vers la bonne solution.

2.6 Validation numérique de la méthodologie

Avant d'être appliquée à des matériaux réels, la méthodologie est validée par une première étape numérique dans laquelle les mesures de spectroscopie FTIR sont remplacées par des simulations MCRT réalisées sur un milieu fibreux test avec un nombre de rayons très élevé (10^9) pour limiter les erreurs statistiques. De cette façon, les résultats obtenus ne sont plus entachés des erreurs expérimentales. Cette étape de validation permet alors de distinguer la sensibilité de la méthodologie à chaque outil et, si possible, d'identifier certaines de ces limites.

2.6.1 Cas général

Pour valider numériquement la méthodologie, un milieu fibreux représentatif des matériaux étudiés dans ce travail est généré. Les fibres de ce milieu sont positionnées et orientées aléatoirement dans l'espace selon une loi de distribution uniforme et ont toutes les mêmes dimensions : une longueur de 100 μm et un rayon de 7 μm . La fraction volumique des fibres est de 15%.

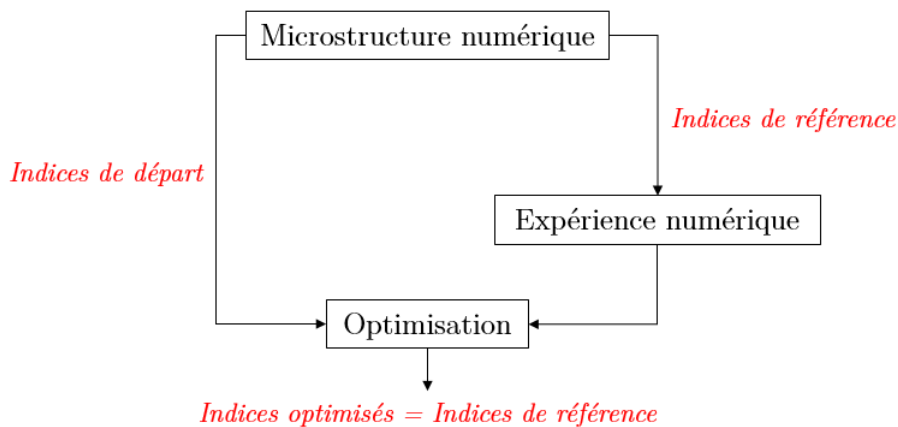


FIGURE 2.25 – Schéma de principe de la validation numérique de la méthodologie.

Une première simulation MCRT (ou *expérience numérique*), ayant pour objectif de remplacer les mesures par spectroscopie FTIR, est réalisée sur le milieu fibreux numérique à partir d'indices obtenus sur un verre de silice par Rozenbaum *et al.* (ROZENBAUM et al., 2019). Pour la validation,

ces indices, que l'on nomme "Référence" par la suite, correspondent aux indices intrinsèques des fibres de notre milieu numérique et sont les valeurs de référence à retrouver grâce à la méthodologie (Fig. 2.25). Un second jeu d'indices, également extrait de (ROZENBAUM et al., 2019) sur un autre verre de silice et nommé "départ" sert de point de départ avant l'optimisation. Les indices de réfraction réels des deux jeux de données étant très proches quantitativement, l'indice de réfraction réel de "départ" a été modifié (rajout d'un offset de 5% sur les valeurs) pour vérifier la capacité de l'algorithme d'optimisation à converger vers les valeurs de "Référence" malgré des valeurs de départ relativement éloignées de la solution.

Pour cette étude numérique, le milieu fibreux généré a deux rôles : il remplace le milieu réel avec lequel les expériences (ici numériques) sont normalement réalisées mais sert également de milieu numérique statistiquement représentatif avec lequel l'algorithme d'optimisation va pouvoir remonter aux valeurs de référence des indices. On se trouve alors dans le cas parfait (et inatteignable physiquement) où la microstructure numérique est identique à la microstructure réelle. En d'autres termes, les erreurs d'optimisation dues à la géométrie et au bruit de mesure sont annulées (seul reste le bruit statistique des tirages aléatoires du code MCRT). Dans un premier temps, l'optimisation est réalisée sur les spectres de réflectance et de transmittance (donc une optimisation de n_σ et k_σ simultanément) avec 10^5 rayons.

Les gammes spectrales relativement étroites des études de sensibilité ainsi que des applications de la méthodologie présentées au Chapitre 3 ont été définies selon deux critères principaux. Le premier est lié aux besoins du CEA d'évaluer les transferts thermiques jusqu'à 1000°C. À cette température, l'essentiel du transfert radiatif s'effectue sur les gammes spectrales étudiées ci-après (voir également §4.3.2). Le deuxième critère est, quant à lui, une conséquence directe de la validité de l'optique géométrique, hypothèse sur laquelle repose le code de lancer de rayons. En effet, pour les milieux étudiés dans ce document, les rayons des fibres ne permettent pas une identification de l'indice de réfraction complexe spectral en deçà de 2000 cm⁻¹.

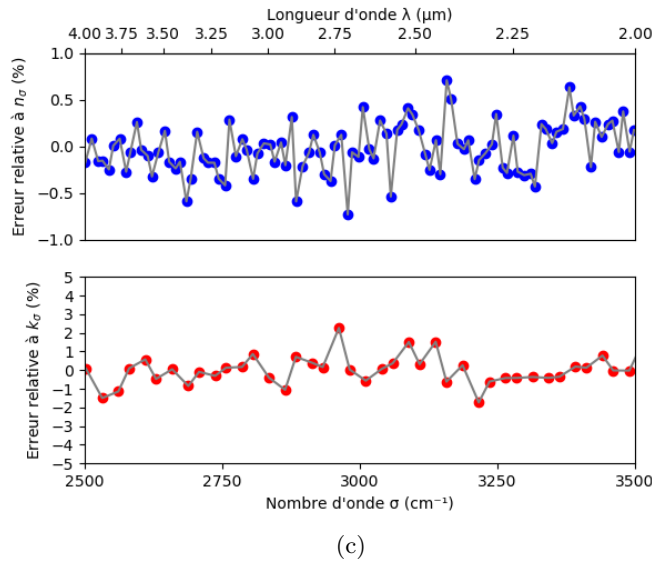
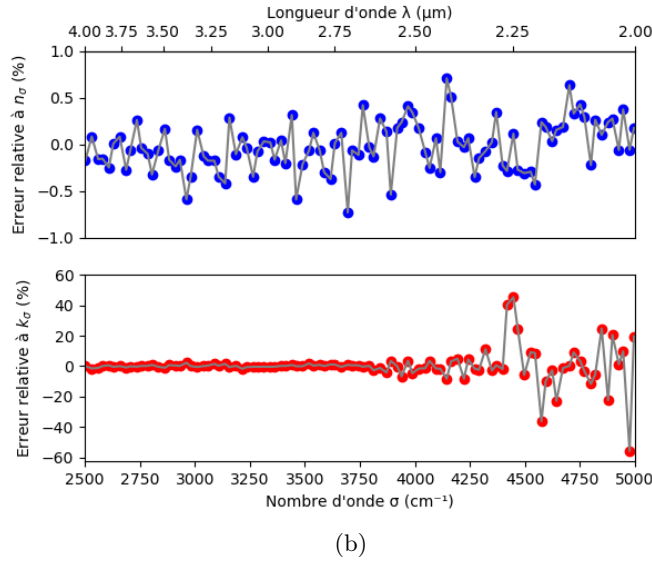
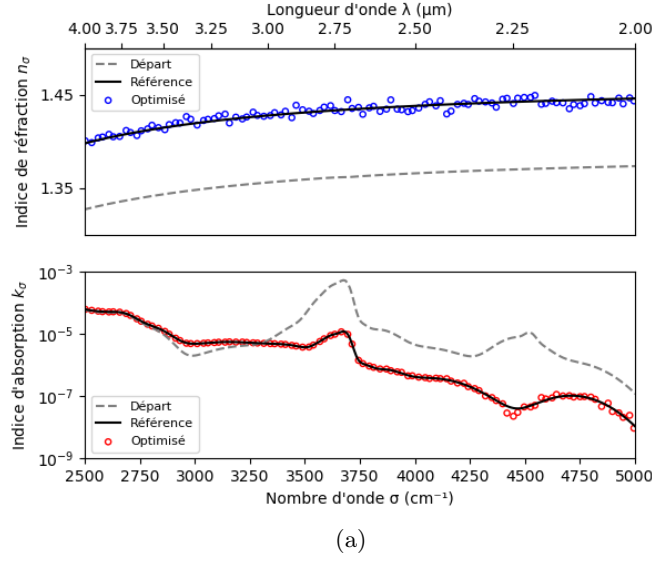


FIGURE 2.26 – (a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (b) Erreur relative entre les valeurs de référence et les valeurs optimisées des indices optiques et (c) Erreur relative étudiée sur la plage de semi-transparence uniquement.

L'algorithme d'optimisation converge correctement vers les valeurs des indices de référence, que ce soit pour n_σ ou pour k_σ (Fig. 2.26a). On définit les erreurs relatives (en %) aux indices de références $\frac{\Delta n_\sigma}{n_\sigma}$ et $\frac{\Delta k_\sigma}{k_\sigma}$ par les équations suivantes :

$$\frac{\Delta n_\sigma}{n_\sigma} = 100 \frac{n_{\sigma,ref} - n_{\sigma,opti}}{n_{\sigma,ref}} \quad (2.42)$$

$$\frac{\Delta k_\sigma}{k_\sigma} = 100 \frac{k_{\sigma,ref} - k_{\sigma,opti}}{k_{\sigma,ref}} \quad (2.43)$$

La dispersion des indices d'absorption est globalement plus importante que celle des indices de réfraction et ce pour deux raisons principales (Fig 2.26b). Premièrement, les valeurs de l'indice d'absorption sont très faibles (entre 10^{-3} et 10^{-9}), c'est pourquoi de très petites variations amènent à une erreur relative plus importante que pour l'indice de réfraction. Deuxièmement, dans la plage de transparence, c'est à dire dans la gamme spectrale où l'émittance est quasi-nulle (vers 4000 cm^{-1} , voir Fig. 2.27a), à partir d'une valeur seuil minimale, l'indice d'absorption n'a plus d'influence sur la simulation des propriétés radiatives. Par exemple, si l'émittance est nulle pour une valeur de $k_\sigma = 10^{-6}$, elle le sera également pour $k_\sigma = 10^{-7}$. Ces deux valeurs sont alors des solutions correctes pour l'algorithme d'optimisation. Les écarts observés sur la plage de transparence pour cette simulation ne permettent donc pas de tirer de conclusion quant au bon fonctionnement de l'algorithme d'optimisation. En revanche, il est possible de le faire en étudiant la gamme de semi-transparence uniquement (i. e. jusqu'à 3750 cm^{-1} environ), où l'erreur relative n'excède pas 3%. Pour la suite de l'étude numérique, les erreurs relatives sont donc étudiées sur la bande de semi-transparence uniquement car les résultats sont suffisamment représentatifs du comportement de l'algorithme d'optimisation.

Malgré les erreurs observées, les indices identifiés à l'aide de l'algorithme d'optimisation permettent de simuler les propriétés radiatives avec une précision suffisante, i. e. avec une erreur par rapport à l'*expérience numérique* n'excédant pas 0,01, ce qui est en deçà de l'incertitude expérimentale (Fig. 2.27a et 2.27b). Une simulation avec des indices optimisés est une amélioration nette par rapport à une simulation avec les indices de départ où les écarts avec l'*expérience numérique* sont très importants (jusqu'à 70%, voir Fig. 2.27c et Fig. 2.27d).

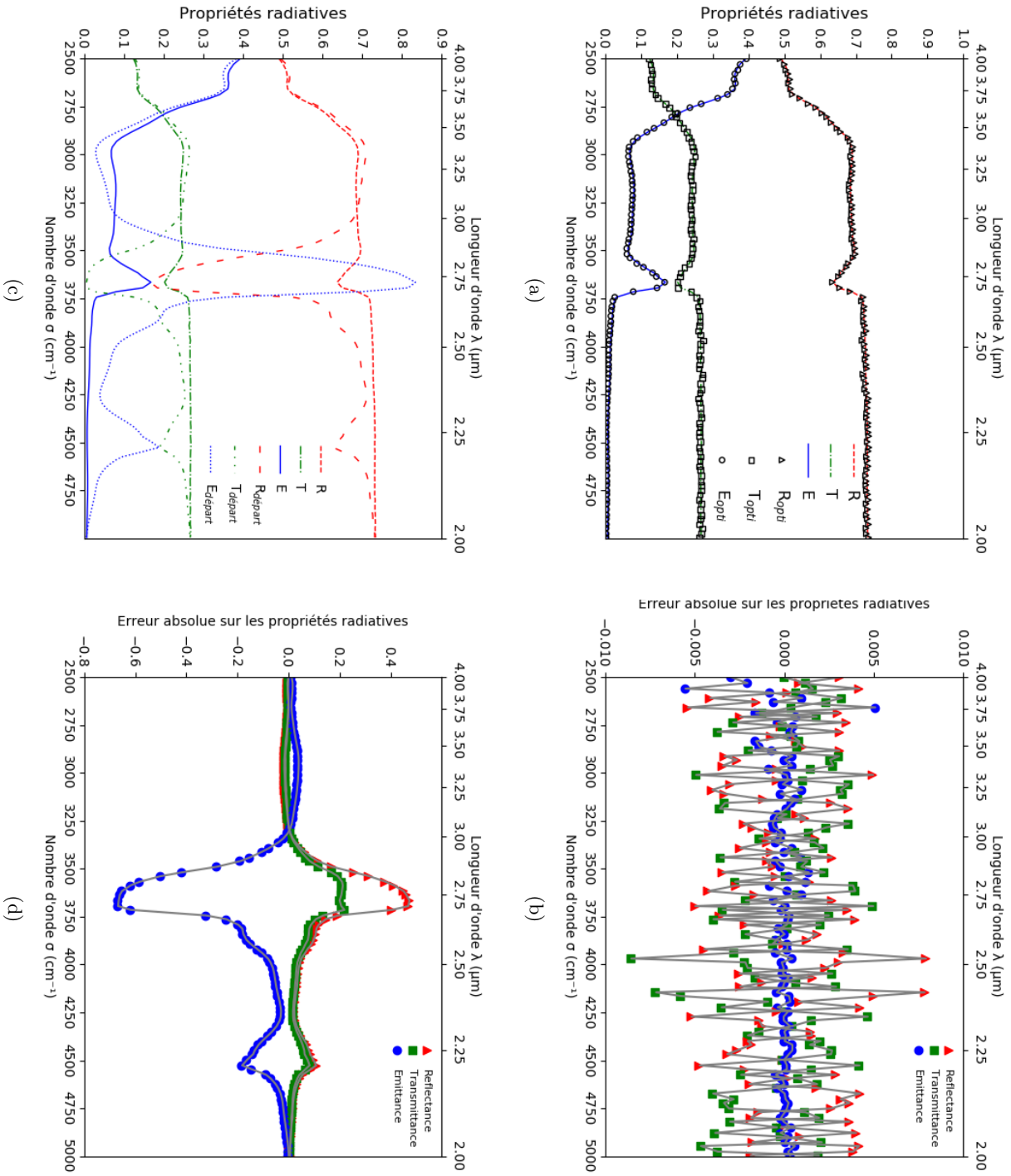
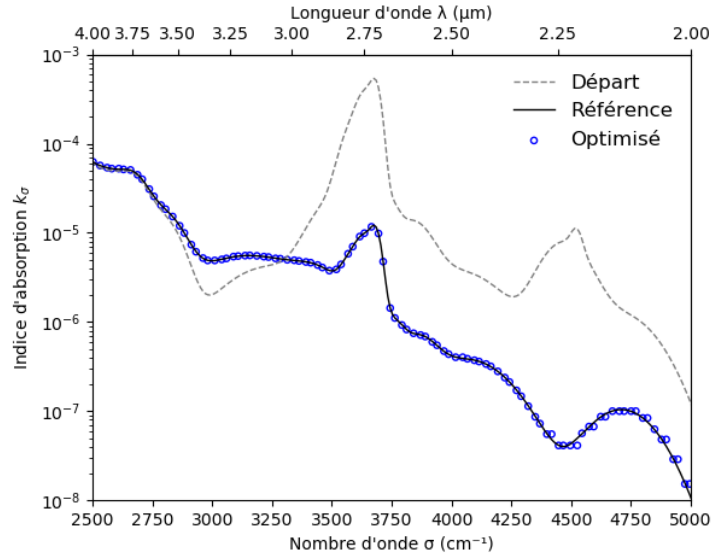
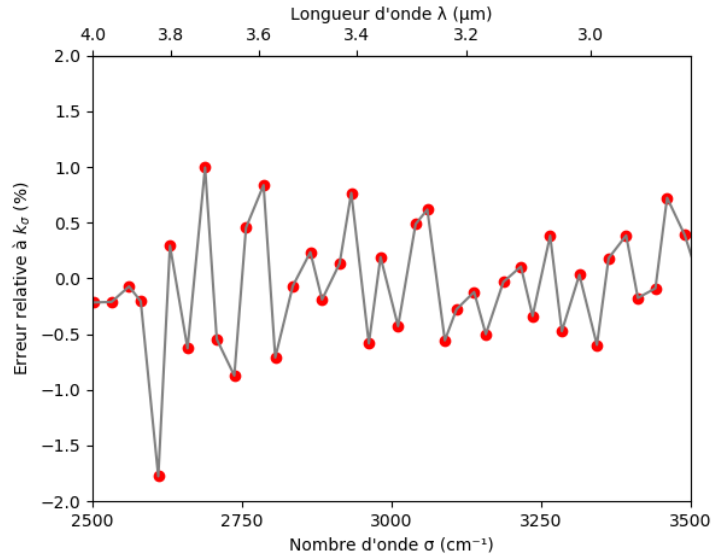


FIGURE 2.27 – (a) Comparaison entre l'expérience numérique et les propriétés radiatives simulées avec les indices optimisés, (b) erreur absolue entre l'expérience numérique et les propriétés simulées avec les indices de départ et (d) erreur absolue entre l'expérience numérique et les propriétés simulées avec les indices de départ. Sur les graphiques, les grandeurs R , T et E représentent respectivement la réflectance $\rho_{\sigma}^{\text{refl}}$, la transmittance $\tau_{\sigma}^{\text{trns}}$ et l'émittance $\epsilon_{\sigma}^{\text{em}}$.

Dans un second temps, l'équivalent d'une optimisation en température à 300 K (donc seulement de k_σ et à partir du spectre d'émittance uniquement) est réalisée en utilisant comme indices de réfraction les indices optimisés présentés en Figure 2.26a. Encore une fois, l'algorithme converge bien vers les valeurs de référence, avec une dispersion très faible (quelques pourcents seulement sur la plage de semi-transparence, Fig. 2.28b) validant ainsi théoriquement la démarche d'optimisation de l'indice d'absorption en température (Fig. 2.28a). Ces premiers résultats valident ainsi l'approche développée dans ce chapitre, dans un cadre théorique où la microstructure numérique est parfaitement représentative de la microstructure réelle et en l'absence de bruit de mesure.



(a)



(b)

FIGURE 2.28 – (a) Indice d'absorption de départ, de référence et optimisé en fonction du nombre d'onde, (b) Erreur relative entre les valeurs de référence et les valeurs optimisées de l'indice d'absorption sur la plage de semi-transparence.

2.6.2 Sensibilité de l'indice de réfraction complexe optimisé à la microstructure numérique

Il vient d'être montré que la méthodologie d'identification était valide pour le cas asymptotique où la représentation numérique de la microstructure de l'échantillon était parfaite. L'objectif suivant est donc d'identifier l'influence d'une mauvaise représentation numérique sur les valeurs de l'indice complexe optimisé.

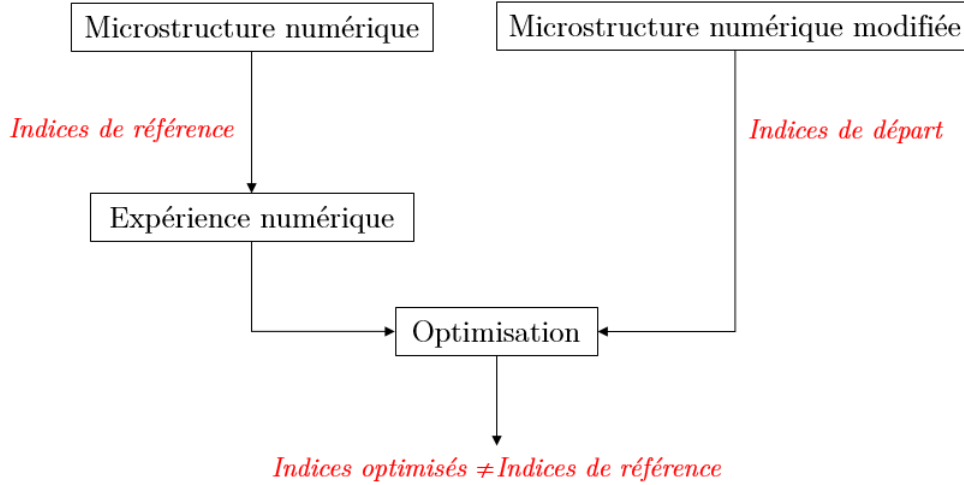


FIGURE 2.29 – Schéma de principe de l'étude de sensibilité de l'indice de réfraction complexe optimisé à la microstructure numérique. Une fois identifiés, les indices, qui sont alors erronés, sont utilisés pour simuler les propriétés radiatives de la microstructure numérique non-modifiée. Ces dernières sont comparées aux valeurs propriétés radiatives de l'*expérience numérique* afin de quantifier l'influence des différentes erreurs de géométrie numérique.

Pour cela, de nouveaux calculs d'optimisation sont réalisés mais l'échantillon numérique qui sert à l'optimisation diffère de celui utilisé pour l'*expérience numérique* : la fraction volumique de fibres, l'épaisseur, le rayon ou encore la longueur des fibres sont modifiés successivement (Fig. 2.29).

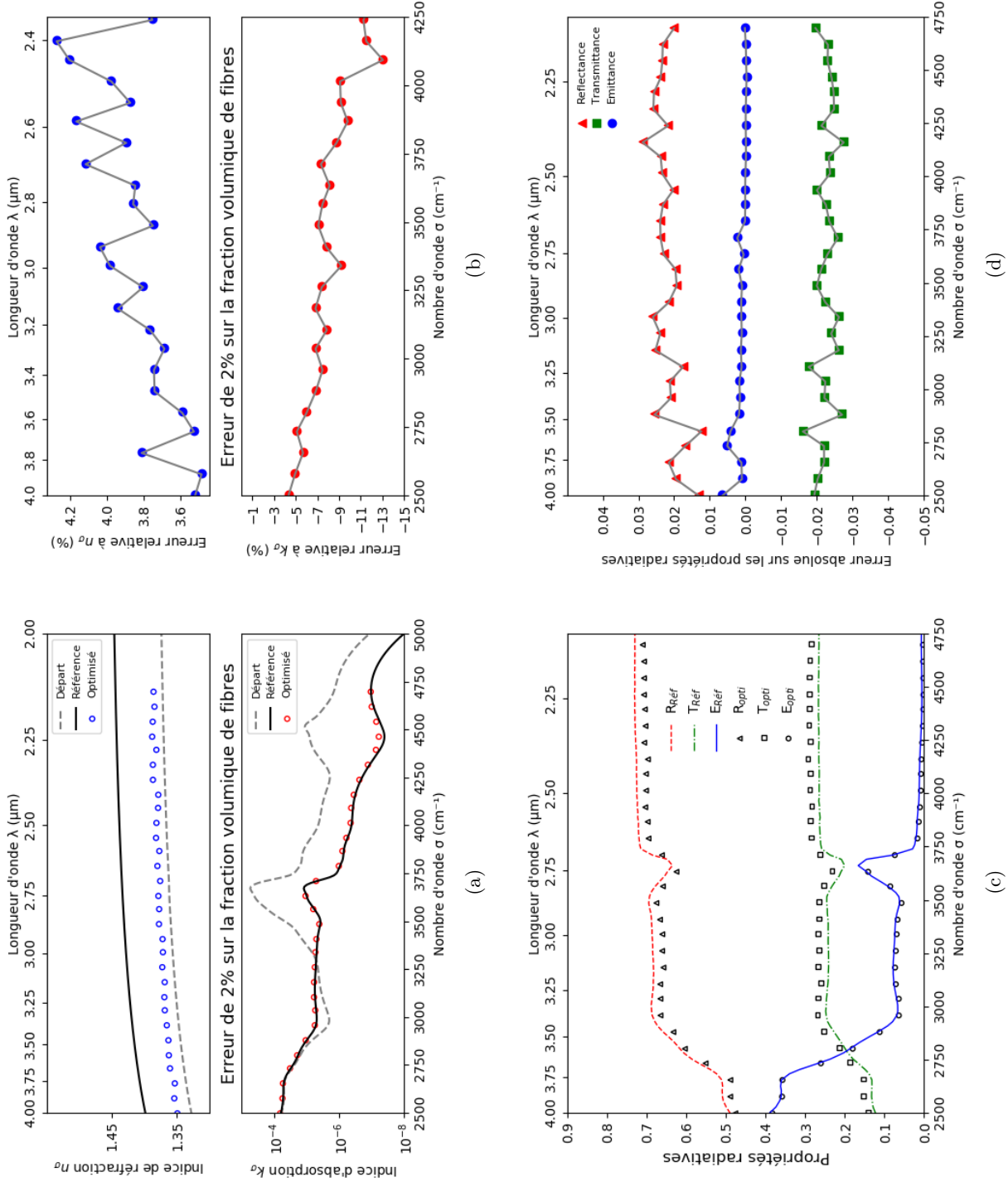


FIGURE 2.30 – (a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés avec une erreur sur la fraction volumique de fibres de 2%, (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l'expérience numérique et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés, (d) erreur absolue entre l'expérience numérique et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.

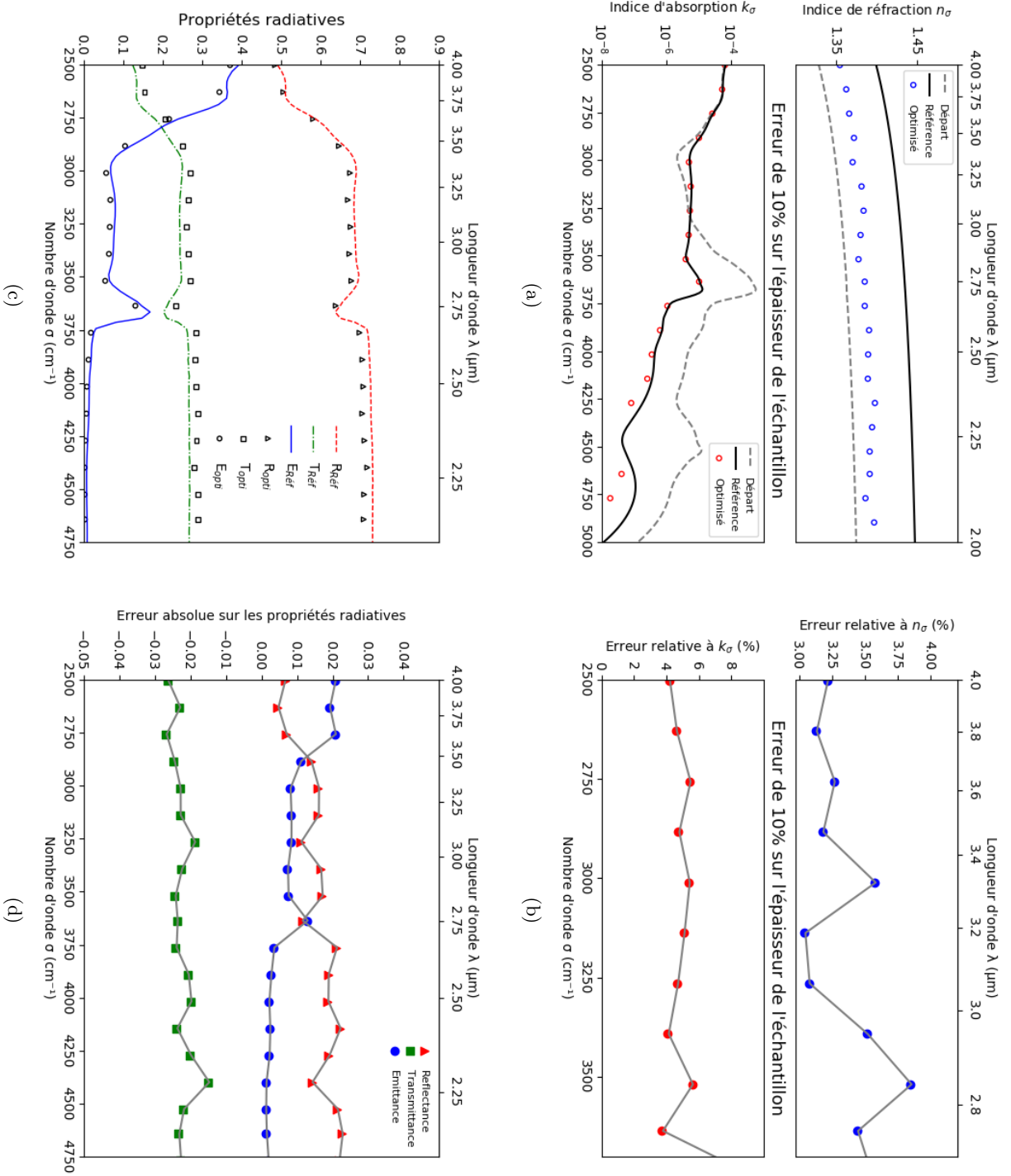


FIGURE 2.31 – (a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés avec une erreur sur l'épaisseur de l'échantillon de 10%, (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l'expérience numérique et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés, (d) erreur absolue entre l'expérience numérique et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.

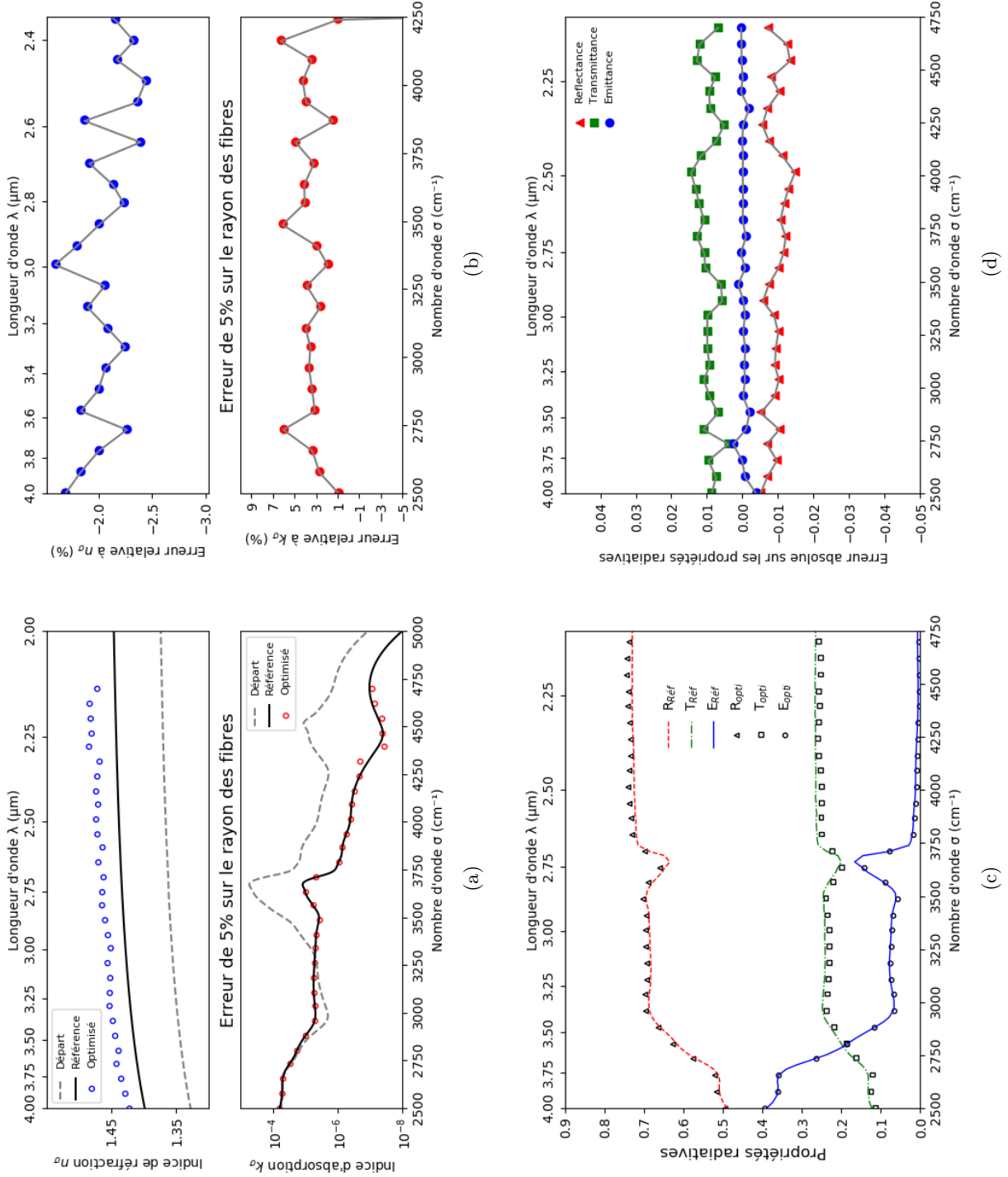


FIGURE 2.32 – (a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés avec une erreur sur le rayon des fibres de 5%, (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l'expérience numérique et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés, (d) erreur absolue entre l'expérience numérique et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.

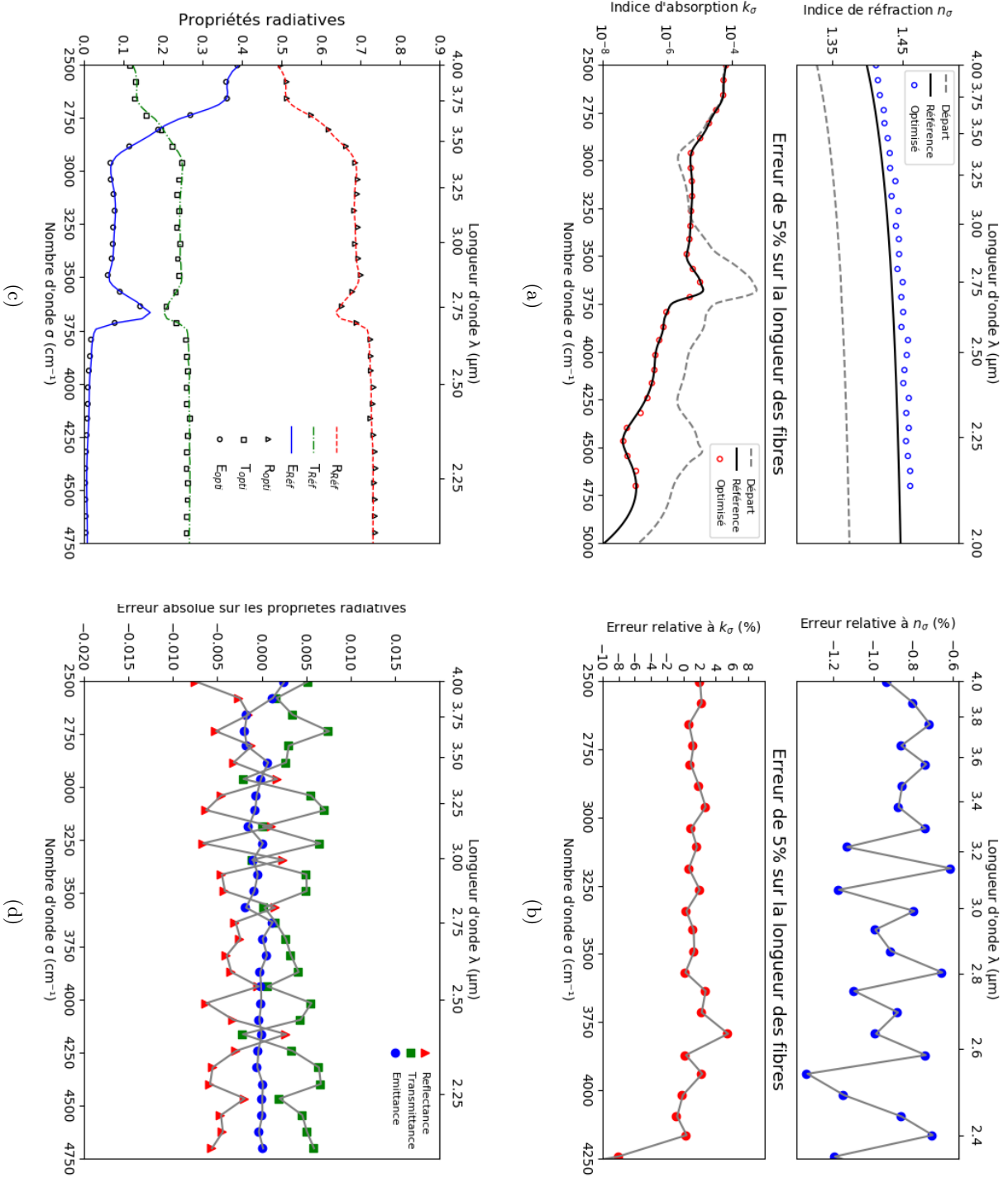


FIGURE 2.33 – (a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés avec une erreur sur la longueur des fibres de 5%, (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l'expérience numérique et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés, (d) erreur absolue entre l'expérience numérique et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.

Les Figures 2.30 à 2.33 regroupent les résultats des différents calculs d'optimisation prenant en compte une variation d'un paramètre géométrique, générant ainsi un écart au V.E.R. théorique. Pour chaque étude, les propriétés radiatives de la microstructure "*réelle*" (i. e. celle qui a servi à l'*expérience numérique*) sont simulées à l'aide des indices optimisés, obtenus à partir des structures géométriquement modifiées, et donc erronés. De cette façon, il est possible d'évaluer d'une part, l'influence que chaque écart de géométrie au V.E.R. théorique a sur l'optimisation des indices, et d'autre part les conséquences que les erreurs d'identification des indices ont sur la simulation des propriétés radiatives.

Globalement, les indices de réfraction et d'absorption sont tous les deux impactés par des erreurs de géométrie. Cependant, on rappelle que les valeurs de l'indice d'absorption sont faibles, par conséquent une erreur relative de plusieurs pourcents sur ce dernier a une influence moindre qu'une erreur du même ordre sur l'indice de réfraction.

Sur le cas numérique présenté, une faible erreur de fraction volumique (2%) provoque une erreur sur l'identification de l'indice de réfraction de plusieurs pourcents (3% d'erreur relative contre moins d'un pourcent lors de la validation du cas général, i. e. sans erreur sur la microstructure, Fig. 2.26). Cette variation de l'indice de réfraction joue un rôle important sur la géométrie de diffusion : le contraste d'indice entre l'air et les fibres est plus petit (Fig. 2.30a), ce qui conduit à une réflectance simulée plus faible que celle issue de l'*expérience numérique* (Fig. 2.30c). La variation de quelques pourcents de l'indice d'absorption n'a pas d'influence significative, puisque que l'erreur sur l'émittance (i. e. la capacité du matériau à absorber ou émettre le rayonnement) reste faible : moins de 1% sur la Figure 2.30d. L'erreur observée sur la transmittance compense la variation de réflectance. Finalement, il est important de noter que même une faible erreur d'estimation de la fraction volumique a des conséquences sur la simulation des propriétés, puisque 2% d'erreur sont atteints (Fig. 2.30d), ce qui correspond à l'incertitude expérimentale.

Une mauvaise estimation de l'épaisseur de l'échantillon (Fig. 2.31) influe sur la valeur de l'indice de réfraction (i. e. la géométrie de diffusion évolue) mais également sur l'indice d'absorption car les probabilités d'absorption sont alors plus ou moins élevées. Dans le cas présent, ces erreurs se retrouvent lors de la simulation des propriétés radiatives (Fig. 2.31c) où l'épaisseur de l'échantillon a été sous-estimée de 10%. En revanche, l'influence de cette erreur est modérée, puisque que 10% d'erreur sur l'épaisseur (qui est déjà importante et assimilable à une mauvaise préparation d'échantillon dans un cas réel) ne conduit qu'à 3% d'erreur sur la transmittance.

Une faible erreur (5%) sur le rayon des fibres micrométriques a encore une fois une influence légèrement plus importante sur la valeur de l'indice de réfraction (jusqu'à 2,5%) que sur l'indice d'absorption pour lequel une erreur relative de 5%, (Fig. 2.32b), correspond à ce qui a été observé lors de la validation du cas général (Fig. 2.27). Cette erreur sur l'indice de réfraction a cependant une faible influence sur la simulation des propriétés radiatives puisque les erreurs observées sur la simulation avec les indices erronés sont plus importants que l'incertitude expérimentale de 0,01 (sur la réflectance et la transmittance).

Un comportement similaire est observable en réalisant une erreur sur la longueur des fibres (Fig. 2.33a). Cependant celui-ci est moins marqué que pour une erreur sur le rayon car l'erreur relative sur l'indice de réfraction est inférieure à 1,5% et celle sur l'indice d'absorption est comparable à celle du cas général (Fig. 2.33b). Ces faibles erreurs permettent d'ailleurs une très bonne simulation des propriétés radiatives en comparaison à l'*expérience numérique* (Fig. 2.33c et Fig. 2.33d). Ces résultats permettent d'ailleurs de conclure que la distribution de longueur de fibres a une influence très faible sur l'identification des indices de réfraction et d'absorption.

Les différentes perturbations géométriques qui ont été générées dans cette section permettent de conclure que l'identification de l'indice de réfraction est plus sensible à la microstructure numérique que ne l'est celle de l'indice d'absorption. Ce comportement se retrouve dans la simulation des propriétés radiatives où les erreurs les plus importantes concernent les spectres de réflectance et de transmittance qui sont fortement liés à la géométrie de diffusion. Les erreurs de simulation de l'émittance, capacité du matériau à absorber le rayonnement qui est principalement pilotée par l'indice d'absorption, dépassent quant à elles rarement le pourcent.

Cependant, même si les simulations des propriétés radiatives sont faiblement impactées par les différentes sources d'erreurs qu'il est possible de faire sur la géométrie séparément, l'accumulation de plusieurs d'entre elles pourrait mener à des écarts de plusieurs pourcents qui seraient alors non négligeables, d'où la nécessité de générer une microstructure numérique la plus représentative possible.

La Figure 2.34 présente justement un résultat d'optimisation réalisé avec une géométrie où des erreurs de fraction volumique de fibres de 2% et de rayon de 5% ont été combinées. Le cumul de ces deux erreurs conduit à une mauvaise identification des indices (erreurs relatives plus importantes sur n_σ et k_σ que pour le cas général, Fig. 2.34b). Ces indices erronés ne permettent pas une simulation pertinente des propriétés radiatives car des écarts de plus de 4% sont observés entre l'*expérience numérique* et la simulation MCRT (Fig. 2.34c et Fig. 2.34d), ce qui est au delà des incertitudes de mesures. Cette situation (purement théorique) confirme la nécessité d'effectuer une étude morphologique de la microstructure la plus affinée possible pour limiter au maximum les erreurs sur l'identification de l'indice de réfraction complexe spectral.

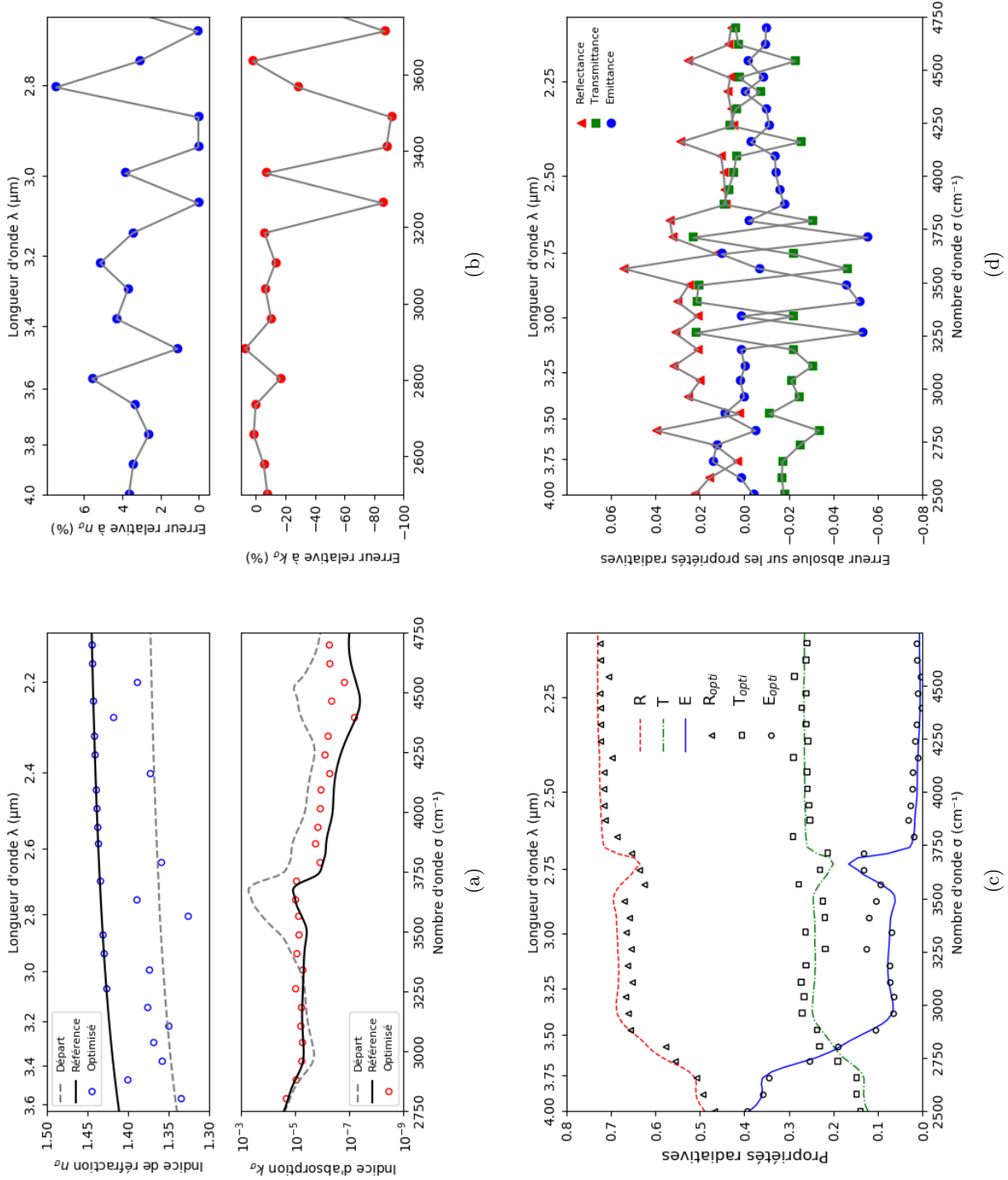


FIGURE 2.34 – (a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés avec une erreur sur le rayon des fibres de 5% et sur la fraction volumique de 2%, (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l'expérience numérique et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés, (d) erreur absolue entre l'expérience numérique et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.

2.6.3 Sensibilité de l'indice de réfraction complexe spectral optimisé au bruit de mesure

Pour étudier l'influence du bruit de mesure sur l'optimisation des indices, un bruit a été ajouté sur les spectres de transmittance et de réflectance issus des *expériences numériques*. Celui-ci est généré aléatoirement et sa valeur est comprise entre -0,01 et 0,01 de la valeur de la propriété radiative à un nombre d'onde donnée, ce qui correspond à l'incertitude expérimentale estimée sur les dispositifs du CEMHTI.

Les indices de réfraction et d'absorption sont tous les deux sensibles au bruit de mesure comme le montre la Figure 2.35, notamment dans la plage de transparence (à partir de 4000 cm^{-1}) où l'absorption est faible et où une variation des propriétés radiatives de quelques pourcents influe grandement sur la valeur des indices optimisés. À température ambiante, l'identification des indices se fait à partir des spectres de réflectance et de transmittance. Il y a donc un cumul d'erreurs expérimentales qui limite la précision avec laquelle il est possible d'identifier les indices optiques.

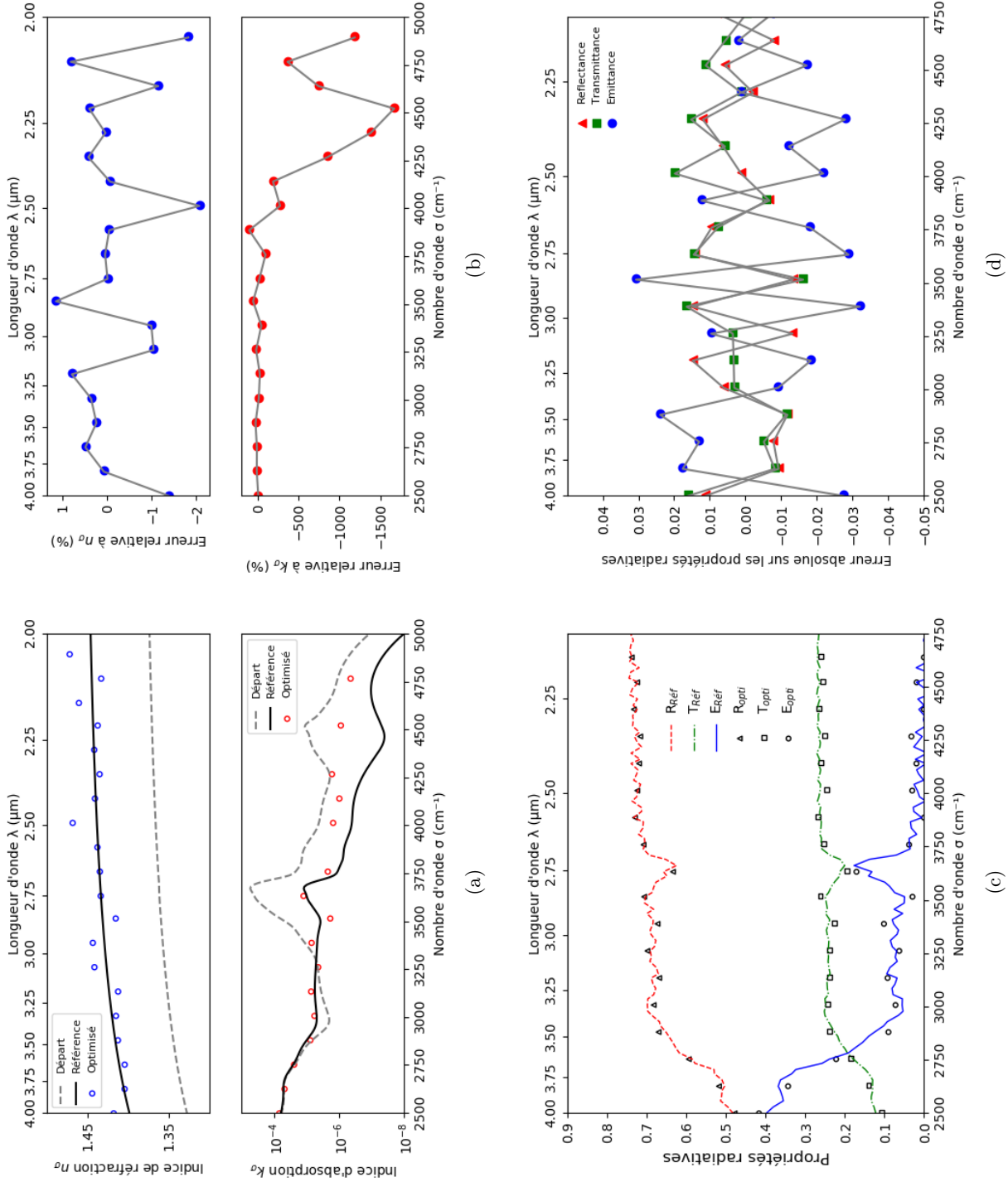
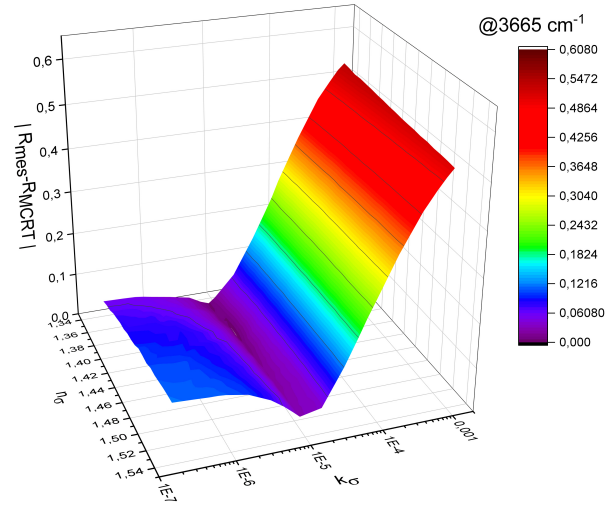


FIGURE 2.35 – (a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés à partir d'une **mesure bruitée**, (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l'*expérience numérique* et la simulation MCRT avec les indices optimisés et optimisés, (d) erreur absolue entre l'*expérience numérique* et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.

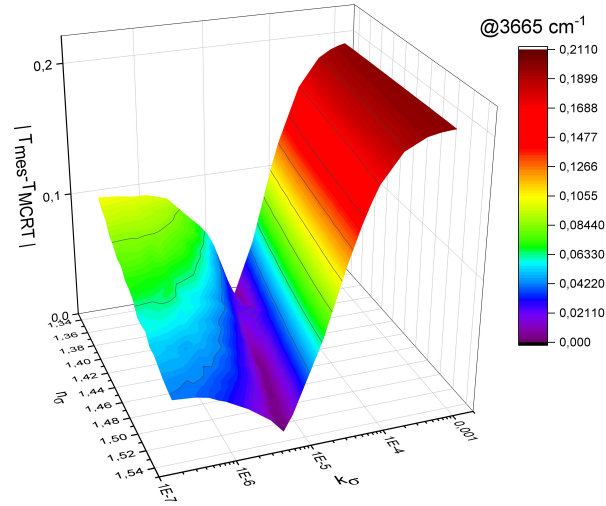
2.6.4 Sensibilité des propriétés radiatives à l'indice de réfraction complexe

Les sections précédentes ont montré que les indices de réfraction et d'absorption étaient sensibles à des variations géométriques et au bruit de mesure expérimental mais dans des proportions différentes. Au travers des études présentées en §2.6.2 et §2.6.3, il s'est cependant avéré que ces indices même légèrement erronés (soit quelques pourcents) étaient suffisants pour reproduire le comportement radiatif du milieu numérique. Il est donc intéressant d'étudier la sensibilité des propriétés radiatives vis-à-vis des indices optimisés (de réfraction et d'absorption) pour déterminer le poids de chacun de ces deux paramètres sur la simulation MCRT, et ce à des nombres d'onde pour lesquels le comportement radiatif est différent (zone de semi-transparence et de transparence).

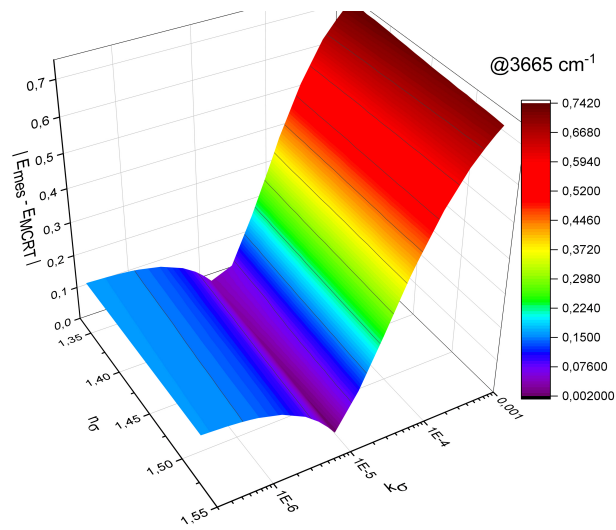
Pour chaque nombre d'onde étudié par la suite, les valeurs des propriétés radiatives de références sont calculées avec les indices de "référence" et en utilisant l'échantillon fibreux numérique utilisé pour l'*expérience numérique*. De nouvelles simulations sont ensuite réalisées en faisant varier les indices de réfraction et d'absorption sur une plage de valeur proche de celles de référence. Les Figures 2.36 et 2.37 présentent ainsi les écarts entre les propriétés radiatives simulées pour différents couples (n_σ, k_σ) et les propriétés de référence, pour deux nombres d'ondes : à 3665 cm^{-1} (zone de forte absorption dans la plage de semi-transparence), et à 4017 cm^{-1} (zone de transparence).



(a)

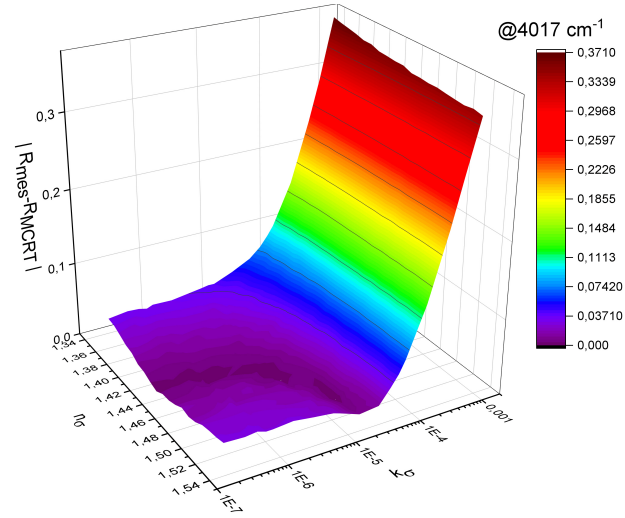


(b)

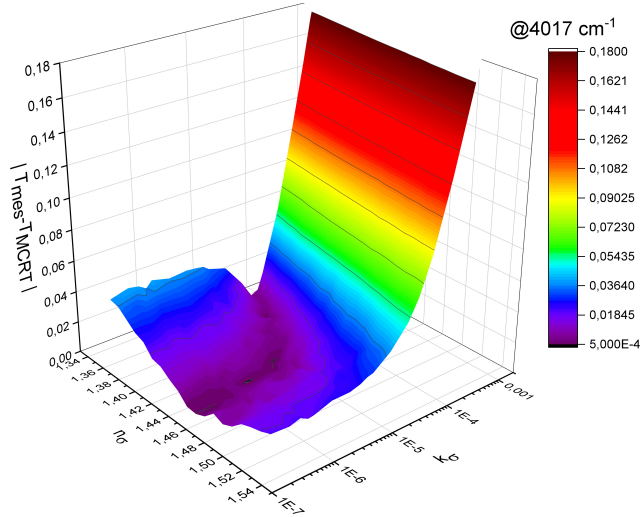


(c)

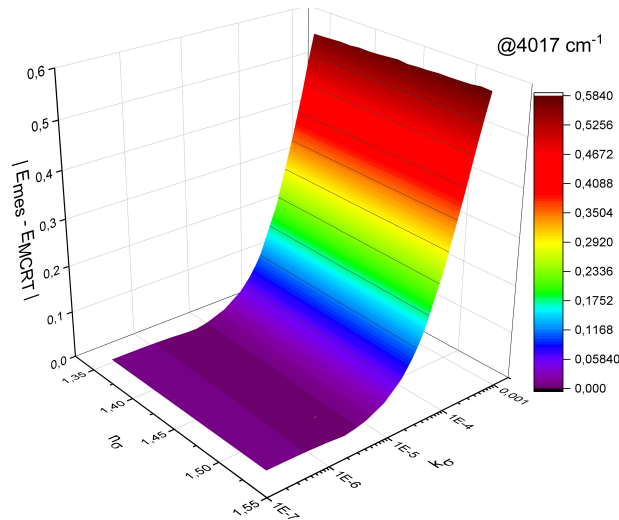
FIGURE 2.36 – Ecart entre les (a) réflectances, (b) transmittances et (c) émittances de l'expérience numérique et celles simulées pour différents couples (n_σ, k_σ) à 3665 cm^{-1} .



(a)



(b)



(c)

FIGURE 2.37 – Ecarts entre les (a) réflectances, (b) transmittances et (c) émittances de l'*expérience numérique* et celles simulées pour différents couples (n_σ, k_σ) à 4017 cm^{-1} .

À 3665 cm^{-1} (situé dans la plage de semi-transparence du matériau numérique fictif), l'espace des solutions de l'indice d'absorption est très restreint. Au contraire, l'espace des solutions de l'indice de réfraction est large. Dans la gamme de transparence (4017 cm^{-1}), l'espace des solutions pour les deux indices est important. En effet, l'émittance du milieu étant faible voire nulle sur cette gamme spectrale, la valeur de l'indice d'absorption n'a plus aucun impact à partir d'un certain seuil, ce qui explique l'agrandissement du domaine de solution par rapport à la plage de semi-transparence.

Ces résultats théoriques montrent d'autre part que l'indice de réfraction impacte très peu les résultats de la simulation puisque plusieurs solutions existent pour reproduire correctement les propriétés radiatives. Par conséquent, bien que l'indice de réfraction soit plus sensible aux erreurs de représentation numérique (§2.6.2), les valeurs optimisées qu'il est possible d'extraire sont pertinentes afin de prédire le comportement radiatif du matériau. À l'inverse, cette faible sensibilité des propriétés radiatives vis-à-vis de l'indice de réfraction est un obstacle pour une identification très précise (au pourcent près) de la valeur de ce dernier. La plus forte sensibilité des propriétés radiatives à l'indice d'absorption rend son identification plus évidente, notamment dans la plage de semi-transparence. Cela est d'autant plus intéressant car c'est ce paramètre qui pilote les transferts d'énergie au sein du milieu dans la gamme spectrale étudiée et qui est utile pour les calculs thermiques présentés au Chapitre 4.

Conclusion du deuxième chapitre

Ce deuxième chapitre a permis de présenter la méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque ainsi que les différents outils qui la composent.

Concernant le code MCRT, les incertitudes numériques liées à la méthode stochastique de Monte-Carlo ont été calculées et ont permis de conclure que des simulations avec 10^5 rayons étaient un bon compromis entre précision et temps de calcul pour les V.E.R. étudiés. Le bon fonctionnement du code ainsi que de l'algorithme d'optimisation a été validé en même temps que la méthodologie d'identification par une première étude purement numérique. Cette dernière a également permis d'identifier certaines limites, notamment concernant la précision avec laquelle il est possible d'extraire les indices de réfraction et d'absorption d'un milieu fibreux. Plusieurs sources d'erreurs peuvent impacter l'identification de ces deux paramètres : une microstructure numérique n'étant pas suffisamment représentative de la microstructure réelle ou encore le bruit de mesure. Cependant, si ces erreurs restent raisonnables (3 à 4% pour n_σ et jusqu'à une dizaine de pourcents pour k_σ), les indices intrinsèques finalement extraits s'avèrent suffisants pour simuler correctement les propriétés radiatives des milieux numériques étudiés, i. e. pour que l'erreur entre la mesure FTIR et la simulation soit en deçà de l'incertitude expérimentale.

En plus de leur utilisation pour les calculs de transferts thermiques présentés au Chapitre 4, les indices extraits à l'aide de cette méthodologie serviront à alimenter une banque de données pour la création de nouveaux matériaux. En effet, les indices n'étant pas effectifs, il est possible de les utiliser pour simuler le comportement radiatif de nouvelles structures composées des mêmes microconstituants mais avec un agencement spatial tout à fait différent (e. g. fibres orientées dans une direction préférentielle) grâce au générateur d'objets et au code MCRT.

Le principe de la méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral ayant été validé, celle-ci est ensuite appliquée à plusieurs matériaux fibreux. Les résultats de ces applications sont présentés dans le chapitre suivant.

Chapitre 3

Identification de l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque de microstructures hétérogènes semi-transparentes

Introduction

Ce troisième chapitre est consacré aux applications de la méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque (à l'échelle des constituants) à des matériaux fibreux semi-transparentes.

La première application concerne un milieu fibreux constitué d'une unique phase solide pour lequel l'indice de réfraction complexe spectral est identifié à température ambiante et jusqu'à environ 1000 K. Ce milieu présentant une forte hétérogénéité spatiale, son étude permet à la fois de valider la méthodologie d'un point de vue pratique mais aussi de conclure sur les limites de cette dernière lorsque les microstructures étudiées sont complexes.

La seconde application porte sur un matériau biphasique : une matrice fibreuse dont les pores sont remplis d'une phase solide semi-transparente. Les indices de chacune des phases sont ainsi identifiés à température ambiante jusqu'à environ 1300 K ce qui permettra la simulation du transfert radiatif du matériau au Chapitre 4.

3.1 Identification de l'indice de réfraction complexe spectral de fibres micrométriques en silice

Le premier matériau étudié dans ce chapitre est un feutre céramique composé de fibres micrométriques en silice pure et produit par l'entreprise Saint-Gobain : le SilPower®.

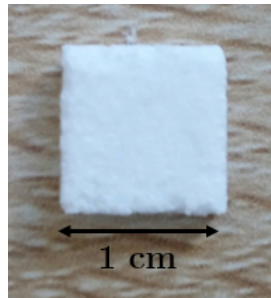


FIGURE 3.1 – Photographie d'un échantillon de SilPower®.

Ce matériau a été choisi pour valider la méthodologie d'un point de vue pratique car la silice est largement étudiée dans la littérature et son comportement radiatif dans le domaine de l'infrarouge est bien connu (ZENG et al., 1996), (C. Z. TAN & ARNDT, 2000), (KITAMURA et al., 2007), (J.-J. ZHAO et al., 2013), (FU et al., 2016).

3.1.1 Génération d'une microstructure numérique représentative du SilPower®

La génération d'une microstructure numérique statistiquement représentative du milieu passe, comme cela a été expliqué en §2.3, par une étude morphologique du milieu, de laquelle sont extraites des lois de distributions qui sont ensuite injectées dans le générateur d'objets.

3.1.1.1 Étude morphologique du SilPower®

Les premières informations concernant la morphologie du SilPower® sont évidemment celles présentes dans la documentation de Saint-Gobain (SAINT-GOBAIN, 2022). Cette dernière annonce, pour la version du SilPower® qui nous concerne ici (SD pour *Standard density*), des diamètres de fibres distribués entre 9 et 14 μm et une densité de 0,65. En estimant la masse volumique de la silice à 2,2 g.cm^{-3} (BRÜCKNER, 1970), cela revient à une fraction volumique de fibre de 29,5%.

Cette valeur a été confrontée à des mesures de pesées hydrostatiques sur plusieurs échantillon de SilPower®. Une fraction volumique de fibres moyenne de 28% (avec un écart-type relatif de 0,7%) a ainsi été calculée, toujours en estimant la masse volumique de la silice à $2,2 \text{ g.cm}^{-3}$. Un écart entre la valeur annoncée par Saint-Gobain et celle calculée est donc à noter même si celui-ci reste relativement faible.

Des premières informations qualitatives concernant la microstructure du matériau ont été extraites d'une étude au microscope électronique à balayage (MEB) (Fig. 3.2). En effet, les fibres du SilPower® sont longues, fines, et rectilignes et il est donc pertinent de les modéliser par des capsules. Des mesures complémentaires par sonde EDS (§1.1.2) ont confirmé que les fibres étaient composées quasi-uniquement de silice (de potentielles impuretés pourraient être présentes mais en trop faibles quantités pour être détectées).

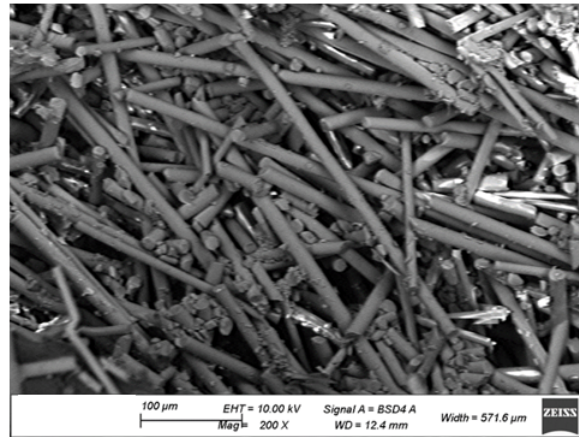


FIGURE 3.2 – Photographie MEB d'un échantillon de SilPower®.

L'analyse MEB ne permettant pas d'accéder à des informations quantitatives concernant les propriétés géométriques des fibres (rayons, longueurs, orientations) ou leur agencement spatial, une première série de mesures de microtomographie à rayons X a été réalisée à l'aide d'un microtomographe à rayons X Nanotom 180NF (GE Phoenix|Xray) disponible sur le campus du CNRS d'Orléans et permettant d'atteindre une taille de voxel de $3 \mu\text{m}$. L'échantillon de SilPower® étudié était un cylindre de 6 mm de diamètre et de 20 mm de hauteur. Plusieurs coupes de cette étude sont présentées en Figure 3.3. Ces dernières mettent en avant une forte hétérogénéité du milieu à une échelle supérieure à celle des constituants (notamment la Figure 3.3c), c'est à dire à une échelle millimétrique plutôt que micrométrique.

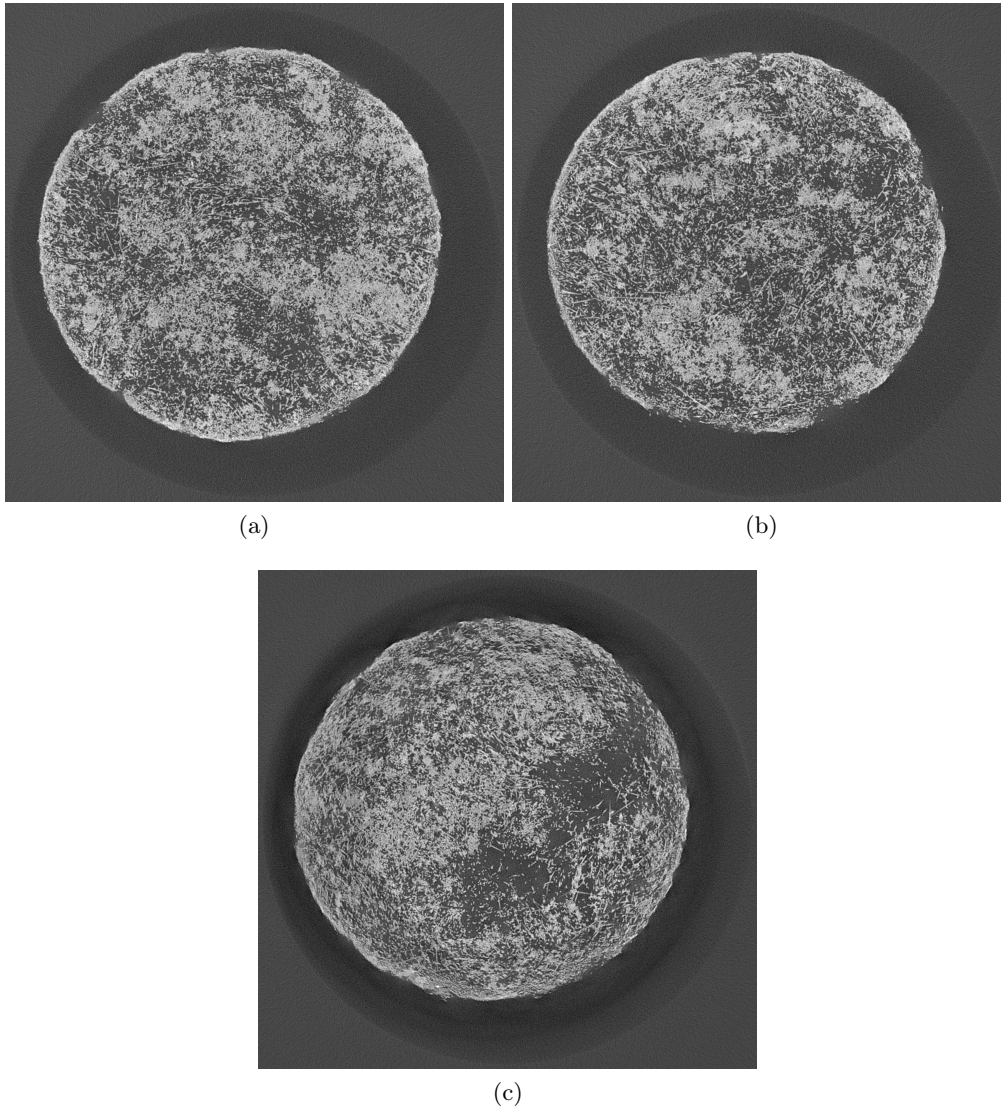


FIGURE 3.3 – Image de microtomographie du SilPower[®] en niveau de gris correspondant à une altitude de (a) 1,91, (b) 4,00 et (c) 6,62 mm à partir du haut de l'échantillon. Les fibres sont les objets les plus clairs. Le diamètre du disque observé est de 6 mm.

Une taille de voxel de $3\text{ }\mu\text{m}$ n'est cependant pas suffisante pour pouvoir identifier les propriétés géométriques de fibres micrométriques. C'est pourquoi une seconde série de mesures par microtomographie à rayons X a été réalisée à l'ESRF (ESRF, 2022), situé à Grenoble. Le dispositif a ainsi permis l'étude de quatre volumes, deux avec une taille de voxel de $0,730\text{ }\mu\text{m}$ (Fig. 3.4) et deux avec une taille de $0,360\text{ }\mu\text{m}$ (Fig. 3.5). Le bon contraste entre les fibres (les objets les plus clairs) et l'air a permis de distinguer facilement les deux phases en présence et de segmenter les images en perdant un minimum d'information sur la géométrie des fibres.

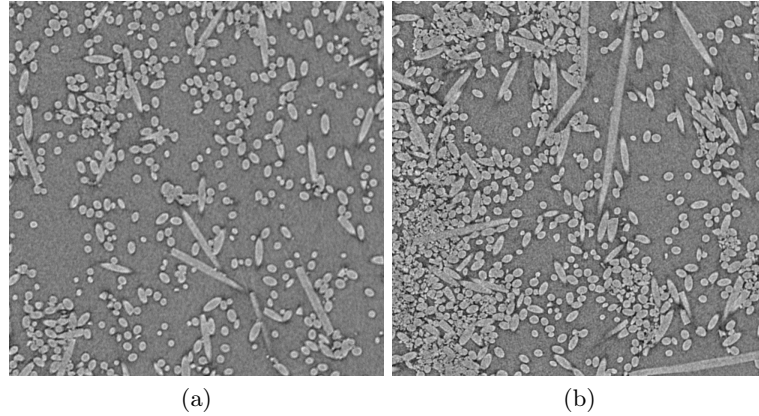


FIGURE 3.4 – Deux images en niveau de gris de microtomographie de 1000 pixels de côté du SilPower[®] avec une taille de pixel de 0,730 μm . Sur l'image (b), on peut observer des zones de forte densité de fibres qui ne sont pas présentes sur l'image (a).

La segmentation des images de tomographie a été réalisée avec le logiciel IPSDK (Fig. 3.5). Cette étape est le résultat de plusieurs techniques de traitements d'image : morphologie mathématique (ouverture/fermeture), filtres passe-bas (Gaussien) et médian.

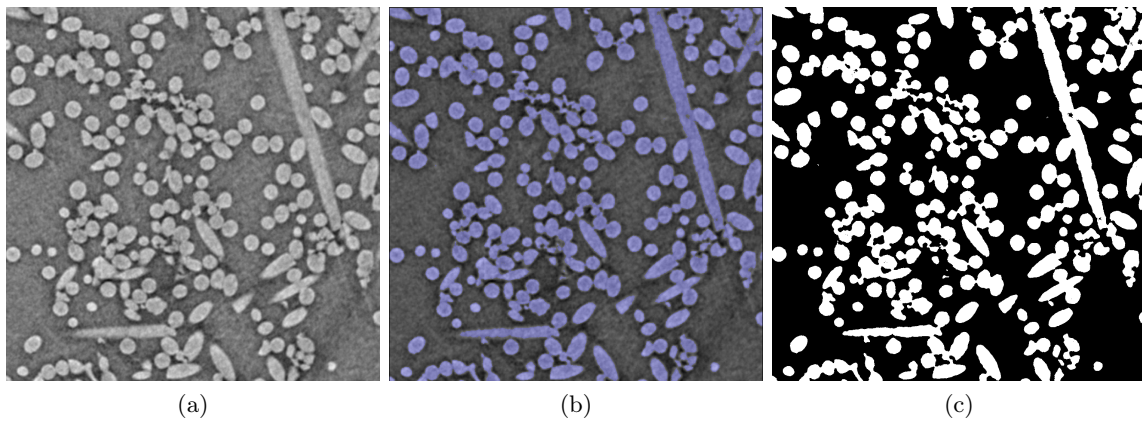


FIGURE 3.5 – (a) Image en niveau de gris de microtomographie de 1000 pixels de côté du SilPower[®] avec une taille de pixel de 0,360 μm et (b) Superposition de l'image en niveau de gris et du résultat de la segmentation montrant que la phase fibreuse a été correctement différenciée du bruit de fond. (c) Image finale segmentée (les fibres sont en blanc, l'air en noir).

Grâce à cette segmentation, et dans le cas d'un milieu ne comprenant qu'une seule phase solide, les fractions volumiques de fibres de chacun des volumes tomographiés sont évaluées en calculant le rapport entre le nombre de voxels associés à la phase fibreuse et le nombre de voxels total (Table 3.1).

La dispersion entre les valeurs de fractions volumiques calculées est importante, avec un écart de 10,6% entre les volumes 3 et 4 malgré une taille de voxel identique (donc un volume sondé équivalent), mettant en évidence, une fois encore, l'hétérogénéité importante du matériau (Fig. 3.4).

Volume	Taille de voxel (μm)	Fraction volumique de fibres (%)
1	0,360	27,5
2	0,360	25,6
3	0,730	19,7
4	0,730	30,3

TABLE 3.1 – Fractions volumiques de fibres calculées pour chacun des volumes tomographiés.

La fraction volumique qui semble la plus représentative du matériau reste néanmoins de 28%, puisque celle-ci a été estimée à partir des pesées hydrostatiques réalisées sur des volumes suffisamment importants (plusieurs cm de côté) pour être supposés représentatifs, contrairement aux plus petits volumes sondés par microtomographie. Il est déjà possible de conclure, par exemple, que le volume tomographié pour une taille de voxel de 0,730 μm et dont la fraction volumique de fibres a été estimée à 19,7% n'est pas représentatif du matériau.

Une fois les volumes tomographiés segmentés, les fibres ont été labellisées grâce au logiciel IPSDK et le volume reconstruit en 3D (Fig. 3.6).

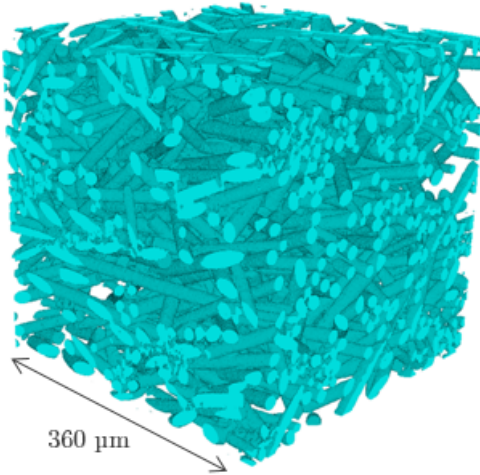


FIGURE 3.6 – Reconstruction 3D d'un volume de SilPower[®] tomographié.

La labellisation est le résultat de plusieurs opérations de traitement d'images qui ne sont pas détaillées dans ce document mais peuvent être trouvées dans (IPSDK, 2022). Grâce à cette étape, il a été possible d'extraire des lois de distributions de rayons, de longueur et d'orientations des fibres. Ces lois sont regroupées dans la Table 3.2.

Propriétés des fibres	Type de loi de distribution	Moyenne	Ecart-type	Min	Max
Rayon (μm)	Log-normale	5,75	1,32	1,78	11,94
Longueur (μm)	Log-normale	44,99	18,64	17,15	199,5
Angle α (rad)	Normale	-0,10	0,37	-1	1
Angle β (rad)	Log-normale	-0,35	0,52	-1	1
Angle χ (rad)	Log-normale	0,43	0,35	0	1

TABLE 3.2 – Paramètres des lois de distributions statistiques des propriétés géométriques des fibres du SilPower[®].

Les lois normale et log-normale sont décrites respectivement par les fonctions de densité de probabilité suivantes :

$$p(X|\bar{\mu}, \hat{\sigma}) = \frac{1}{\hat{\sigma}\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(X - \bar{\mu})^2}{2\hat{\sigma}^2}\right) \quad (3.1)$$

$$p(X|\bar{\mu}, \hat{\sigma}) = \frac{1}{X\hat{\sigma}\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(\ln(X) - \ln(\bar{\mu}))^2}{2\hat{\sigma}^2}\right) \quad (3.2)$$

avec X , la variable aléatoire (e. g. un rayon de fibre), $\bar{\mu}$, la moyenne et $\hat{\sigma}$, l'écart-type.

Les lois de distributions ont été évaluées en étudiant les quatre volumes tomographiés (Table 3.1). Les distributions des paramètres géométriques de ces différents volumes sont présentées en Annexe A.1.

Les distributions de rayons extraites aux deux différentes échelles ne sont pas équivalentes. En effet, à cause de l'hétérogénéité importante du matériau, les volumes sondés pour une taille de voxel de 0,360 μm (donc des volumes plus petits que pour une taille de voxel de 0,730 μm) ne permettent pas d'extraire des distributions représentatives en ce qui concerne le rayon des fibres. Ce sont donc les distributions des volumes tomographiés avec une taille de voxel de 0,730 μm qui sont utilisées par la suite.

Pour la longueur et l'orientation, les distributions extraites sont similaires d'un volume à l'autre et ce pour les deux échelles, ce qui signifie que les variations de densités locales de fibres n'ont pas d'influence sur celles-ci. Dans ces conditions, il est donc fait l'hypothèse que les lois de distributions des paramètres des fibres extraites des volumes tomographiés sont représentatives du matériau et peuvent donc être utilisées pour la génération d'une microstructure statistiquement représentative.

3.1.1.2 Génération non contrainte d'un milieu numérique

Des premières microstructures numériques du SilPower[®] sont générées à partir des lois de distributions extraites précédemment avec des fractions volumiques de fibres de 20, 28 et 30%. Une fraction volumique de 28% correspond à la fraction réelle estimée pour ce matériau. Les autres fractions volumiques, extraites des volumes tomographiés (Table 3.1), sont néanmoins étudiées pour évaluer l'influence de ce paramètre volumétrique sur l'optimisation de l'indice de réfraction complexe spectral.

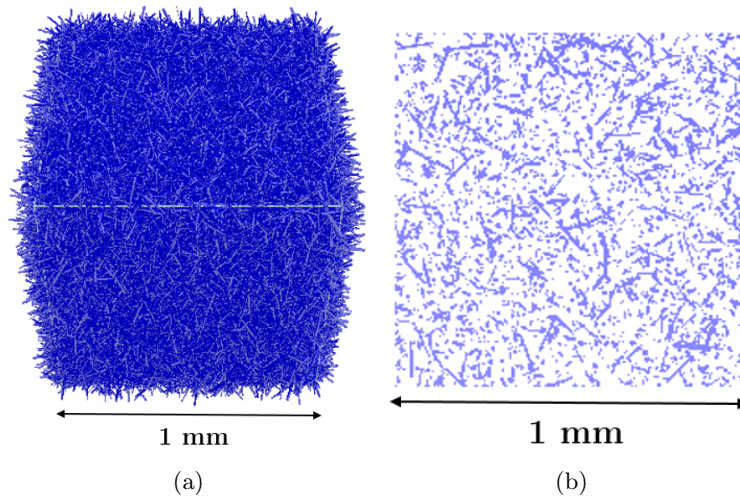


FIGURE 3.7 – (a) Image d'une cellule élémentaire numérique de SilPower[®] (28% de fraction volumique de fibres) et (b) une coupe 2D de cette cellule (les fibres sont bleues).

Les structures numériques résultantes sont donc des échantillons poreux, fibreux, avec une répartition relativement homogène des fibres dans le volume, ces dernières étant placées sans aucune contrainte dans l'espace, c'est-à-dire aléatoirement selon une loi de distribution uniforme (Fig. 3.7b). Ces microstructures ne prennent alors pas en compte les hétérogénéités à l'échelle millimétrique observées lors de l'étude par microtomographie avec une taille de voxel de 3 μm . Les cellules élémentaires des échantillons numériques sont des cubes de 1 mm de côté. Ce volume comprend un nombre de fibres suffisamment important (environ 4.10^4) pour que les lois de distributions statistiques soient représentatives. Par expérience, la taille minimale de cellule doit être au moins 10 fois plus importante que la propriété géométrique la plus grande (DAUVOIS, 2016). Dans le cas présent, le côté de la cellule est en moyenne 20 fois plus grand que la longueur d'une fibre.

3.1.2 Identification de l'indice de réfraction complexe spectral du SilPower® à partir d'une microstructure numérique non contrainte

Les calculs d'optimisation présentés dans cette section ont été réalisés à partir des microstructures générées en §3.1.1.2 et d'indices optiques identifiés sur un verre de silice homogène par Rozenbaum *et al.* (ROZENBAUM *et al.*, 2019). Ces indices optiques constituent un bon point de départ car les fibres du SilPower® sont pures, ce qui suppose que leur indice de réfraction doit être relativement proche de celui de départ. L'indice d'absorption n'a pas d'importance, puisque que celui-ci est approché par une étape de pre-processing.

Plusieurs échantillons parallélépipédiques de SilPower® ont été préparés pour des mesures avec une sphère intégrante. Les échantillons ont des sections carrés de 2 cm de côté et des épaisseurs variant de 1,8 à 3,0 mm. Cette gamme d'épaisseurs est optimale car le flux transmis par le milieu est alors suffisamment important pour être mesuré et les échantillons (très fragiles) sont assez épais pour assurer le parallélisme des faces lors de la préparation sans être endommagés. L'aire du matériau sondée lors des mesures est un disque de 16 mm de diamètre.

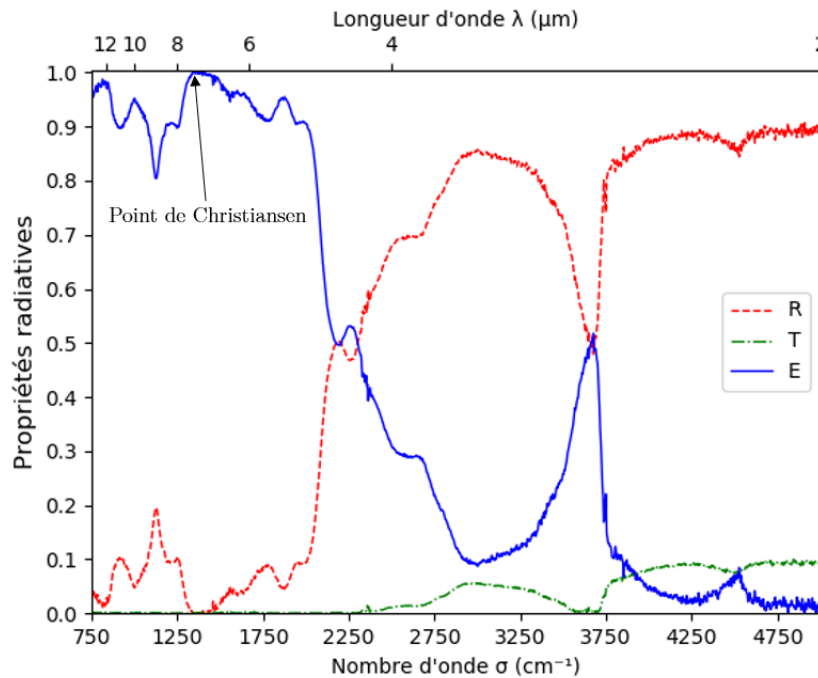


FIGURE 3.8 – Réflectance (R) et transmittance (T) normales-hémisphériques mesurées et émittance (E) déduite par la loi de Kirchhoff d'un échantillon de SilPower® de 2,85 mm d'épaisseur. L'incertitude expérimentale sur les mesures de réflectance et transmittance dans la gamme spectrale étudiée est estimée à $\pm 0,01$. Elle est estimée à $\pm 0,02$ pour l'émittance.

La Figure 3.8 présente les mesures réalisées sur un échantillon de 2,85 mm d'épaisseur. Le point de Christiansen (nécessaire pour évaluer la température lors des mesures d'émittance) a été identifié à 1370 cm^{-1} . Il est à noter que ce point se décale légèrement vers les plus petits nombres d'onde avec une augmentation de la température. Ce décalage est pris en compte lors des mesures d'émittance directe pour déterminer la température (ROUSSEAU et al., 2005).

Les différentes contributions observables sur ces spectres sont typiques des phénomènes d'absorption de la silice. Chacune de ces contributions est identifiée par Li (H. LI, 2018). La gamme spectrale d'intérêt pour notre étude est celle de la semi-transparence qui débute ici aux alentours de 2000 cm^{-1} (au niveau du front de transmission). On notera tout particulièrement la contribution de deux pics d'absorption dans cette gamme, aux alentours de 3660 et 4500 cm^{-1} . Ces pics correspondent respectivement aux absorptions induites par les vibrations des groupes O-H et Si-O-H.

3.1.2.1 Effet de la fraction volumique de fibres sur l'indice de réfraction complexe spectral identifié

Trois exemples de calculs d'optimisation de l'indice de réfraction complexe spectral sont présentés en Figure 3.9.

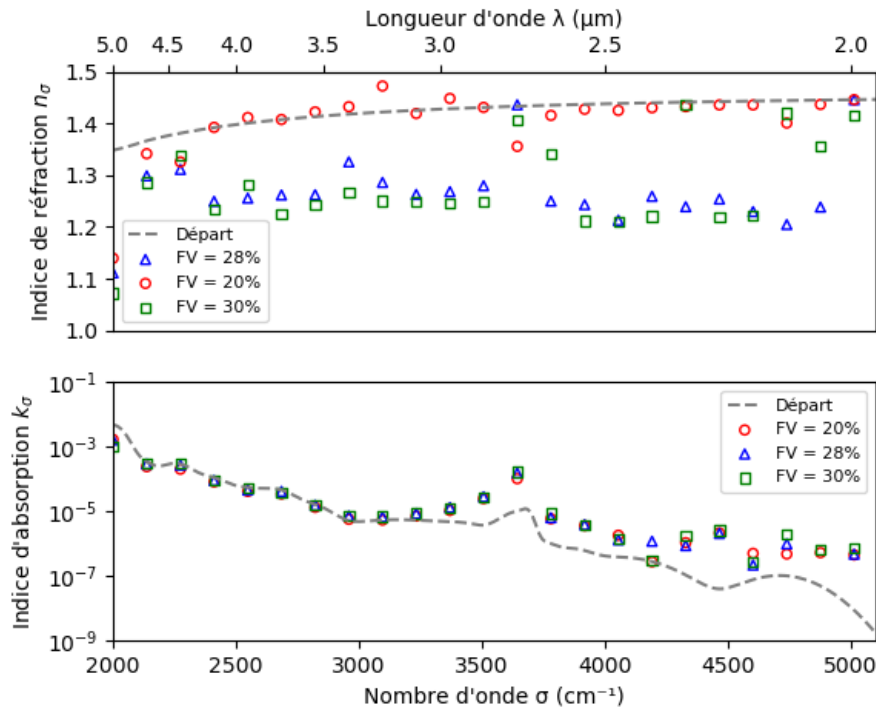


FIGURE 3.9 – Indices de réfraction et d'absorption spectraux du SilPower[®] optimisés à partir de trois microstructures numériques de fractions volumiques de fibres de 20, 28 et 30%.

Ces calculs ont été respectivement effectués sur les microstructures de 20, 28 et 30% de fraction volumique de fibres et de 2,85 mm d'épaisseur. Le matériau étant hétérogène, il s'agissait d'évaluer l'influence de la fraction volumique sur l'optimisation de l'indice de réfraction complexe. En d'autres termes, les microstructures générées sont-elles représentatives du matériau étudié? Les calculs ont été répétés plusieurs fois et sur différentes structures générées à partir des mêmes paramètres d'entrée du générateur d'objets pour les trois fractions volumiques. Les résultats étant constants d'une simulation à l'autre, on considère par la suite que les exemples présentés sont représentatifs des différents calculs réalisés.

Les indices ont été optimisés dans les gammes de semi-transparence et transparence, soit l'intervalle $[2500, 5000]$ cm^{-1} . En dessous de 2500 cm^{-1} , la validité de l'approximation de l'optique géométrique devient questionnable pour ce matériau et au delà de 5000 cm^{-1} , le comportement radiatif n'évolue plus (dans la gamme d'intérêt) et il n'est donc pas nécessaire de calculer des points supplémentaires.

Pour les trois fractions volumiques, l'algorithme d'optimisation converge vers des valeurs relativement équivalentes d'indices d'absorption sauf dans la gamme de transparence ($\sigma > 4000 \text{ cm}^{-1}$), où un comportement similaire à celui de la validation numérique est observé (voir §2.6) : à partir d'une valeur seuil minimale, l'indice d'absorption n'a plus d'influence sur la simulation des propriétés ce qui revient à un espace de solutions très large pour sa valeur lors de l'optimisation. C'est pourquoi, pour certains nombres d'onde, l'indice d'absorption pour une fraction volumique de 20% est plus élevé que pour une fraction volumique de 28 ou 30% et vice versa.

La variation d'indice de réfraction entre les trois fractions volumiques est en revanche plus importante. Seuls les indices optimisés pour une fraction volumique de 20% sont en accord avec les indices de réfraction de départ. Pour les fractions volumiques plus importantes, les indices de réfraction sont globalement plus faibles.

À ce stade, l'interprétation de ces résultats remet en question soit la pureté supposée des fibres, soit la fraction volumique de fibres dans le matériau. En effet, si les fibres sont pures, les indices attendus devraient être ceux de départ et devraient être obtenus pour des fractions volumiques de 28 ou 30%. En d'autres termes cela signifie que les fibres sont polluées par des composants qui n'ont pas été détectés par analyse EDS ou bien que les microstructures numériques ne sont pas représentatives de la microstructure réelle.

Les propriétés radiatives de l'échantillon de SilPower[®] de 2,85 mm d'épaisseur (Fig. 3.8) ont été simulées avec les indices extraits du processus d'optimisation sur une microstructure numérique de 20% de fraction volumique de fibres, et comparées aux propriétés expérimentales. Ces mesures ayant servies dans le processus d'optimisation, l'accord entre la simulation et l'expérience devrait être très bon, puisque c'est en réduisant les écarts au maximum que l'on remonte à l'indice de réfraction complexe. Cependant, cela n'est pas confirmé par la Figure 3.10a où des écarts importants entre les propriétés radiatives simulées et expérimentales sont observés. Cela signifie donc que la meilleure solution d'optimisation obtenue avec une microstructure d'une fraction volumique de fibres de 20% ne permet pas de minimiser suffisamment les écarts entre simulation et mesures. Par conséquent, il est conclu que cette microstructure n'est pas représentative du SilPower[®], ce qui était envisageable au vu de la fraction volumique de fibres plus faible que les 28% attendus.

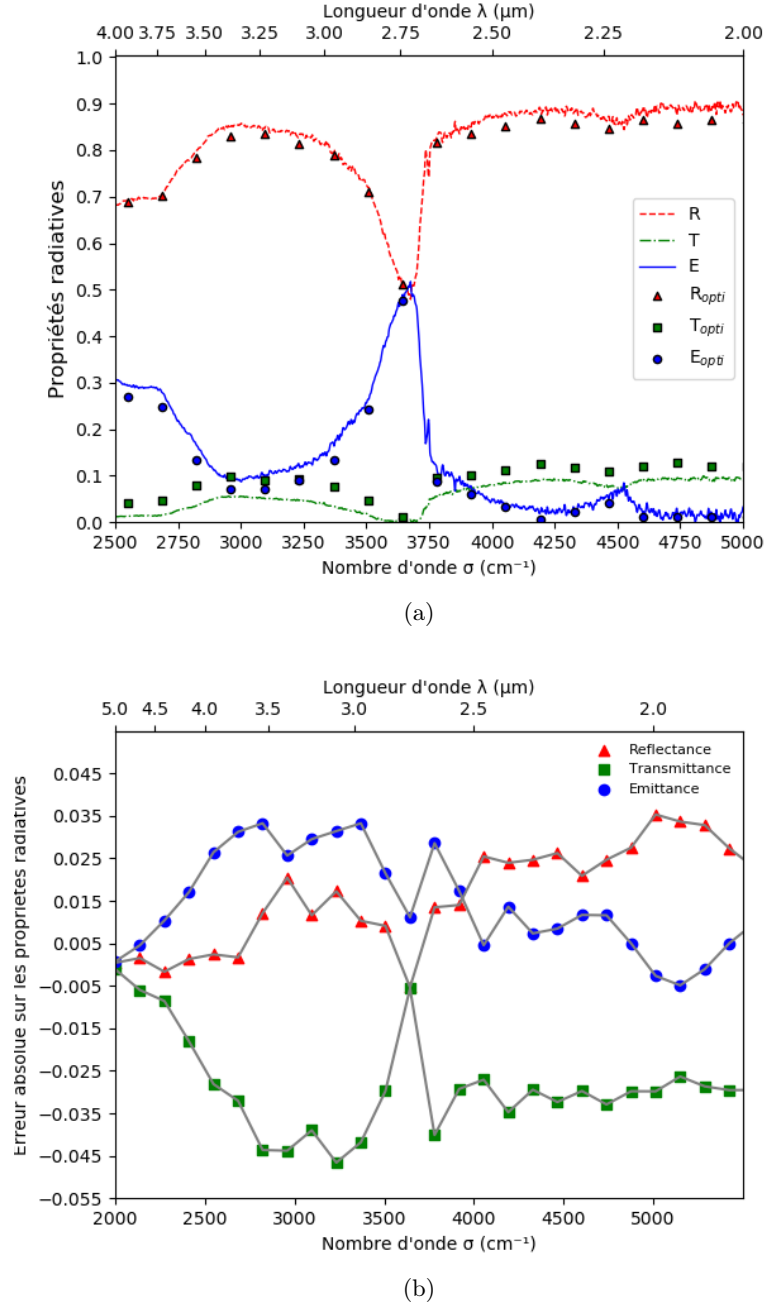
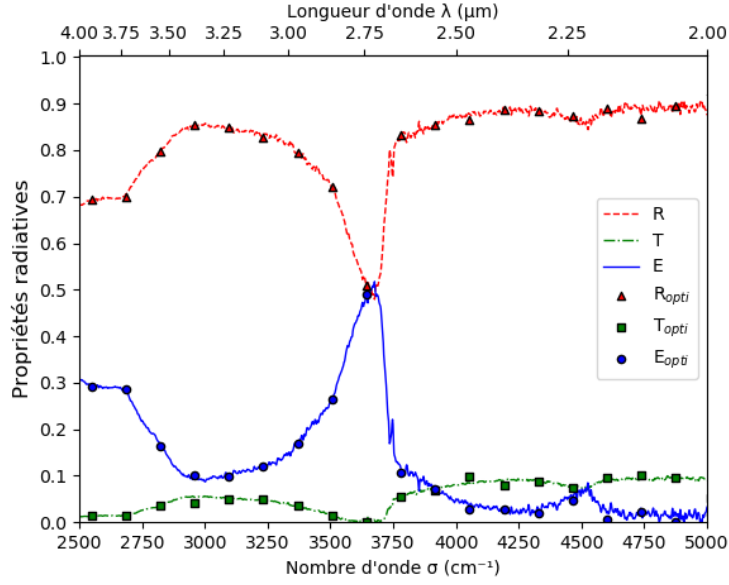
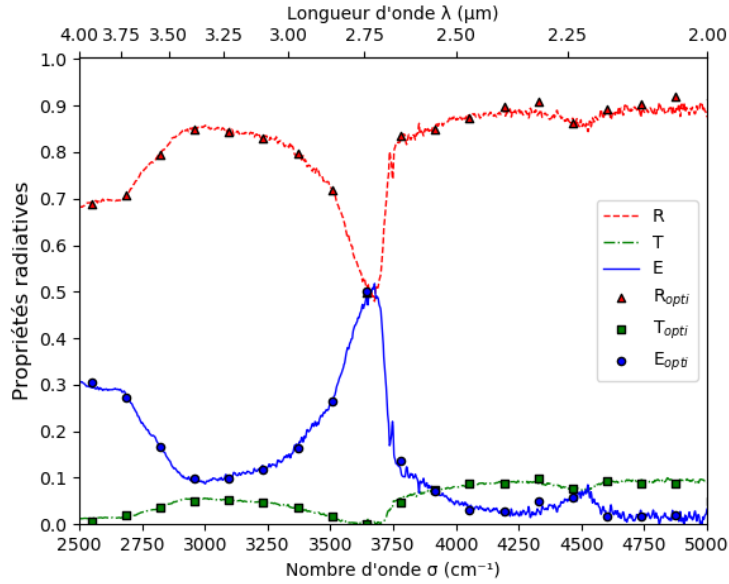


FIGURE 3.10 – Les propriétés radiatives simulées d'un échantillon de SilPower[®] de 2,85 mm sont comparées aux propriétés expérimentales. L'erreur absolue entre les deux jeux de données est évaluée en fonction du nombre d'onde. Le processus d'optimisation réalisé avec une microstructure de 20% de fraction volumique de fibres ne permet même pas de réduire les écarts entre expérience et simulation en deçà des incertitudes de mesure.

Pour les microstructures dont les fractions volumiques de fibres sont de 28% et 30%, les indices identifiés sont issus d'une bonne minimisation (un bon "fit") des écarts entre l'expérience et la simulation (Fig. 3.11) puisqu'il est possible de reproduire les propriétés radiatives avec les indices optimisés. En revanche, que se passe-t-il si ces indices sont utilisés pour simuler les propriétés radiatives d'échantillons de SilPower[®] différents de celui qui a servi à l'optimisation, par exemple des échantillons d'épaisseurs différentes ? Les indices extraits étant intrinsèques, ces derniers devraient permettre une simulation cohérente quel que soit le volume de SilPower[®] étudié.



(a)



(b)

FIGURE 3.11 – Comparaison entre les propriétés radiatives expérimentales d'un échantillon de SilPower[®] de 2,85 mm d'épaisseur et les propriétés simulées issus des calculs d'optimisation avec des fractions volumiques de fibres de (a) 28% et (b) 30%.

Pour vérifier que ces indices sont bien intrinsèques et ont donc été identifiés à partir d'un V.E.R., les propriétés radiatives d'un échantillon de SilPower[®] de 2,20 mm d'épaisseur ont été simulées directement avec les indices extraits de l'optimisation sur un échantillon de 2,85 mm d'épaisseur. Les microstructures numériques ne font plus 2,85 mm d'épaisseur comme lors de l'optimisation mais 2,20 mm. On rappelle, comme cela a été montré au Chapitre 2 (§2.4.5), que la "découpe numérique" de l'échantillon n'a pas d'influence sur la simulation des propriétés radiatives du milieu.

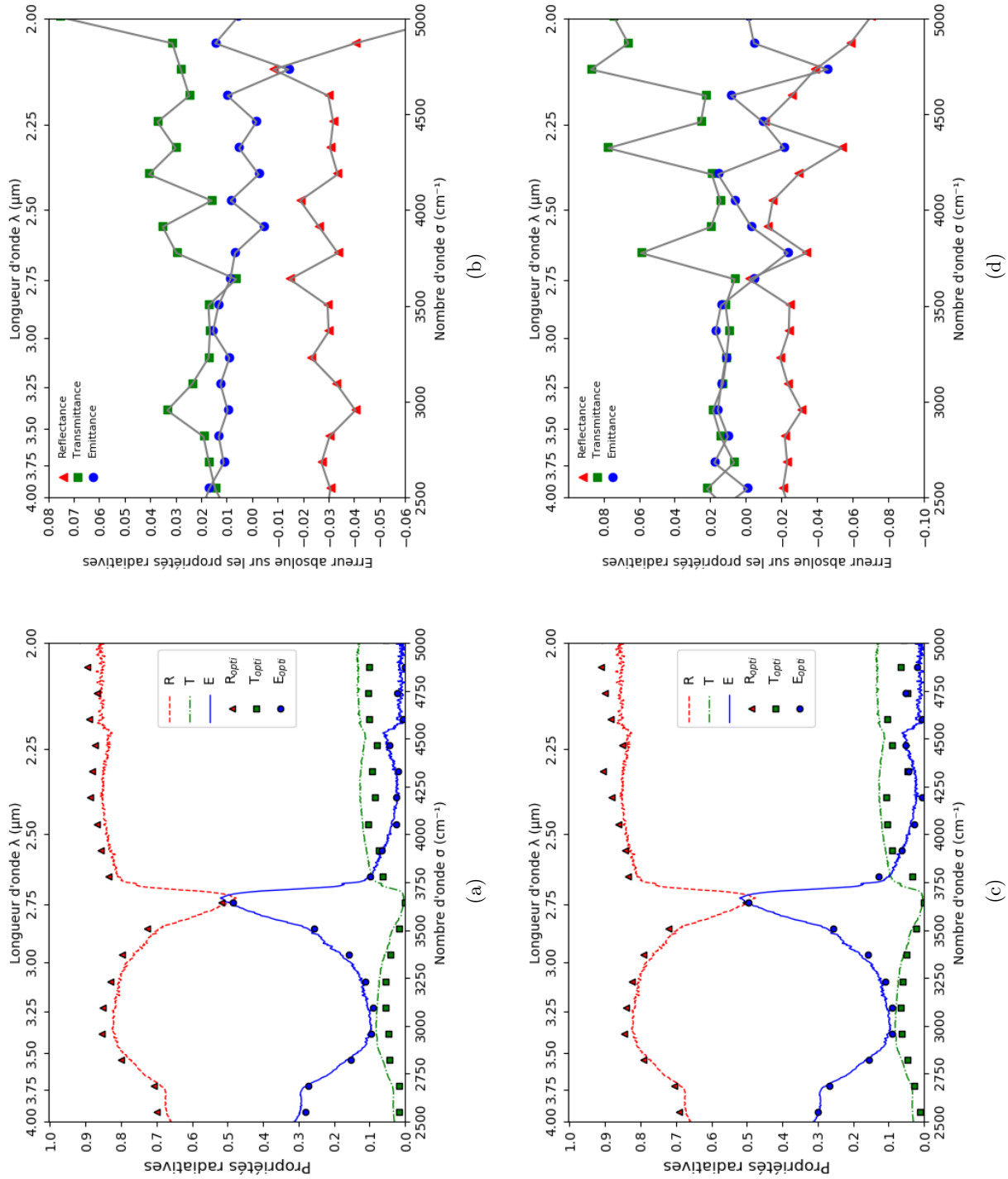


FIGURE 3.12 – Propriétés radiatives simulées pour des fractions volumiques de fibres de (a) 28% et (c) 30% et expérimentales obtenues sur des échantillons de SiPower® numérique et réel de 2,2 mm d'épaisseur. L'erreur absolue entre l'expérience et la simulation est évaluée pour chaque fraction volumique : (b) 28% et (d) 30%.

Comme le montre la Figure 3.12, l'hypothèse du V.E.R. n'est vérifiée pour aucune des deux microstructures. En effet, pour ces expériences numériques, les écarts entre les propriétés radiatives simulées et expérimentales (Fig. 3.12b et 3.12d) sont au delà de l'incertitude de mesure, évaluée à 0,01 pour les mesures de réflectance et transmittance et à 0,02 pour l'émittance. Une microstructure générée à partir d'une cellule élémentaire d'1 mm de côté ne permet donc pas d'obtenir un V.E.R. du SilPower[®] et il n'est par conséquent pas possible de conclure quant à la validité des indices extraits à partir de ces milieux numériques.

3.1.2.2 Influence de la taille de la cellule élémentaire sur les indices optiques optimisés

De nouveaux calculs d'optimisation ont été effectués avec une microstructure numérique de fraction volumique de fibres de 28%, mais cette fois-ci avec une cellule élémentaire de 5 mm de côté. Les résultats de ces nouveaux calculs d'optimisation sont équivalents à ceux obtenus pour une cellule élémentaire de 1 mm de côté (Fig. 3.13).

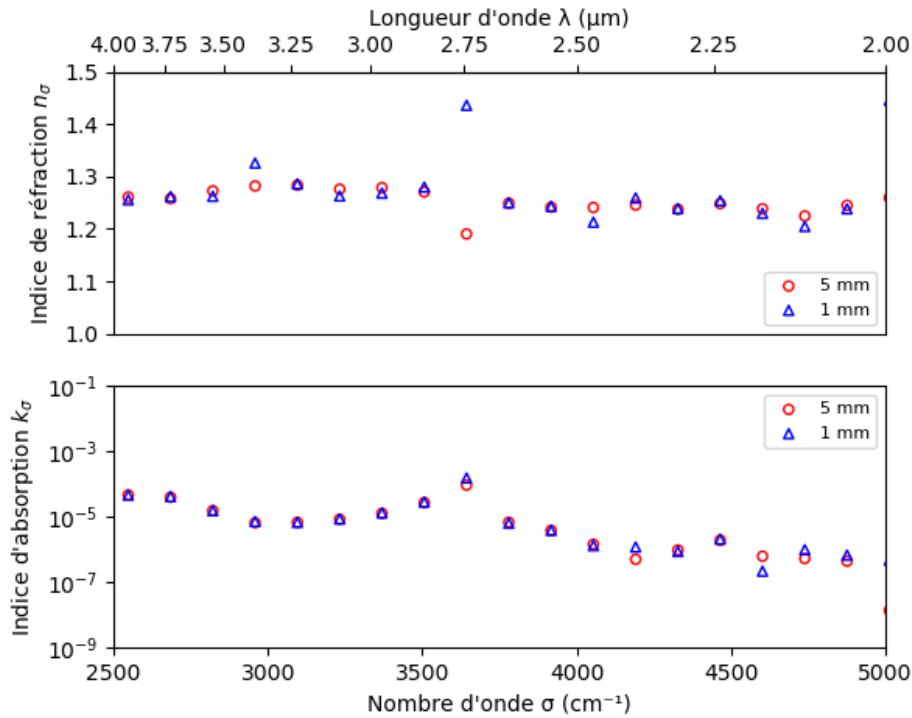


FIGURE 3.13 – Indices de réfraction et d'absorption spectraux obtenus à partir de cellules élémentaires de 1 et 5 mm. Les calculs d'optimisation mènent à des résultats similaires. L'écart observé vers 3660 cm^{-1} est la conséquence des limites du modèle de pre-processing. La valeur de l'indice d'absorption étant trop éloignée d'une solution, l'algorithme compense en modifiant fortement l'indice de réfraction.

La microstructure n'est donc pas plus représentative du SilPower[®] malgré une cellule élémentaire beaucoup plus grande. En d'autres termes, il n'est pas possible d'identifier un V.E.R. avec les données entrées dans le générateur d'objets. Pour conclure, ces résultats mettent en avant la nécessité de prendre en compte les hétérogénéités observées à l'échelle millimétrique (Fig. 3.3) pour pouvoir extraire un V.E.R. du SilPower[®].

3.1.3 Identification de l'indice de réfraction complexe spectral à partir de microstructures numériques incluant des hétérogénéités millimétriques

Pour pouvoir prendre en compte les hétérogénéités millimétriques du SilPower[®], de nouvelles cellules élémentaires cubiques de 5 mm de côté ont été générées. Cette fois-ci, la fraction volumique a été directement fixée à 28%, valeur estimée à partir de pesées hydrostatiques sur les échantillons utilisés pour les mesures par spectroscopie FTIR.

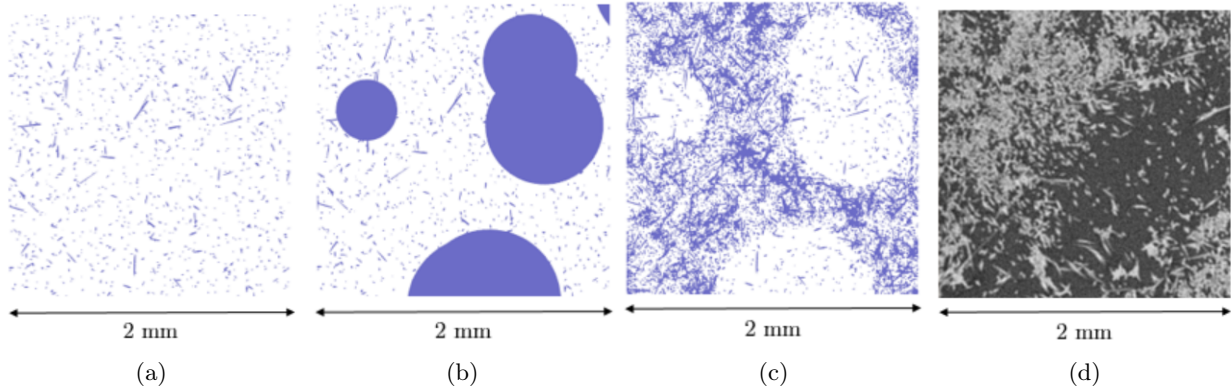


FIGURE 3.14 – Coupes réalisées aux différentes étapes de génération d'une cellule élémentaire numérique contenant des hétérogénéités à l'échelle millimétrique. (a) Une première phase fibreuse est générée, puis (b) des sphères assimilables à des bulles d'air sont insérées dans le volume. (c) Une seconde phase fibreuse, dont les fibres ne peuvent pas être positionnées dans le volume des sphères est finalement générée pour obtenir le volume final. Sur ces images, les fibres sont en bleu. L'image (d) est un agrandissement d'une coupe du SilPower[®] pour comparaison (les fibres sont en niveaux de gris).

Pour pouvoir simuler des répartitions inégales de fibres, les cellules élémentaires ont été générées à partir de trois phases (Fig. 3.14). La première phase est une phase fibreuse de faible fraction volumique (d'une dizaine de pourcents). Les fibres de celle-ci sont positionnées aléatoirement dans le volume de la cellule élémentaire selon une loi uniforme. La deuxième phase générée est une phase contenant des sphères dont la distribution de rayon correspond à celle des zones de faibles densités de fibres (i. e. les zones les plus foncées sur la Figure 3.14d). La fraction volumique de sphères à générer a été estimée à l'aide du logiciel IPSDK en identifiant manuellement les zones de faibles densité sur le volume tomographié complet. Ces sphères peuvent s'interpénétrer et se superposer aux fibres de la première phase et auront les mêmes indices optiques spectraux que la phase fluide du matériau (dans le cas présent, de l'air). Finalement, une troisième phase de fibres de mêmes indices optiques que la première est générée, mais les fibres de cette phase ne peuvent pas pénétrer les sphères. Leur position est alors contrainte dans les espaces libres entre les sphères. De cette façon il est possible de générer une cellule élémentaire avec des zones de densité de fibres différentes. Les fibres de la troisième phase sont générées jusqu'à atteindre la fraction volumique totale de fibres attendue, soit 28%.

Comme la résolution des images de microtomographie de la Figure 3.3 était trop petite par rapport à la taille des fibres, il n'a pas été possible de segmenter ces images en niveau de gris pour évaluer les fractions volumiques des zones de forte et de faible densité de fibres (seulement 2 à 4 voxels suivant le diamètre des fibres). Plusieurs échantillons numériques ont donc été générés en faisant varier la fraction volumique de la première phase de fibres (et donc également celle de la seconde puisque la valeur totale ciblée est de 28%). Des calculs d'optimisation ont été réalisés sur chacune de ces différentes microstructures numériques pour identifier celle qui était la plus représentative du SilPower[®].

3.1.3.1 Identification de l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque à température ambiante

Les résultats présentés ci-après sont la synthèse d'une étude réalisée sur plusieurs microstructures numériques. Pour chaque configuration de microstructure étudiée, deux microstructures ont été générées à chaque fois pour s'assurer que la disposition des hétérogénéités dans le volume n'avait pas d'influence sur l'extraction des indices. Pour chacune de ces deux microstructures, le calcul d'optimisation a été relancé cinq fois pour s'assurer de la stabilité des résultats.

Ces calculs ont été réalisés à partir des spectres expérimentaux d'un échantillon de SilPower® de 2,85 mm d'épaisseur (Fig. 3.8). Les propriétés radiatives d'un échantillon de 2,20 mm d'épaisseur ont ensuite été simulées avec la moyenne des dix jeux d'indices optiques extraits des dix calculs d'optimisation (5 par microstructure). L'écart-type relatif moyen sur les dix calculs pour chaque nombre d'onde était de 1,3% pour l'indice de réfraction et 3,3% pour l'indice d'absorption. La microstructure permettant de simuler les propriétés radiatives avec le plus de précision a ainsi été retenue.

La Figure 3.15 présente les indices de réfraction et d'absorption spectraux moyens du SilPower® extraits d'une microstructure incluant des hétérogénéités à l'échelle millimétrique. On rappelle qu'aucune contrainte n'est imposée lors de l'optimisation. Les indices d'absorption optimisés, plus élevés que les indices de départ aux alentours de 3660 et 4500 cm^{-1} , montrent la présence d'impuretés (groupes hydroxyles) en plus grande concentration dans les fibres que dans le verre (indices de départ).

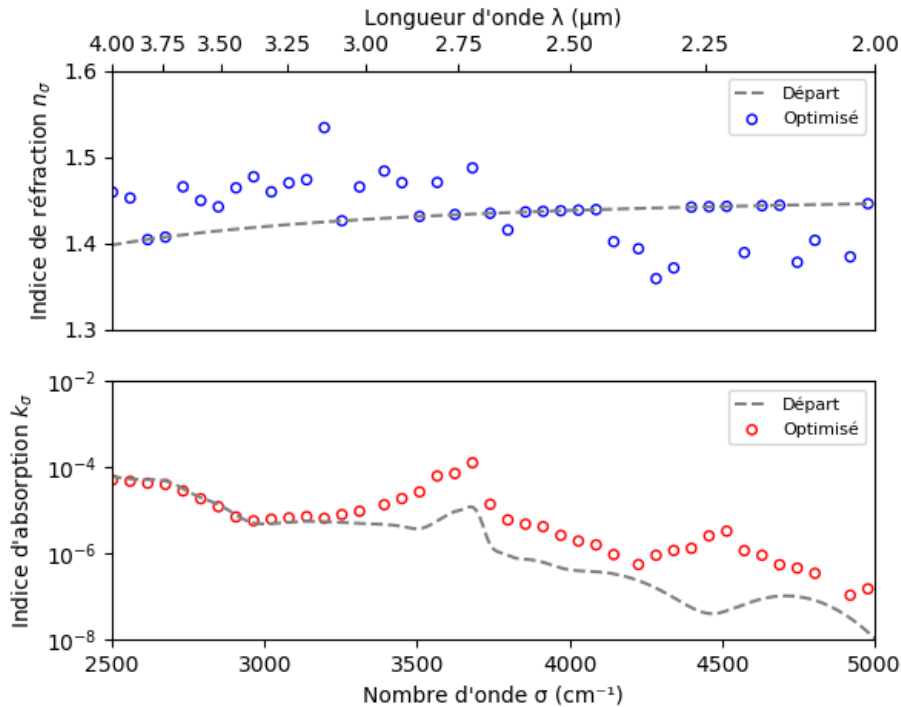


FIGURE 3.15 – Indices de réfraction et d'absorption spectraux moyens identifiés à partir d'une microstructure numérique incluant des hétérogénéités à l'échelle millimétrique et à partir de mesures de spectroscopie FTIR. Les échantillons numérique et réel font 2,85 mm d'épaisseur.

L'évolution de l'indice de réfraction réel avec le nombre d'onde n'est pas cohérente avec le comportement attendu pour une phase pure que sont censées être les fibres de SilPower®. En effet, on devrait observer une évolution monotone de l'indice avec le nombre d'onde puisque qu'il n'y

pas de mécanisme d'absorption particulier dans cette gamme spectrale (§1.2.1). C'est d'ailleurs le cas pour l'indice de réfraction réel du verre qui sert d'indice de départ (Fig. 3.15). Ces variations significatives de l'indice de réfraction des fibres de SilPower[®] pour des nombres d'onde très proches peuvent avoir plusieurs origines : des erreurs dues au bruit de mesure (§2.6.3), une sensibilité plus ou moins importante des propriétés radiatives à l'indice de réfraction complexe en fonction du nombre d'onde (§2.6.4) ou encore des erreurs de représentation numérique (§2.6.2). Toutefois, si l'optimisation a été réalisée avec un V.E.R., cette dernière source d'erreur devrait être minimale.

Pour vérifier cette représentativité de la microstructure numérique, les propriétés radiatives d'un échantillon numérique de 2,2 mm d'épaisseur simulées avec les indices identifiés en Figure 3.15 (donc sur un échantillon de 2,85 mm) ont été comparées avec leurs équivalents expérimentaux (Fig. 3.16).

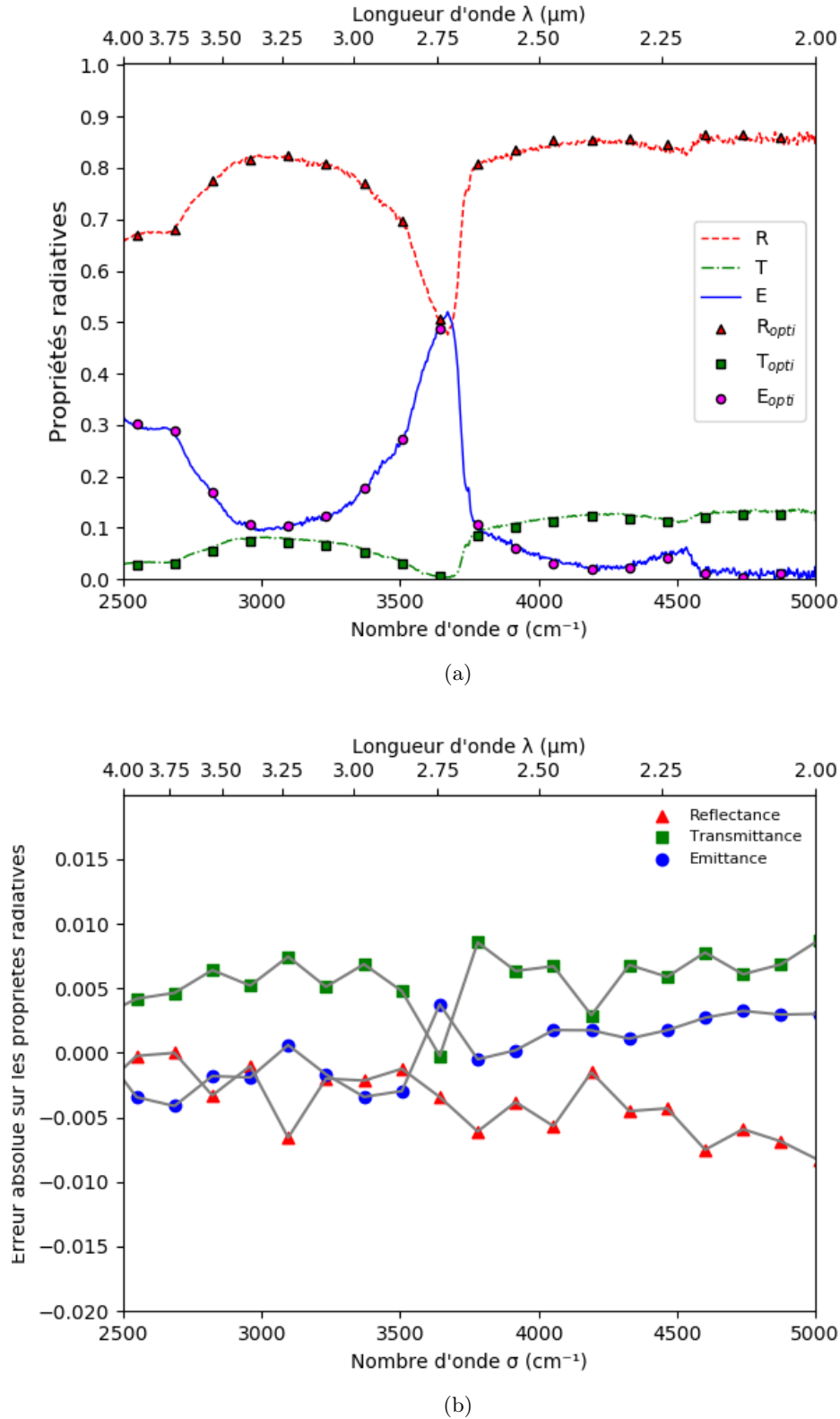


FIGURE 3.16 – (a) Propriétés radiatives expérimentales et simulées d'un échantillon de SilPower[®] de 2,20 mm d'épaisseur. Les propriétés simulées ont été obtenues par une simulation MCRT avec les indices optiques extraits d'une optimisation sur un échantillon de 2,85 mm d'épaisseur. (b) Erreur absolue entre les propriétés radiatives expérimentales et simulées en fonction du nombre d'onde.

Les propriétés ainsi simulées sont en accord avec l'expérience, puisque les écarts avec cette dernière sont suffisamment faibles (i. e. compris dans l'incertitude de mesure). Il peut donc être conclu que la prise en compte des hétérogénéités à l'échelle millimétrique a permis d'identifier un V.E.R. du SilPower® et que l'indice de réfraction complexe spectral extrait est représentatif de l'indice de réfraction complexe spectral réel des fibres de ce matériau. En effet, il sera possible, avec cet indice de réfraction complexe spectral optimisé, de simuler avec suffisamment de précision le comportement radiatif de n'importe quel volume composé de fibres de SilPower®, ce qui remplit les objectifs de la méthode d'identification.

L'intérêt du générateur d'objet et du MCRT est de pouvoir générer des échantillons et de simuler leurs propriétés radiatives relativement rapidement. Or, la prise en compte des hétérogénéités millimétriques dans la simulation a une influence non négligeable sur ces temps de calculs. Premièrement, l'agrandissement de la cellule élémentaire d'un facteur 5 dans chacune des dimensions de l'espace (de 1 à 5 mm) augmente grandement le nombre de constituants à placer dans le volume et par conséquent le nombre de tests à réaliser pour les positionner. Ce nombre de tests est encore plus important lors de la génération de milieux contraints, comme c'est le cas ici lorsque certaines fibres ne peuvent pas pénétrer les "sphères d'air". À titre d'exemple, il faut environ 30 secondes pour générer sans contraintes une microstructure de 28% de fraction volumique de fibres alors qu'environ deux heures sont nécessaires pour générer la microstructure présentée dans cette section avec la même puissance de calcul. Le chargement de la cellule élémentaire lors des calculs MCRT est également plus long puisque le fichier matériau comporte plus d'entrées, i. e. une ligne par constituant, soit environ 4.10^4 pour la microstructure non-contrainte et 5.10^6 pour la microstructure contrainte. La mémoire vive nécessaire au calcul est un facteur limitant supplémentaire puisqu'il faut sauvegarder ces entrées en mémoire lors des calculs MCRT. La mémoire vive nécessaire au chargement de la microstructure contrainte est par exemple de 44 Go, capacité non disponible sur un ordinateur portable classique. Une forte hétérogénéité des matériaux poreux est donc une limite pratique de la méthodologie d'identification développée au cours de ces travaux.

3.1.3.2 Identification de l'indice d'absorption spectral des fibres de SilPower® en température

Les calculs thermiques du Chapitre 4 portant sur des applications hautes températures, il a également été nécessaire de quantifier l'évolution des caractéristiques radiatives du SilPower® en température. On rappelle que pour cette étape d'identification, la seule propriété radiative disponible expérimentalement est l'émittance et seul l'indice d'absorption de la phase étudiée du matériau est optimisée. L'indice de réfraction spectral réel identifié à température ambiante est alors utilisé pour les calculs d'optimisation en température, de même que la microstructure générée précédemment.

La Figure 3.17 présente l'évolution de l'émittance d'un échantillon de SilPower® de 2,00 mm d'épaisseur en fonction de la température. Pour la mesure à 702 K, le spectre est très bruité dans la gamme de transparence car le signal capté par le détecteur DTGS du Vertex 80v est faible. Pour des raisons de concision, seuls les résultats de l'optimisation de l'indice d'absorption à 1010 K sont présentés ici. Il est cependant évident que la méthodologie est applicable sur n'importe quel spectre d'émittance dans la gamme spectrale d'intérêt, quelque soit la température.

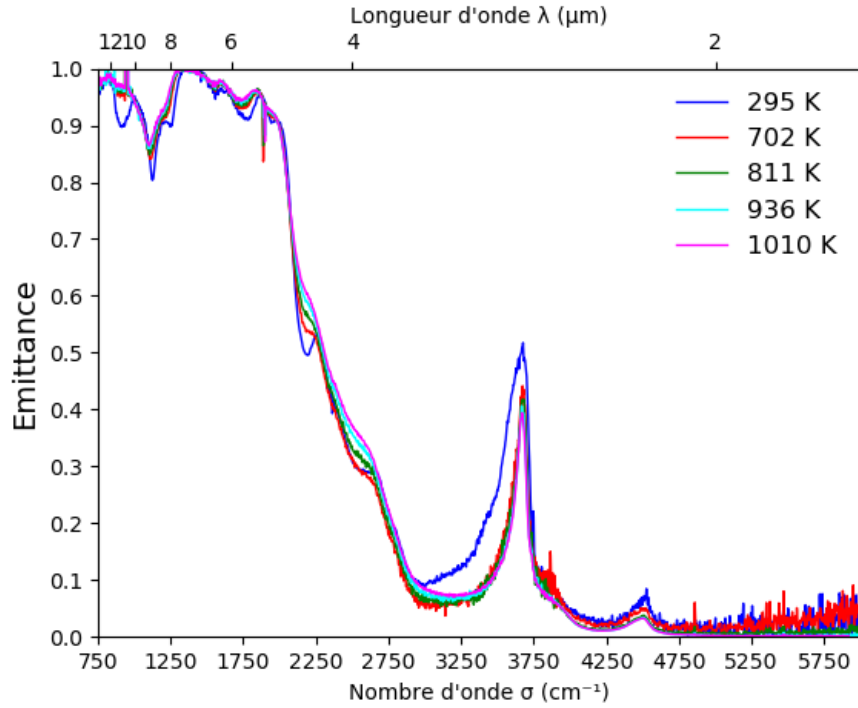


FIGURE 3.17 – Spectres d'émittance d'un échantillon de SilPower[®] de 2,00 mm d'épaisseur porté en température jusqu'à 1010 K.

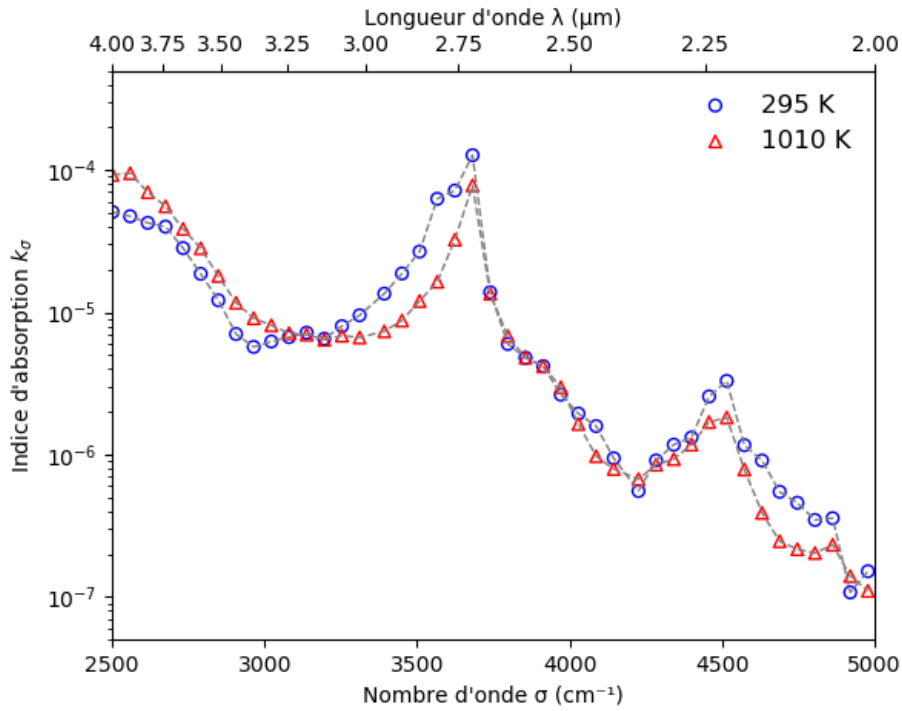


FIGURE 3.18 – Indices d'absorption spectral des fibres de SilPower[®] à 295 et 1010 K. La capacité d'absorption des fibres de silice s'atténue avec la température après le front de transmission.

La Figure 3.18 présente l'évolution de l'indice d'absorption spectral optimisé du SilPower® à 1010 K. Cet indice est comparé à celui identifié à 295 K. L'évolution de l'indice avec la température est cohérente avec le matériau : entre 2500 et 3000 cm^{-1} , l'absorption est plus importante à haute température (décalage du front de transmission), puis celle-ci diminue sur le reste de la gamme spectrale. L'atténuation des pics d'absorption aux alentours de 3660 et 4500 cm^{-1} est due à la désorption de molécules d'eau et de groupes O-H avec l'augmentation en température. La microstructure numérique utilisée pour ce calcul d'optimisation en température est la même que celle utilisée à température ambiante (§3.1.3.1). En effet, pour une étude à 1010 K, la température est inférieure à la température de transition vitreuse de la silice (1480 K) et encore plus à celle de fusion. Par conséquent une modification de la microstructure due à l'échauffement n'est pas attendue.

L'indice de réfraction identifié à température ambiante et l'indice d'absorption identifié à 1010 K (Fig. 3.18) permettent de simuler correctement l'émittance spectrale d'un second échantillon de SilPower® de 2,00 mm d'épaisseur (Fig. 3.19) (les écarts entre simulation et expérience sont compris dans l'incertitude expérimentale).

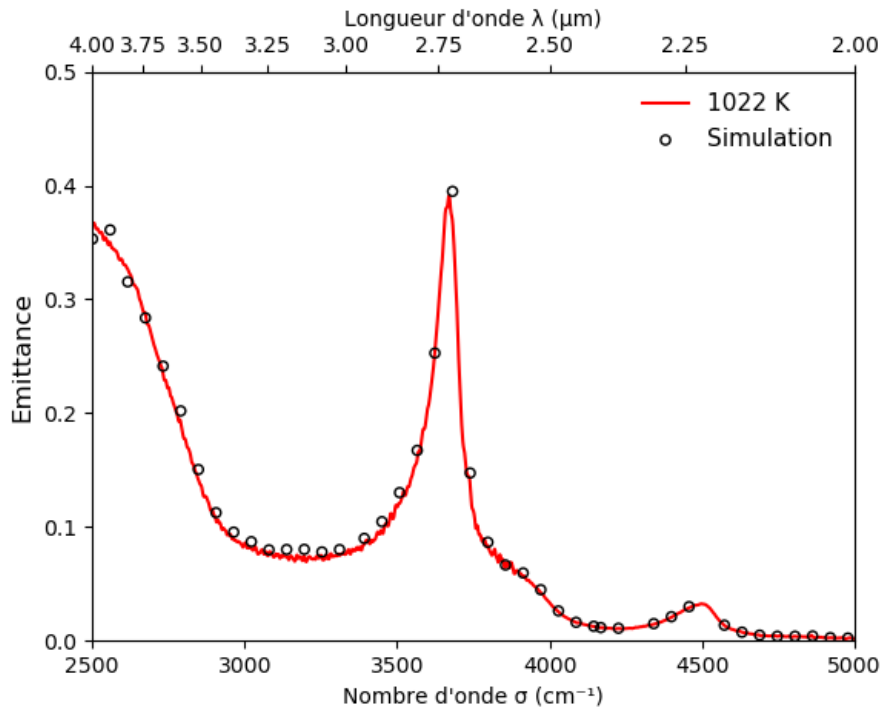


FIGURE 3.19 – Spectre d'émittance expérimental et simulé d'un échantillon de SilPower® porté à 1022 K.

La température de ce second échantillon a été évaluée à 1022 K. L'écart entre cette température et la température à laquelle a été identifié l'indice d'absorption (écart de 12 K) a une influence sur l'émittance inférieure aux incertitudes de mesure.

3.1.4 Conclusion de l'application de la méthodologie d'identification sur le SilPower®

Cette première étude a permis de valider la méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe sur un matériau réel. En effet, l'indice de réfraction complexe (à température ambiante) ainsi que l'indice d'absorption (en température) des fibres de SilPower® ont pu être identifiés avec une précision suffisante pour pouvoir simuler le comportement radiatif de différents échantillons.

Les résultats présentés ont également mis en avant l'importance du V.E.R. et le soin à apporter à sa construction pour extraire les indices adéquats. Une limite pratique de la méthodologie a d'ailleurs été identifiée, à savoir la difficulté à reproduire numériquement la microstructure d'un matériau présentant de fortes hétérogénéités à une échelle différente de celles des microconstituants. D'une part, les techniques de caractérisation de la microstructure ne permettent pas d'étudier cette dernière sur des volumes très importants avec une grande résolution et d'autre part, le volume de la cellule élémentaire (donc la quantité d'information qu'il est possible d'y injecter) peut être limité par la capacité en mémoire vive des outils informatiques.

3.2 Identification des indices de réfraction complexes spectraux d'un matériau multiphasique : le FOX imprégné

Le CEA développe plusieurs matériaux sur le site du Ripault, notamment des céramiques poreuses. Le FOX pur, composé d'une matrice fibreuse en alumino-silicate, en est un exemple. Ces fibres sont composées à 97% d'alumine (Al_2O_3) et à 3% de silice (SiO_2). Dans une optique d'amélioration de ces capacités d'isolation thermique, le FOX pur peut être "chargé" de composants supplémentaires pour avoir un meilleur contrôle sur le transfert radiatif. Il peut alors, par exemple, être imprégné par un aérogel de silice qui vient combler les pores de la matrice fibreuse.

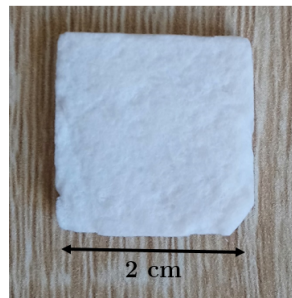


FIGURE 3.20 – Photographie d'un échantillon de FOX imprégné.

L'aérogel est une structure extrêmement poreuse (plus de 95% de porosité) (HE et al., 2018) mais à une échelle différente du FOX pur (fibres micrométriques) puisqu'il est composé de nanoparticules. Dans le cadre de ces travaux, pour simplifier la simulation et rester dans l'approximation de l'optique géométrique, il semble raisonnable de supposer que cette phase est homogène par rapport à la longueur d'onde du rayonnement thermique.

Pour simuler les propriétés radiatives du FOX imprégné avec le code MCRT, il est nécessaire d'identifier l'indice de réfraction complexe spectral de chacune des phases du milieu. La méthodologie d'identification ne permettant d'extraire que les indices d'une phase à la fois, l'identification des indices des deux phases du matériau se fait de façon successive. Une première étape consiste à n'étudier que la matrice fibreuse (le FOX pur) pour extraire les indices des fibres. Une fois ces indices obtenus, ceux-ci sont utilisés pour identifier les indices de l'aérogel.

3.2.1 Génération d'une microstructure numérique représentative du FOX imprégné

Comme l'aérogel est considéré ici comme une phase homogène qui vient combler la totalité des pores du FOX pur, une unique structure numérique est suffisante pour identifier les indices de chacune des phases. Lors des deux étapes d'identification des indices, seule la nature de la phase poreuse (et ses caractéristiques) change. Celle-ci représente de l'air dans un premier temps, puis de l'aérogel.

3.2.1.1 Étude morphologique du FOX pur

L'étude morphologique n'a porté que sur le FOX pur car on suppose que l'imprégnation des pores de la matrice fibreuse par de l'aérogel ne modifie pas l'agencement spatial des fibres. Ce choix a été fait pour faciliter l'identification des propriétés géométriques des fibres à partir de l'étude par microtomographie. En effet, si l'étude avait été réalisée sur un échantillon de FOX imprégné, il se peut que le contraste entre les deux phases eût été un peu moins bon à cause de l'absorption d'une part du rayonnement X par l'aérogel de silice.

Une série de mesures par microtomographie a été réalisée à l'ESRF, et quatre volumes de FOX pur de 1000 voxels au cube ont été sondés à des tailles de voxel de 0,360 et 0,730 μm (deux volumes pour chaque taille).

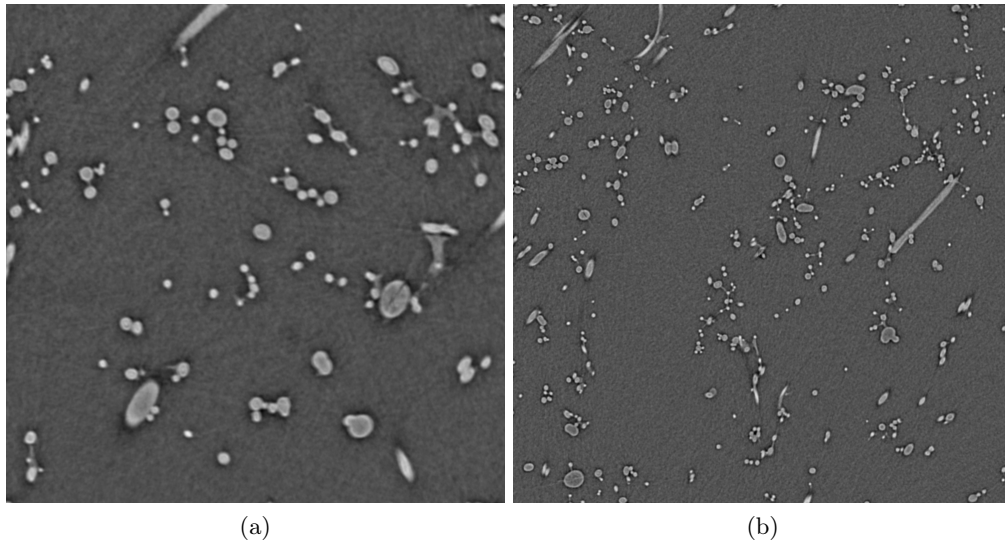


FIGURE 3.21 – Images en niveau de gris de microtomographie de 1000 pixels de côté du FOX pur avec des tailles de pixel de (a) 0,360 μm et (b) 0,730 μm .

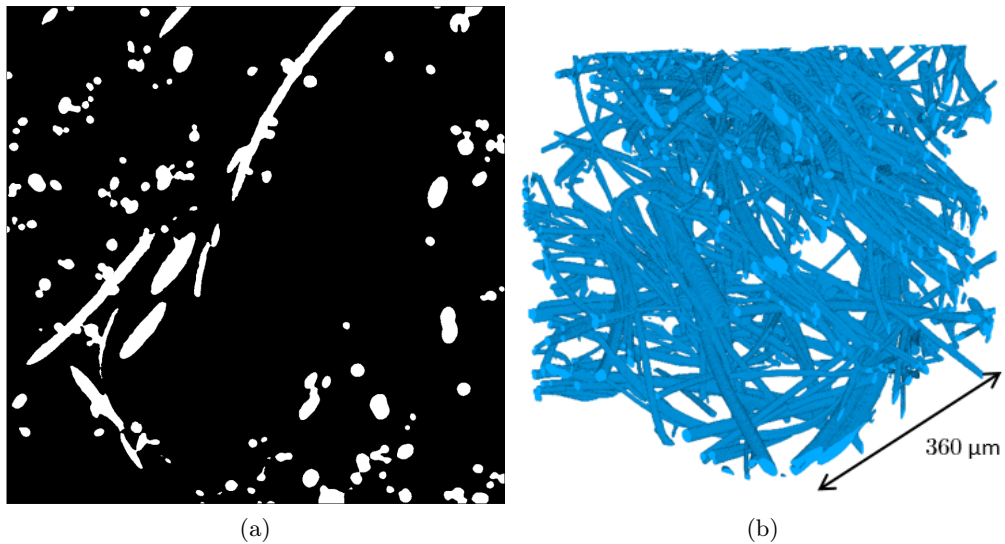


FIGURE 3.22 – (a) Image du FOX pur segmentée de 1000 pixels de côté avec une taille de pixel de 360 μm et (b) une reconstruction 3D du volume tomographié.

La segmentation et la labellisation de ces images ont été effectuées selon le même protocole que pour le SilPower[®]. Les fractions volumiques de fibres des volumes tomographiés sont comprises en

5,4 et 6,5%. De précédentes études réalisées au CEA ont permis d'estimer une densité du FOX pur à 0,23 mais surtout de montrer que la répartition spatiale des fibres dans le volume était relativement homogène. En supposant que la masse volumique d'une fibre est proche de celle de l'alumine (car les fibres du FOX pur en sont composées à 97%), soit $3,8 \text{ g.cm}^{-1}$ (PATNAIK, 2003), la fraction volumique expérimentale est alors d'environ 6%, ce qui est en accord avec les fractions volumiques des volumes tomographiés.

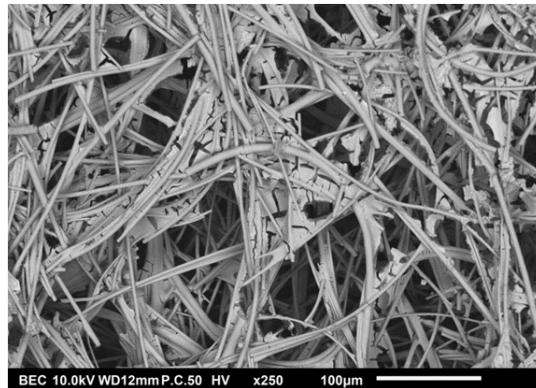


FIGURE 3.23 – Photographie MEB d'un échantillon de FOX avant frittage. De la silice colloïdale est encore présente entre les fibres à cette étape du procédé. Il est néanmoins possible d'observer les courbures importantes des fibres.

Les fibres du FOX pur n'ont pas la même morphologie que celles du SilPower[®]. En effet, celles-ci sont plus fines (un rapport longueur/rayon plus important que pour le SilPower[®]) et surtout courbes (Fig. 3.22b et 3.23). Ce dernier aspect rend la segmentation des fibres plus difficile, et à l'issue du traitement avec IPSDK les fibres les plus longues ont tendance à être scindées en plusieurs fibres courtes (Fig. 3.24). D'un point de vue statistique, les distributions d'orientation sont alors conservées mais pas celles des longueurs. Cependant, comme cela a été montré en §2.6.2, l'erreur qui est faite sur la distribution de longueur a une influence négligeable sur l'identification de l'indice de réfraction complexe spectral. La modélisation de grandes fibres courbes par plusieurs fibres courtes et rectilignes est donc acceptable.

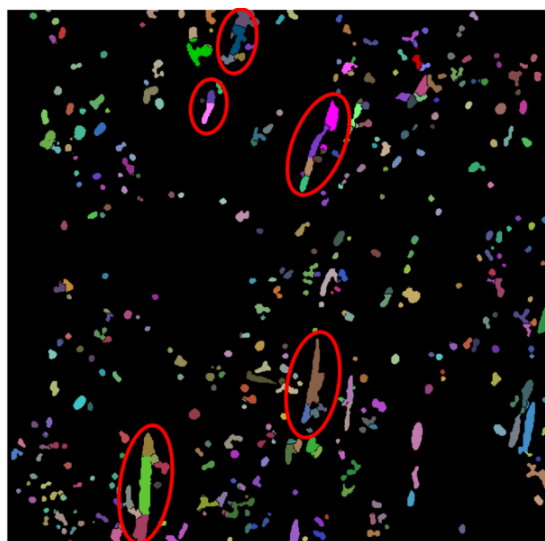


FIGURE 3.24 – Coupe obtenue par microtomographie à rayons X montrant des résultats de la labellisation des fibres de FOX. Une couleur représente une fibre. Certaines fibres qui semblent continues (entourées en rouge) sont scindées en plusieurs entités.

Les distributions de rayons, de longueurs et d'orientations des fibres de FOX pur ont été identifiées à partir des volumes tomographiés. Ces distributions sont équivalentes d'un sous-volume à l'autre et ce même à des résolutions différentes. Il a donc été conclu que les lois de distributions des propriétés géométriques des fibres des volumes tomographiés étaient représentatives du matériau dans son ensemble.

Propriétés des fibres	Type de loi de distribution	Moyenne	Ecart-type	Min	Max
Rayon (μm)	Log-normale	2,99	0,93	0,58	7,20
Longueur (μm)	Log-normale	22,01	17,91	8,48	205,05
Angle α (rad)	Normale	0,47	1,20	-3,13	3,13
Angle β (rad)	Log-normale	-0,10	0,56	-1,50	1,40
Angle χ (rad)	Log-normale	-1,05	1,53	-3,14	3,14

TABLE 3.3 – Paramètres des lois de distributions statistiques des propriétés géométriques des fibres du FOX pur.

Les distributions des propriétés géométriques des différents volumes de FOX pur sont présentés en Annexe A.2 et les lois statistiques de ces paramètres sont présentées dans la Table 3.3.

3.2.1.2 Génération d'un échantillon de FOX numérique

Plusieurs échantillons cylindriques de 1,5 cm de rayon et de 2 mm d'épaisseur ont été générés à partir d'une cellule élémentaire cubique de 1 mm de côté et des lois de distributions extraites dans la section précédente. Les fractions volumiques de ces échantillons étaient de 6%, ce qui était en accord avec les résultats des pesées hydrostatiques et les fractions volumiques calculées à partir des volumes tomographiés.

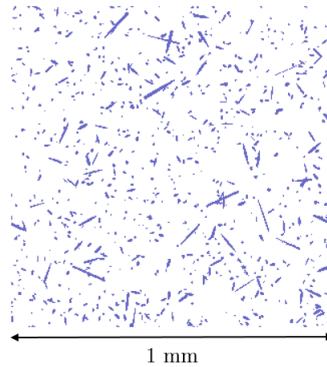


FIGURE 3.25 – Coupe d'une cellule élémentaire de FOX avec une fraction volumique de fibres de 6%.

Comme pour la génération d'une microstructure sans contrainte du SilPower[®] (§3.1.1.2), les fibres ont été positionnées aléatoirement selon une loi de distribution uniforme dans le volume (Fig. 3.25) car le matériau ne présentait pas d'hétérogénéités importantes, en particulier à l'échelle millimétrique.

3.2.2 Identification de l'indice de réfraction complexe spectral du FOX pur

Les indices de réfraction et d'absorption spectraux du FOX ont été identifiés simultanément à température ambiante.

3.2.2.1 Identification de l'indice de réfraction complexe spectral du FOX à température ambiante

La Figure 3.26 présente un exemple de spectres de réflectance, de transmittance et d'émittance obtenus sur un échantillon de FOX de 2 mm d'épaisseur. Pour s'assurer que l'échantillon n'était pas pollué, ce dernier a été chauffé à 600°C pendant trois heures puis conservé dans une étuve à 100°C jusqu'au moment des mesures. Le point de Christiansen du matériau est identifié à 1185 cm^{-1} et la plage de semi-transparence débute au alentours de 1200 cm^{-1} . Les contributions à l'absorption dans la gamme de semi-transparence sont identifiées dans (H. LI, 2018).

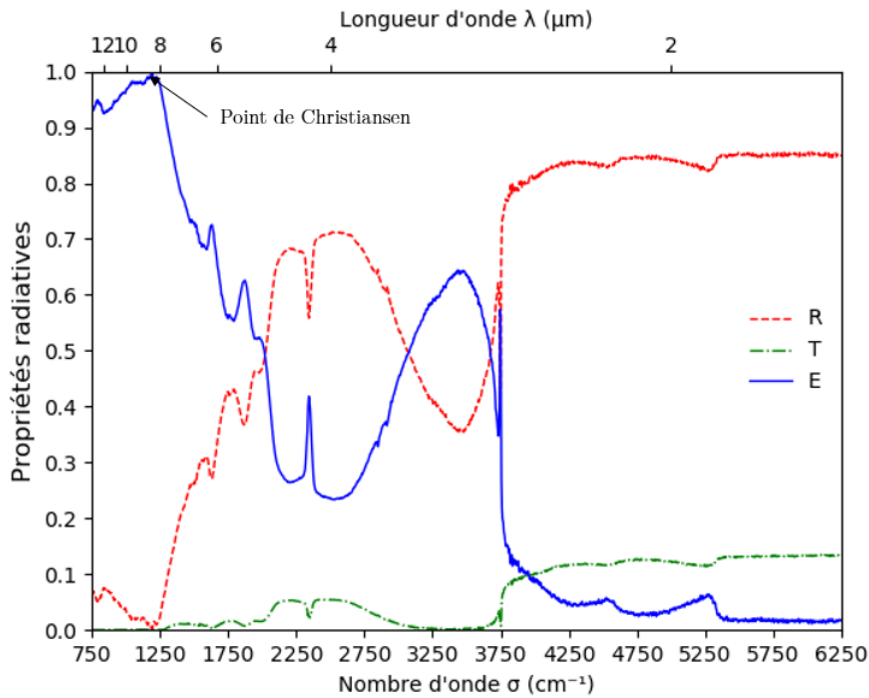


FIGURE 3.26 – Mesures de spectroscopie FTIR réalisées sur un échantillon de FOX pur de 2 mm d'épaisseur à température ambiante. Le point de Christiansen se situe à 1185 cm^{-1} .

Les calculs d'optimisation ont été réalisés sur les différents échantillons générés à partir d'indices de "départ" des fibres de FOX pur extraits de la littérature et obtenus sur un film d'alumine par ellipsométrie (KISCHKAT et al., 2012). Les indices ont été optimisés à partir des spectres présentés en Figure 3.26. Comme pour le SilPower[®], plusieurs calculs ont été réalisés pour chaque microstructure pour s'assurer de la reproductibilité de ces derniers. Les résultats présentés sont une moyenne des différents calculs effectués. L'optimisation des indices a été réalisée entre 2000 et 5500 cm^{-1} . 2000 cm^{-1} représente une estimation de la limite d'applicabilité de l'optique géométrique pour le FOX pur et il n'est pas nécessaire d'identifier des indices au delà de 5500 cm^{-1} puisque les propriétés radiatives n'évoluent plus dans la gamme spectrale qui d'intérêt (matériaux sans impuretés).

Les valeurs optimisées de l'indice de réfraction réel sur cette microstructure numérique sont relativement proches de celles de départ avec un écart relatif maximum de 5,3% à 2717 cm^{-1} (Fig. 3.27).

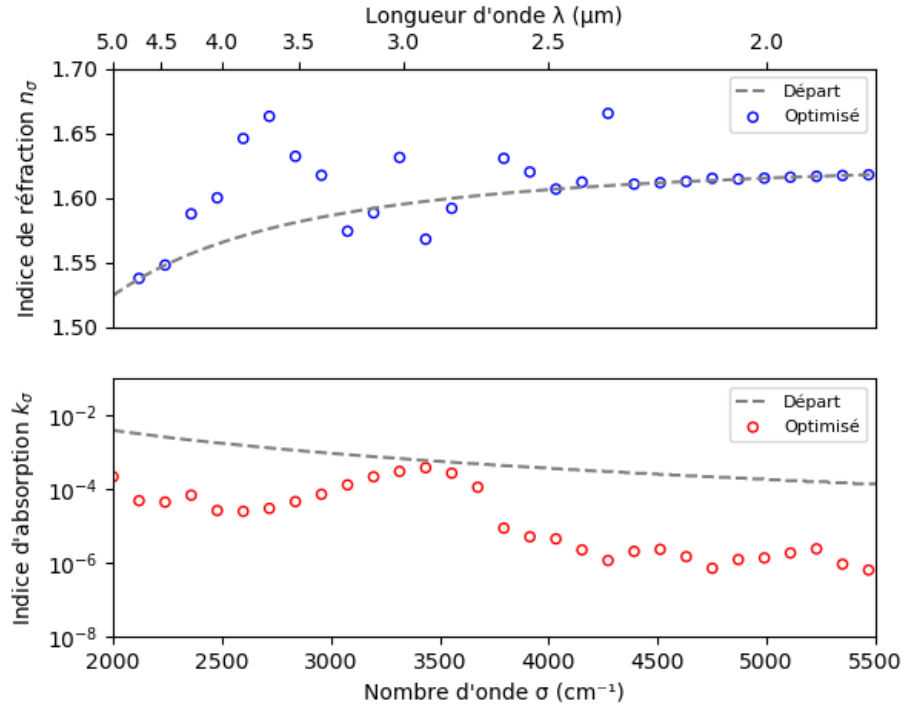


FIGURE 3.27 – Indices optiques des fibres de FOX pur optimisés à partir d'un échantillon numérique de 2 mm d'épaisseur et de mesures de spectroscopie FTIR réalisés sur un échantillon de même épaisseur.

Les indices de réfraction de "départ" sont suffisants pour minimiser la fonction coût dans la plage de transparence. Cela montre encore une fois la faible sensibilité de la simulation des propriétés radiatives à l'indice de réfraction. En revanche, l'indice d'absorption optimisé est globalement plus faible (de plusieurs ordres de grandeurs) que celui de "départ".

Ces indices optimisés ont été utilisés pour simuler les propriétés radiatives d'un échantillon de FOX de 4 mm d'épaisseur (Fig. 3.28) qui sont comparées aux mesures réalisées par spectroscopie FTIR sur un échantillon de même épaisseur. Les faibles écarts observés (Fig. 3.28b) entre la simulation et l'expérience sur la majorité de la gamme spectrale permettent de conclure que les indices optiques identifiés sont suffisants pour pouvoir prédire numériquement les propriétés radiatives du FOX avec une bonne précision (avec des erreurs en limite des intervalles d'incertitude expérimentale pour la réflectance et la transmittance). Néanmoins, des erreurs de simulation plus importantes entre 2000 et 2350 cm^{-1} montrent les limites de validité de l'approximation de l'optique géométrique dans cette gamme spectrale.

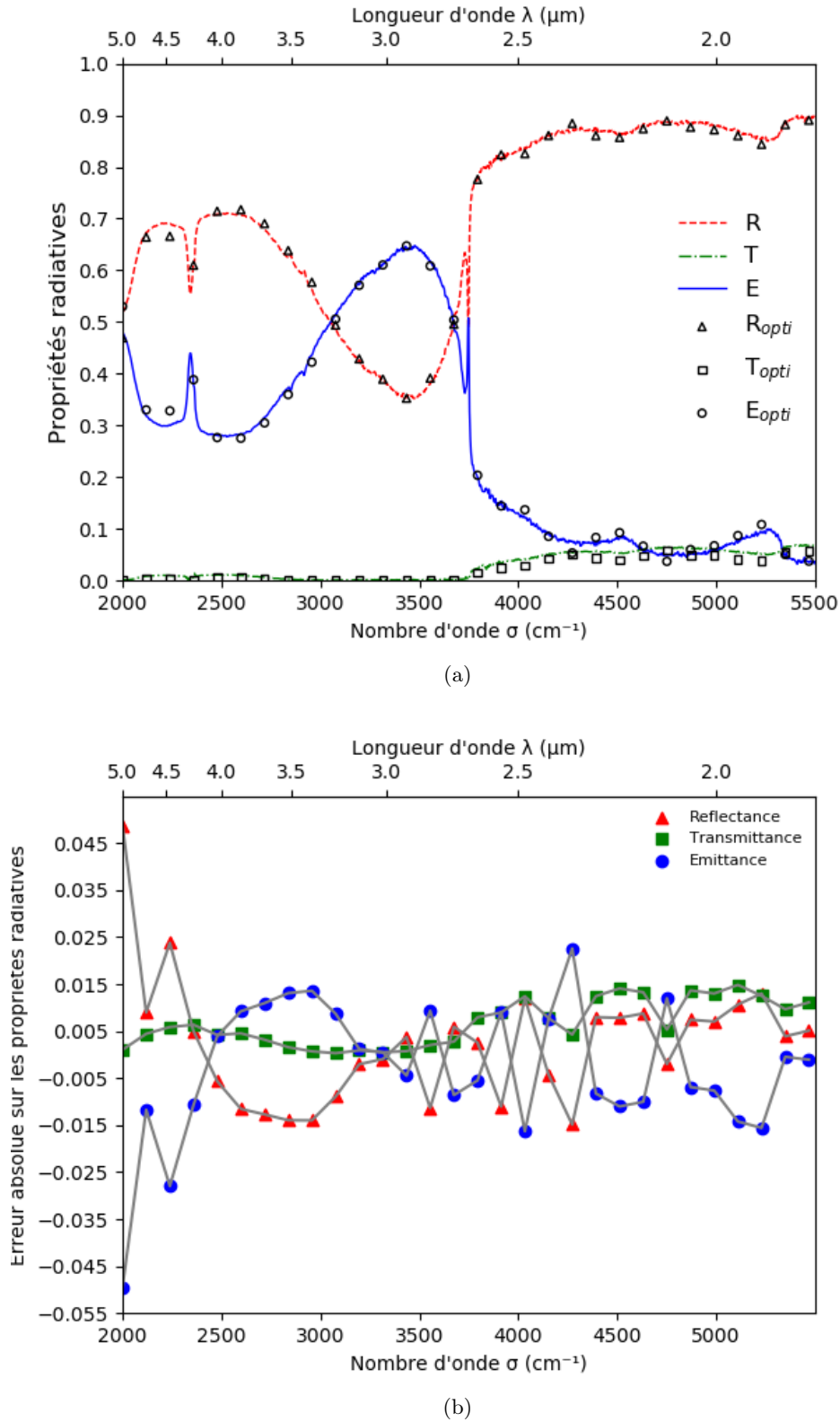


FIGURE 3.28 – (a) Propriétés radiatives d'un échantillon de FOX pur de 4 mm mesurées et simulées avec des indices optimisés sur un échantillon de 2 mm d'épaisseur. (b) Les erreurs maximales rencontrées sur la simulation de la transmittance et de la réflectance sont de $\pm 0,015$, valeur légèrement supérieure à l'incertitude expérimentale estimée à $\pm 0,01$. L'erreur faite sur l'émittance reste quant à elle comprise dans l'intervalle d'incertitude $\pm 0,02$ annoncé précédemment. Entre 2000 et 2350 cm^{-1} , la validité de l'optique géométrique est discutable puisque des erreurs plus importantes sont observées.

Contrairement au SilPower[®] qui était très hétérogène et ce à différentes échelles, l'identification du V.E.R. du FOX s'est avérée beaucoup plus directe. Les calculs d'optimisation et la simulation des propriétés radiatives ont ainsi été beaucoup plus rapides, et les besoins en mémoire vive faibles.

3.2.2.2 Identification de l'indice d'absorption des fibres de FOX pur en température

Des mesures d'émittance en température ont été réalisées sur un échantillon de FOX pur de 3 mm d'épaisseur (Fig. 3.29) pour identifier l'indice d'absorption spectral de ce dernier.

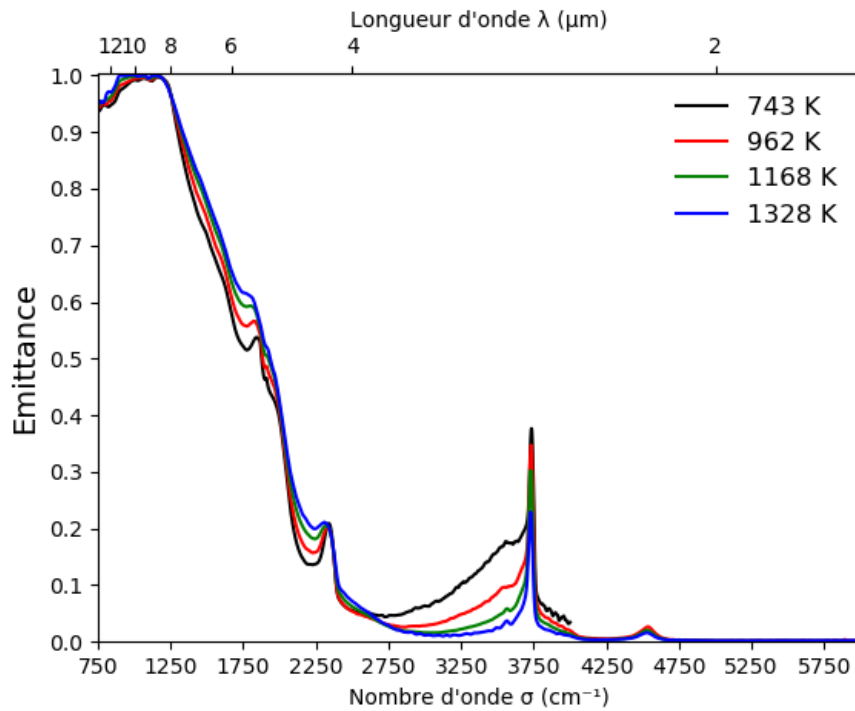


FIGURE 3.29 – Spectres d'émittance d'un échantillon de FOX pur de 3 mm d'épaisseur porté en température jusqu'à 1328 K.

L'évolution de l'émittance avec la température est similaire à celle observée pour le SilPower[®] avec un décalage du front de transmission vers des plus grands nombres d'onde et une atténuation de l'intensité des pics aux alentours de 3660 et 4500 cm⁻¹.

Des calculs d'optimisation de l'indice d'absorption ont été réalisés à 962 et 1328 K en utilisant l'indice de réfraction identifié à température ambiante. Ces résultats (Fig. 3.30) montrent que les fibres de FOX sont moins absorbantes avec une augmentation de la température, notamment entre 3000 et 4000 cm⁻¹.

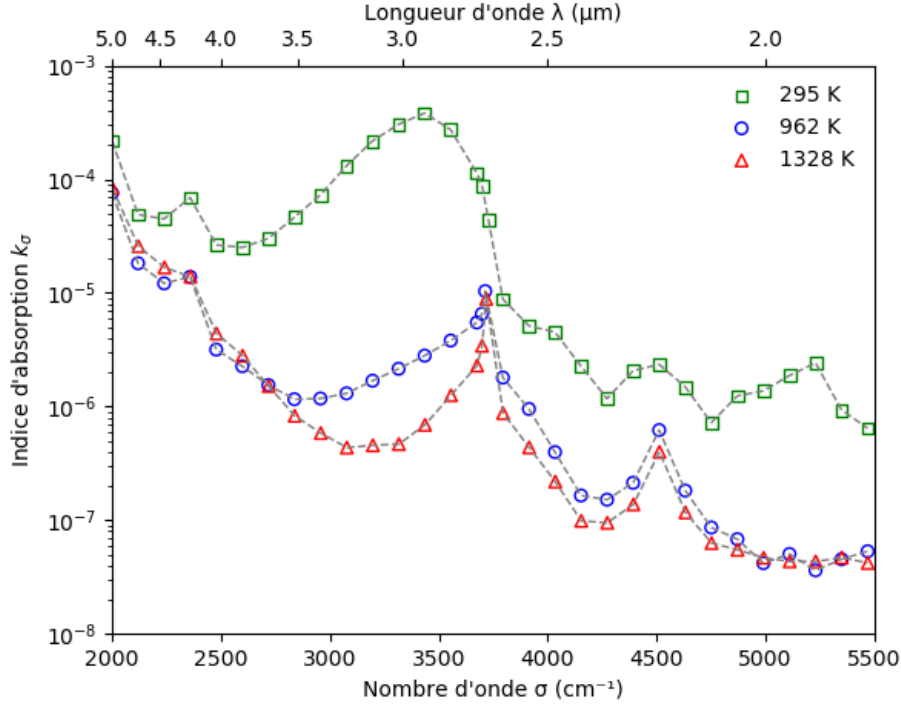


FIGURE 3.30 – Indices d'absorption spectraux des fibres de FOX pur identifiés à 962 et 1328 K. Les indices identifiés à 295 K sont également présentés pour comparaison.

3.2.3 Identification de l'indice d'absorption de l'aérogel

L'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque des fibres de FOX ayant été identifié dans la section précédente, la méthodologie d'identification peut être appliquée une nouvelle fois sur le FOX imprégné pour extraire l'indice complexe spectral de l'aérogel de silice comblant les pores du matériau.

3.2.3.1 Identification de l'indice d'absorption de l'aérogel à partir d'un échantillon de FOX imprégné

L'aérogel étant très poreux et les particules de silice très petites (échelle nanométrique), les rayons lumineux ont une probabilité très forte de traverser l'épaisseur du matériau sans rencontrer les particules de silice. Il est donc fait l'hypothèse que l'indice de réfraction de l'aérogel est équivalent à celui de l'air ($n_{\sigma} \approx 1.0$). Cette hypothèse est vérifiée plus loin dans cette section (§3.2.3.2). Il est donc seulement nécessaire d'identifier l'indice d'absorption de la phase, ce qui revient à reprendre la démarche d'optimisation en température.

Bien qu'il ne soit pas nécessaire d'identifier l'indice de réfraction réel de l'aérogel, des mesures en sphère intégrante (donc à température ambiante) ont quand même été réalisées sur le FOX imprégné pour pouvoir identifier le point de Christiansen (Fig. 3.31). Ce point a été identifié à 1220 cm^{-1} . On remarque également des contributions à l'absorption au delà de 6000 cm^{-1} . Celle-ci sont dues à l'aérogel (voir plus loin la Fig. 3.35 sur laquelle ce comportement est également observé). Néanmoins, comme ces contributions disparaissent avec la température (Fig. 3.32) et que les besoins de cette thèse portent sur les hautes températures, les indices n'ont pas été optimisés sur cette plage spectrale.

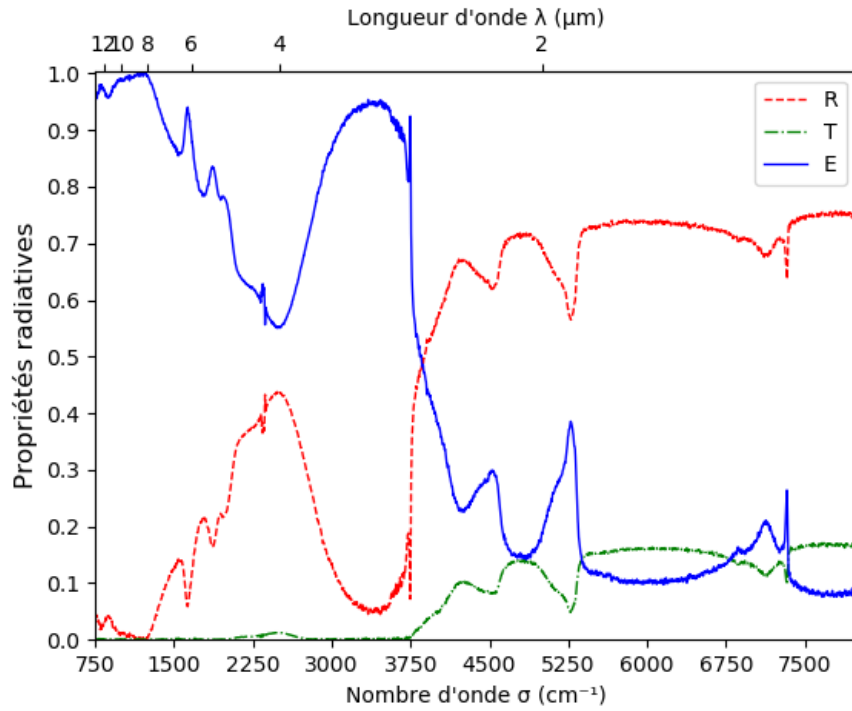


FIGURE 3.31 – Propriétés radiatives d'un échantillon de FOX imprégné d'aérogel de 2,4 mm à température ambiante.

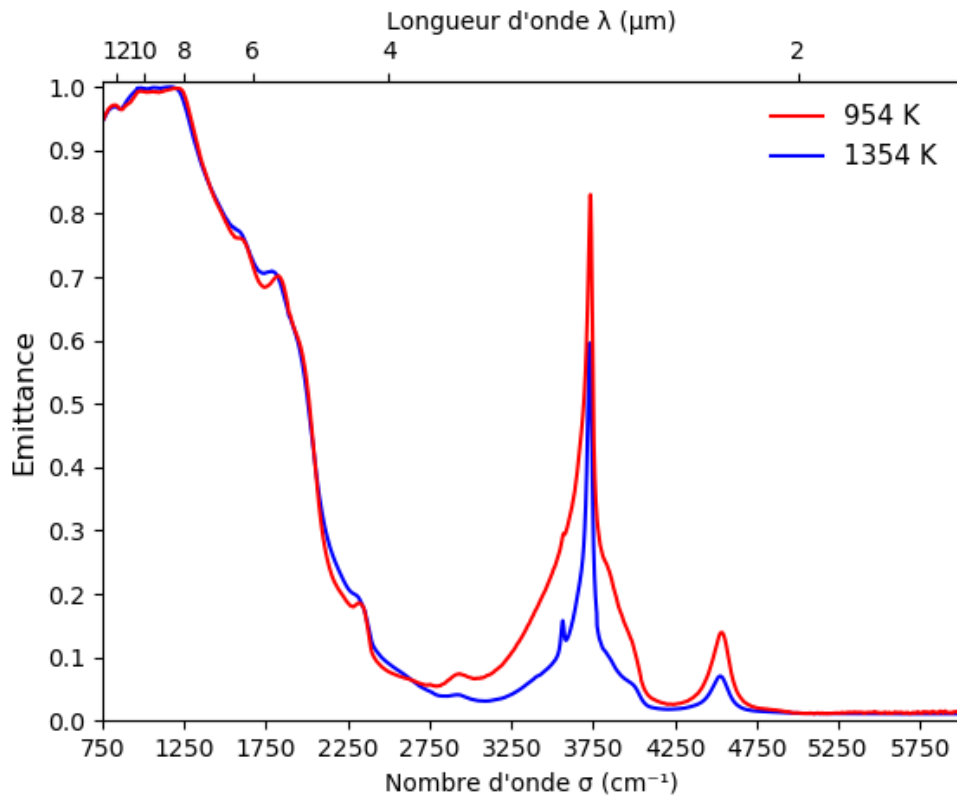


FIGURE 3.32 – Emissances spectrales d'un échantillon de FOX imprégné d'aérogel de 2,4 mm d'épaisseur à 954 et 1354 K.

La Figure 3.32 présente des mesures d'émittance à 954 K et 1354 K réalisées sur un échantillon de FOX imprégné de 2,4 mm d'épaisseur. Ces températures ont été étudiées en particulier car elles étaient respectivement proches de 962 et 1328 K, températures auxquelles les indices d'absorption des fibres de FOX ont été identifiées. Il est raisonnable de supposer que les variations des indices d'absorption des fibres entre 954 et 962 K et 1354 et 1328 K sont négligeables et que ceux-ci peuvent être utilisés pour extraire les indices d'absorption de l'aérogel à ces deux températures.

Les calculs d'optimisation ont été réalisés à partir de la microstructure utilisée pour identifier l'indice complexe du FOX pur, mais cette fois-ci, la phase poreuse a été associée à de l'aérogel (considéré homogène à notre échelle) et non à de l'air.

Les indices d'absorption de l'aérogel identifiés à 954 et 1354 K sont présentés en Figure 3.33. Ces indices, comparés à ceux des fibres de FOX, montrent que l'aérogel a une capacité d'absorption du rayonnement plus importante que les fibres dans la gamme spectrale étudiée, d'où l'intérêt d'imprégner la matrice fibreuse pour améliorer ses performances thermiques. Il est à noter que les capacités d'absorption de l'aérogel (comme celles des fibres) diminuent avec la température sur cette gamme spectrale.

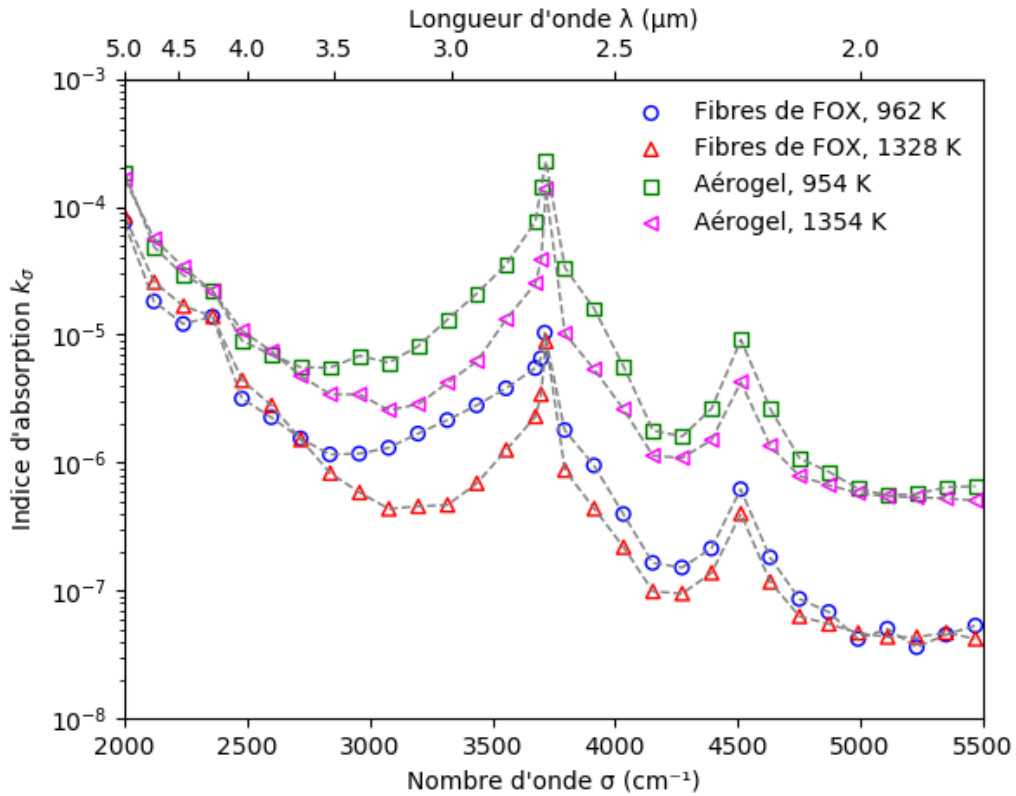


FIGURE 3.33 – Indices d'absorption spectraux de l'aérogel identifiés lors de l'étude d'un échantillon de FOX imprégné porté à 954 et 1354 K. Les indices d'absorption des fibres de FOX pur extraits précédemment à 962 et 1328 K sont présentés pour comparaison.

3.2.3.2 Simulation de l'émittance d'un échantillon d'aérogel pur

Dans l'optique d'évaluer la précision avec laquelle les indices d'absorption de l'aérogel ont été identifiés par les applications successives de la méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe, une étude complémentaire a été réalisée sur un échantillon d'aérogel pur (Fig. 3.34) issu de la même synthèse que l'aérogel utilisé pour l'imprégnation de la matrice de FOX pur.

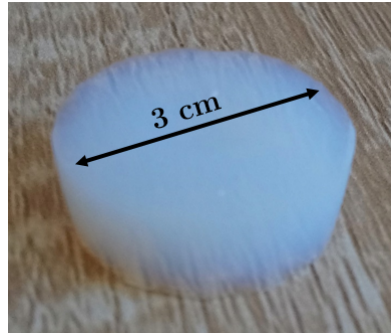


FIGURE 3.34 – Photographie d'un échantillon d'aérogel.

Des mesures en sphère intégrante (Fig. 3.35) ainsi que d'émittance directe (Fig 3.36) ont été réalisées sur un échantillon de 2 mm d'épaisseur.

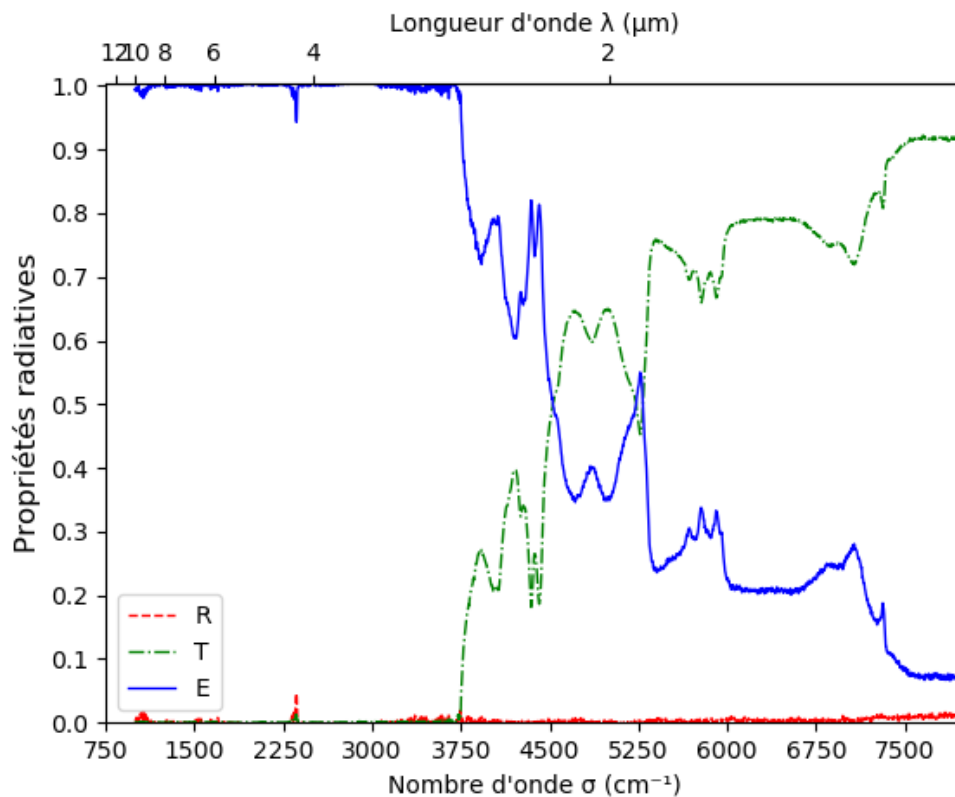


FIGURE 3.35 – Propriétés radiatives d'un échantillon d'aérogel de 2 mm d'épaisseur mesurées à 295 K.

La réflectance quasi-nulle du matériau sur la totalité de la gamme spectrale étudiée à température ambiante indique qu'il n'y pas de contraste d'indice de réfraction entre le matériau et l'atmosphère, ce qui confirme l'hypothèse selon laquelle l'indice de réfraction de l'aérogel est équivalent à celui de l'air (voir §3.2.3.1). Cette évolution spectrale de la réflectance complique l'identification du point de Christiansen puisque l'émittance est alors proche de l'unité sur une gamme spectrale relativement large. La fraction volumique de fibres dans le FOX imprégné étant cependant faible (environ 6%), on suppose que la marque spectrale du matériau est principalement due au comportement de l'aérogel qui comble les pores. Le point de Christiansen du FOX imprégné ayant été identifié à 1220 cm^{-1} , on fait alors l'hypothèse que ce nombre d'onde correspond également au point de Christiansen de l'aérogel pur.

Les mesures d'émittance directe de l'aérogel pur (Fig 3.36) montrent que son comportement radiatif en température est relativement équivalent à ce qui a pu être observé sur les spectres d'émittance du FOX imprégné (Fig. 3.32), avec de faibles variations de l'émittance au niveau du front de transmission et un affaiblissement de l'émittance (ou de l'intensité des bandes d'absorption) aux alentours des 3660 et 4500 cm^{-1} . L'évolution de son indice d'absorption avec la température devrait donc être similaire à celle de l'indice identifié lors de l'étude du FOX imprégné.

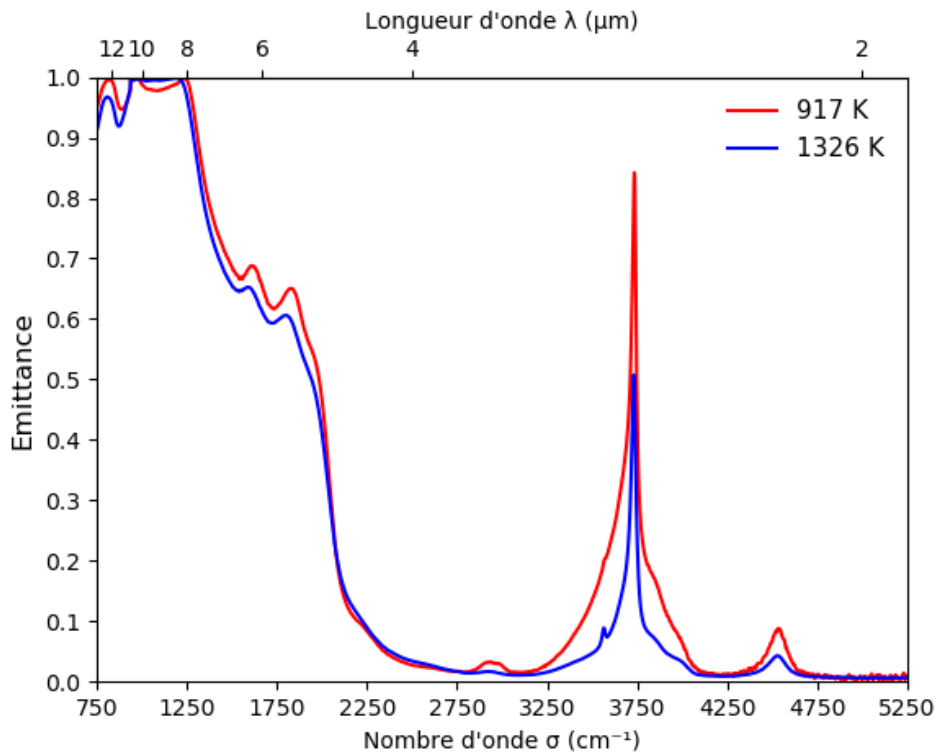


FIGURE 3.36 – Spectres d'émittance d'un échantillon d'aérogel pur de 2 mm d'épaisseur à 917 et 1326 K.

Les spectres d'émittance de l'aérogel pur ont été simulés avec le code MCRT à l'aide d'un volume numérique homogène¹ de mêmes dimensions que les échantillons utilisés pour les mesures FTIR et à partir des indices d'absorption de l'aérogel identifiés lors de l'étude du FOX imprégné à 954 et 1354 K (Fig. 3.37). Ces spectres numériques ont été alors comparés aux spectres expérimentaux de l'aérogel pur à 917 et 1326 K. On considère encore une fois que les écarts respectifs pour chaque température d'étude (917 K par rapport à 954 K, et 1326 par rapport à 1354 K) sont suffisamment faibles pour que les variations d'indices d'absorption soient négligeables. Il est alors cohérent de comparer les spectres numériques avec ceux mesurés sur l'aérogel pur.

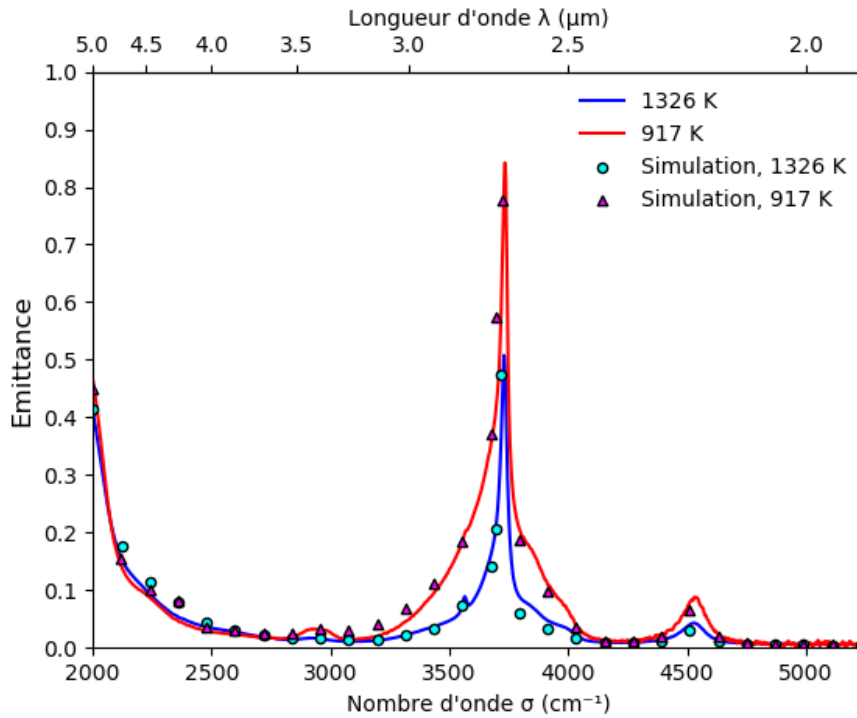


FIGURE 3.37 – Spectres d'émittance expérimentaux et numériques d'un échantillon d'aérogel pur de 2 mm d'épaisseur à 917 et 1326 K. La simulation est réalisée avec les indices d'absorption identifiés à 954 et 1354 K.

Les indices identifiés à partir de l'aérogel imprégnant la matrice de FOX ont donc permis de reproduire numériquement les spectres d'émittance de l'aérogel pur (Fig. 3.37) sur la gamme spectrale d'intérêt et ce pour les deux températures étudiées. Ces résultats confirment qu'une application successive de la méthode d'identification (identification des indices des fibres puis de l'aérogel sur le FOX imprégné) est valide et permet bien d'identifier des indices propres à l'une des phases d'un matériau multiphasique, puisque qu'il est possible de reproduire le comportement radiatif de la phase en question dans une autre configuration (i. e. lorsque l'aérogel est pur et ne contient pas de fibres).

De faibles écarts entre la simulation et les spectres expérimentaux sont néanmoins observables pour certains nombres d'onde pour les deux températures. Ces derniers s'expliquent par la propagation d'erreurs réalisées lors des applications successives de la méthodologie d'identification. Il faut donc garder à l'esprit que plus il y aura de phases dans un matériau, plus l'incertitude sur l'identification des indices des dernières phases étudiées sera importante.

1. L'aérogel étant considéré comme homogène, le calcul des réflectances et transmittances aurait pu également être réalisé à l'aide du modèle analytique de la lame à faces parallèles présenté au Chapitre 1, §1.3.1.

3.2.4 Conclusion de l'application de la méthodologie d'identification à un matériau multiphasique

Cette seconde étude a permis de valider la démarche d'identifications successives des indices de réfraction complexes spectraux. Il est maintenant possible de distinguer les contributions de chacune des phases vis-à-vis du comportement radiatif global du matériau, ce qui n'était pas le cas avec des techniques d'identification plus classiques (identification d'indices effectifs). On notera d'ailleurs que les indices de l'aérogel du FOX qui ont permis la simulation de l'émittance de l'aérogel seul ont été identifiés sur un volume tout à fait différent de celui de l'aérogel pur, ce qui confirme une fois de plus que les indices extraits sont bien intrinsèques à la phase étudiée.

Néanmoins, cette démarche itérative présente toutefois un inconvénient : la propagation d'erreurs d'identification d'une phase à l'autre. En effet, comme les indices optimisés sur la première phase du matériau sont utilisés pour identifier ceux de la deuxième phase, les erreurs réalisées lors du premier calcul d'optimisation auront alors une influence sur le deuxième calcul d'optimisation visant à identifier les indices de la seconde phase. C'est pourquoi, pour limiter les erreurs au maximum (bien que celles-ci soient déjà faibles), il sera préférable d'identifier les indices de chacune des phases d'un matériau multiphasique à partir de matériaux monophasiques et d'utiliser ces indices pour simuler le comportement radiatif du milieu multiphasique par la suite.

Conclusion du troisième chapitre

Dans ce chapitre, la méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral a été appliquée à deux matériaux. La première application sur un feutre composé de fibres de silice pure a confirmé que la méthodologie appliquée à un matériau monophasique était pertinente, puisqu'elle a permis l'extraction d'un indice de réfraction complexe spectral des fibres (à température ambiante et haute température) suffisamment précis pour pouvoir prédire les propriétés radiatives de différents volumes composés des mêmes fibres de silice. Cette première étude a toutefois mis en avant certaines limites de la méthodologie d'identification qui sont atteintes lorsque le matériau est très hétérogène et ce à différentes échelles. Dans ce cas, le V.E.R. est grand et les capacités en mémoire vive à disposition peuvent ne pas être suffisantes pour générer une cellule élémentaire pouvant intégrer ce celui-ci. De plus, les temps de calculs augmentent drastiquement. Pour certains matériaux, les limites actuelles des techniques de caractérisation des microstructures pourront également être un frein à l'application de la méthodologie d'identification puisqu'il est nécessaire de faire un compromis entre résolution et dimensions du volume étudié.

La méthodologie d'identification a ensuite été éprouvée sur un matériau composée d'une matrice fibreuse dont les pores étaient comblés par une seconde phase solide. Il a ainsi été possible d'extraire les indices optiques de chacune des phases pour deux plages de température (≈ 960 K et 1340 K). Cette démarche de travail a été validée en simulant directement et avec une bonne précision l'émittance d'un matériau monophasique dont l'indice d'absorption a été identifié à partir d'un matériau multiphasique.

Les indices complexes identifiés au cours de ce chapitre peuvent ainsi être utilisés pour le développement de nouveaux matériaux à propriétés radiatives contrôlées. Une perspective à court terme de ce travail est d'ailleurs de remplacer l'aérogel du FOX imprégné par des opacifiants ayant une forte capacité d'absorption. Une fois l'indice de réfraction complexe spectral identifié à l'échelle de l'opacifiant, il sera alors possible de déterminer, grâce au générateur d'objets et au code MCRT, la répartition optimale de ces microparticules dans la matrice de FOX pour obtenir les meilleurs performances thermiques possibles.

Une utilisation plus immédiate des indices identifiés concerne la suite de ces travaux, puisque le quatrième et dernier chapitre de ce manuscrit est dédié à la simulation des échanges conducto-radiatifs du SilPower[®] et du FOX imprégné lorsque ces derniers sont soumis à des flux thermiques importants.

Chapitre 4

Modélisation des échanges conducto-radiatifs en milieux microporeux semi-transparents

Introduction

Les précédents chapitres ont été dédiés à l'identification en température d'une des caractéristiques radiatives des milieux poreux semi-transparents : l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque. La pertinence d'une telle identification est illustrée au travers de ce dernier chapitre dans lequel les indices identifiés précédemment sont utilisés pour simuler les échanges conducto-radiatifs en milieu semi-transparents en prenant justement en compte la dépendance spectrale du transfert radiatif.

La première partie de ce chapitre est consacrée au recensement bibliographique des différentes techniques du couplage conducto-radiatif. Les différents schémas de résolution numérique, leurs avantages ainsi que leurs limites sont discutés et permettent ainsi de positionner le code de calcul de transferts couplés développé au CEA depuis plusieurs années maintenant, et qui est utilisé au cours de ces travaux.

La deuxième partie de ce chapitre présente le code de calcul (systèmes d'équation, schéma numérique) et notamment les modifications qui lui ont été apportées pour permettre la prise en compte de la dépendance spectrale du transfert radiatif dans les calculs thermiques.

Les troisième et quatrième parties du chapitre sont consacrées à des applications sur des milieux semi-transparents respectivement en régime stationnaire et transitoire. Ces deux types d'applications permettent finalement de conclure sur la pertinence de réaliser des calculs par bandes spectrales plutôt que des calculs gris afin de prédire les échanges thermiques au sein de milieux poreux semi-transparents à des températures élevées.

4.1 La modélisation du couplage conducto-radiatif en milieu poreux

Les transferts conducto-radiatifs sont décrits par deux équations : l'E.T.R. (présentée au Chapitre 1) qui permet d'évaluer la contribution radiative aux échanges thermiques totaux, soit un flux radiatif ϕ_{rad} , et l'équation de la chaleur qui rend compte de la diffusion de l'énergie au sein de la matière à une position donnée et au cours du temps. Cette dernière équation s'exprime comme suit :

$$\phi_{cond} + \phi_{rad} = \rho_v C_p V \frac{\partial T}{\partial t} \quad (4.1)$$

- ϕ_{cond} est le flux conductif en W ,
- ϕ_{rad} est le flux radiatif en W ,
- ρ_v est la masse volumique du milieu en $kg.m^{-3}$,
- C_p la capacité calorifique massique en $J.kg^{-1}.K^{-1}$,
- V le volume en m^3 dans lequel la chaleur est diffusée.

Le flux ϕ_{cond} qui représente le flux échangé par conduction à une position donnée se calcule par la loi de Fourier et, dans le cas d'un milieu isotrope, s'exprime par :

$$\phi_{cond} = -div(-\lambda_{cond} \overrightarrow{gradT})S \quad (4.2)$$

où λ_{cond} est la conductivité thermique phonique en $W.m^{-1}.K^{-1}$ et S la section par laquelle se propage le flux.

Les dépendances spatiales (voire angulaires) de certaines variables de l'E.T.R. et de l'équation de la chaleur rendent la résolution couplée de ces dernières particulièrement difficile dans les milieux

poreux où la géométrie est très complexe (e. g. milieu hétérogène à différentes échelles). C'est pourquoi les premiers modèles de transferts thermiques en milieu poreux étaient simples, le plus souvent en 1D ou 2D avec des hypothèses très fortes : e. g. échanges considérés comme purement conductifs (BHATTACHARYA et al., 2002). Les progrès des techniques d'imagerie et des moyens informatiques ont permis, par la suite, de développer de nouveaux modèles plus représentatifs de la physique car permettant de prendre en compte l'architecture 3D des milieux hétérogènes et limitant le nombre d'hypothèses simplificatrices avec la genèse de premiers modèles couplés.

4.1.1 Modélisation du transfert couplé sur des structures numériques 3D

Des premières études du transfert conducto-radiatif en 3D ont été initiées par Wellele *et al.* (WELLELE et al., 2006), Zhao *et al.* (J. ZHAO & LIU, 2007) puis L. Trovalet (TROVALET, 2011). Dans ces travaux, la discrétisation se fait par un maillage de la microstructure, étape particulièrement complexe pour les milieux poreux dont les géométries peuvent être irrégulières. C'est pourquoi de nouvelles techniques ont été développées pour effectuer des simulations sur des microstructures voxelisées, avec lesquelles il est plus simple de travailler.

Les résolutions aujourd'hui accessibles par les différentes techniques d'imagerie (notamment la microtomographie à rayons X) permettent de discrétiser suffisamment finement des microstructures hétérogènes telles que les microstructures fibreuses étudiées dans ces travaux. A. Kumar (KUMAR, 2021) évalue par exemple l'influence des propriétés texturales des fibres des matériaux qu'il utilise sur le transfert couplé conducto-radiatif. Des méthodes statistiques de résolution du couplage ont également été développées sur des microstructures voxelisées (SANS et al., 2019) ou des schémas hybrides entre maillage plus classique et voxelisation ("Simplified Marching Cube" (VIGNOLES, 2016)). C'est une approche de discrétisation en voxels que le CEA a choisie pour le code de calcul utilisé dans la suite de ces travaux : *THERMIVOX* (NIEZGODA, 2012). Finalement, avec l'évolution des moyens de calculs, des modèles 3D plus aboutis (moins d'hypothèses simplificatrices) utilisant des techniques de maillage classiques de type éléments finis ont pu être développés (OUCHTOUT et al., 2022).

4.1.2 Couplage faible ou couplage fort ?

La résolution du transfert conducto-radiatif par un couplage numérique dit "faible" est l'une des méthodes de résolution les plus répandues puisque relativement simple d'implémentation. La résolution du système couplé se fait ainsi itérativement : l'E.T.R. est résolue à une température donnée pour obtenir un flux radiatif qui est ensuite injecté dans l'équation de la chaleur (Eq. 4.1) pour estimer une nouvelle température. Un nouveau calcul de l'E.T.R. est ainsi réalisé et le processus est réitéré jusqu'à convergence. Cette méthode a été appliquée, par exemple, pour la simulation des transferts de milieux semi-transparents non-diffusants (DEZ et al., 2000) ou encore la simulation d'une méthode "Flash" (CHEHEB et al., 2008). Un inconvénient majeur de cette méthode est toutefois le temps de calcul qui devient rapidement important, notamment en régime instationnaire, puisqu'il faut alors que l'algorithme converge vers des champs de luminances et de températures stables (donc plusieurs itérations) avant de passer à un pas de temps supérieur.

Le couplage fort consiste quant à lui à résoudre simultanément l'E.T.R. et l'équation de la chaleur. Une première méthode consiste à faire une résolution en "milieux séparés" où les transferts conductifs se font en phase solide et les transferts radiatifs dans la phase poreuse (VIGNOLES, 2016). Le rayonnement est alors vu comme une condition aux limites aux interfaces du solide. Cette approche n'est valable que pour les milieux dont la phase solide est opaque et la phase poreuse transparente. Une autre méthode de couplage fort consiste à résoudre directement l'équation de la chaleur et l'E.T.R. (discrétisée angulairement par la méthode des ordonnées discrètes, (FAVENNEC et al., 2019)) par éléments ou volumes finis (BADRI et al., 2020). Cette méthode de calcul, dont

des implémentations existent dans des codes commerciaux, est cependant très coûteuse en mémoire vive et en temps de calcul.

Finalement, pour pallier les besoins en mémoire vive importants des méthodes de résolutions déterministes (quel que soit le couplage), des méthodes de résolution purement stochastiques en couplage fort sont développées. La conduction et le rayonnement sont alors traités simultanément par des marches aléatoires mixtes (VIGNOLES, 2016), (SANS et al., 2019). Dans ce sens, des travaux actuellement en cours au CEA (thèse de doctorat de L. Seyer) ont pour objectif la réalisation d'un couplage fort totalement stochastique à l'aide d'une méthode de simulation du transfert conductif par la technique des marcheurs Browniens (GONNEAU et al., 2021) et d'une méthode de lancer de rayons pour évaluer les transferts radiatifs (DAUVOIS et al., 2016).

Initialement, la résolution de l'E.T.R et de l'équation de la chaleur dans le code utilisé par la suite (*THERMIVOX*) était réalisée selon un couplage numérique fort (NIEZGODA, 2012). Cependant, les besoins en mémoire et les temps de calculs excessivement longs induits par une telle résolution ont poussé à une réécriture du code selon un schéma de couplage numérique faible, soit une résolution itérative de l'E.T.R. et de l'équation de la chaleur (§4.2).

4.1.3 Prise en compte de la semi-transparence dans la simulation du transfert radiatif

Au travers des précédents chapitres, il a été montré que la nature semi-transparente des matériaux étudiés avait pour conséquence une variation importante de leur caractéristiques et propriétés radiatives dans le domaine spectral de l'infrarouge. Les échanges par rayonnement thermique sont évidemment fonction de ces variations spectrales et ces dernières devraient être prises en compte lors des calculs radiatifs sur des milieux semi-transparents.

Lee et Viskanta (LEE & VISKANTA, 1997) ont été parmi les premiers à intégrer la semi-transparence dans leur calculs radiatifs via un modèle de bandes spectrales qui consiste à considérer les caractéristiques et propriétés radiatives d'un milieu constantes sur une gamme spectrale suffisamment étroite et de sommer les flux radiatifs obtenus sur chacune de ces bandes pour remonter au flux radiatif total. Ils montrent ainsi que les écarts entre les flux radiatifs calculés sur un verre semi-transparent avec un modèle gris classique et un modèle à bandes sont non négligeables. Des travaux similaires, incluant également des modèles à bandes ont été réalisés par Wang *et al.* (P.-Y. WANG et al., 2002) et Wei *et al.* (Z. WEI et al., 2003).

La discrétisation du domaine spectral en plusieurs bandes grises (les grandeurs radiatives varient d'une bande à l'autre mais sont constantes sur chaque bande) est relativement simple à implémenter mais allonge forcément les temps de calculs puisque l'équation du transfert radiatif doit être résolue pour chacune d'entre elle. Il n'y pas, à notre connaissance, d'autres méthodes développées dans la littérature permettant de prendre en compte la semi-transparence dans les calculs radiatifs.

En ce qui concerne les calculs des transferts couplés, très peu d'études intègrent des modèles à bandes (H.-P. TAN et al., 2000). Dans la majorité des cas, les calculs réalisés sur des milieux semi-transparents sont des calculs gris, donc avec des caractéristiques radiatives constantes sur toute la gamme spectrale. Or, et c'est ce qui est démontré par la suite, cette prise en compte de la semi-transparence est primordiale pour prédire correctement les échanges thermiques globaux au sein des matériaux étudiés dans ce document. Et c'est dans cette optique qu'un nouveau modèle à bandes spectrales a été développé pour le code *THERMIVOX*.

4.2 Modélisation du transfert couplé conducto-radiatif par bandes spectrales sur des structures 3D voxélisées

Les travaux présentés dans ce chapitre se basent sur le code de calcul de transferts couplés conducto-radiatifs sur des microstructures 3D voxélisées *THERMIVOX*, développé par M. Niezgoda puis C. Heisel lors de leur thèse de doctorat respective (NIEZGODA, 2012), (HEISEL, 2019). Jusqu’au début des travaux présentés dans ce document, le code permettait la résolution du couplage dans le régime stationnaire avec l’hypothèse du milieu gris. Cette thèse a permis le développement d’un modèle par bandes spectrales fonctionnant à la fois en régime stationnaire et transitoire. Ces nouveaux modèles sont détaillés plus loin dans cette section.

4.2.1 Convection au sein des matériaux étudiés

Le couplage de deux mécanismes physiques (conduction et rayonnement) conduisant à des systèmes mathématiques déjà très complexes, les transferts par convection (qui impliquent alors des concepts de mécanique des fluides) ne sont pas pris en compte dans *THERMIVOX* au sein du volume. Il faut donc s’assurer, avant toute simulation avec *THERMIVOX*, de l’absence de transfert convectif au sein des milieux étudiés. Le développement d’une cellule de convection peut être évalué en calculant le nombre de Rayleigh Ra (nombre sans dimension) (RAYLEIGH, 1916) définie par l’équation 4.3. Si ce dernier est inférieur à la valeur critique théorique de 1708, alors on considère qu’il n’y a pas de transfert convectif au sein du matériau.

$$Ra = \frac{g\beta}{\nu_c a} (T_p - T_\infty) L_c^3 \quad (4.3)$$

- $g = 9,81$ est l’accélération de la pesanteur en $m.s^{-2}$,
- β est le coefficient de dilatation thermique volumétrique K^{-1} ,
- ν_c est la viscosité cinématique du fluide en $m^2.s^{-1}$,
- a est la diffusivité thermique en $m^2.s^{-1}$,
- T_p est la température à la paroi et T_∞ est la température du fluide loin de celle-ci (en K)
- L_c est la longueur caractéristique de l’écoulement, ici la taille des pores (en m).

Ce nombre est calculé pour des températures de fonctionnement de 20 et 1000 °C en considérant un écart de température entre les fibres et l’air dans les pores d’une dizaine de Kelvin et une largeur moyenne de pore de 100 μm . Les propriétés de l’air à 20 et 1000°C sont extraites de la littérature et regroupées dans la Table 4.1

Propriétés	20 °C	1000 °C
β (K^{-1})	$3,4.10^{-3}$	$7,9.10^{-4}$
a ($m^2.s^{-1}$)	$2,2.10^{-5}$	$2,5.10^{-4}$
ν_c ($m^2.s^{-1}$)	$1,6.10^{-5}$	$1,7.10^{-4}$
Ra	$9,5.10^{-4}$	$1,8.10^{-6}$

TABLE 4.1 – Nombre de Rayleigh Ra calculé à 20 et 1000°C à partir des propriétés thermophysiques de l’air.

Le nombre de Rayleigh ainsi calculé à 20 et 1000 °C est largement en deçà de la valeur limite de 1708 et l’hypothèse faite sur l’absence de convection est ainsi valide sur toute la gamme de température puisque ce nombre décroît avec l’augmentation de la température. En considérant que certains des pores du SilPower[®] peuvent atteindre jusqu’à 1 mm de rayon (zone de faible densité de fibres), le nombre de Rayleigh est alors égal à $9,5.10^{-1}$ à 20°C et l’hypothèse reste valide.

4.2.2 Caractéristiques thermophysiques et radiatives des matériaux

Dans *THERMIVOX*, chaque voxel de la microstructure étudiée est homogène et représente une phase unique du matériau (fluide ou solide) à laquelle sont associées les caractéristiques thermophysiques de la phase en question. Cela justifie une fois de plus l'intérêt d'identifier l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque des constituants du milieu. Ces propriétés sont supposées constantes en température. Cette hypothèse est valide dans les cas où le gradient de température dans le matériau n'est que d'une dizaine de Kelvin au maximum, par exemple lors de simulations en régime stationnaire qui sont présentées ci-après. Pour les calculs en régime transitoire (e. g. expérience *ECOTHERM*, voir §4.4), cette hypothèse n'est plus valide et la prise en compte de l'évolution des caractéristiques thermiques avec la température s'avère alors nécessaire.

Pour les simulations, les caractéristiques thermophysiques de chaque phase solide (e. g. des fibres) que sont la conductivité phonique λ_{cond} , la capacité calorifique C_p et la masse volumique ρ_v , sont extraites de la littérature. Pour l'aspect radiatif, seuls les indices de réfraction n_σ et d'absorption k_σ sont nécessaires pour la résolution de l'E.T.R.. L'émittance est utilisée dans le cas de conditions limites radiatives. Les grandeurs radiatives sont directement extraites des phases des matériaux étudiés grâce à la méthodologie présentée au Chapitre 2.

4.2.3 Démarche de résolution numérique

La résolution du transfert couplé dans des structures voxelisées revient à réaliser un bilan de flux dans chacun des voxels. Pour un voxel de côté δ dont les faces sont numérotées arbitrairement de ① à ⑥ (Fig. 4.1), le bilan de flux du voxel i s'exprime :

— en régime stationnaire :

$$\sum_{k=1}^6 \phi_{cond,k}^i + \sum_{k=1}^6 \phi_{rad,k}^i = 0 \quad (4.4)$$

— en régime transitoire :

$$\sum_{k=1}^6 \phi_{cond,k}^i + \sum_{k=1}^6 \phi_{rad,k}^i = \rho_v C_p \delta^3 \frac{\partial T}{\partial t} \quad (4.5)$$

où k est la face d'incidence des différents flux.

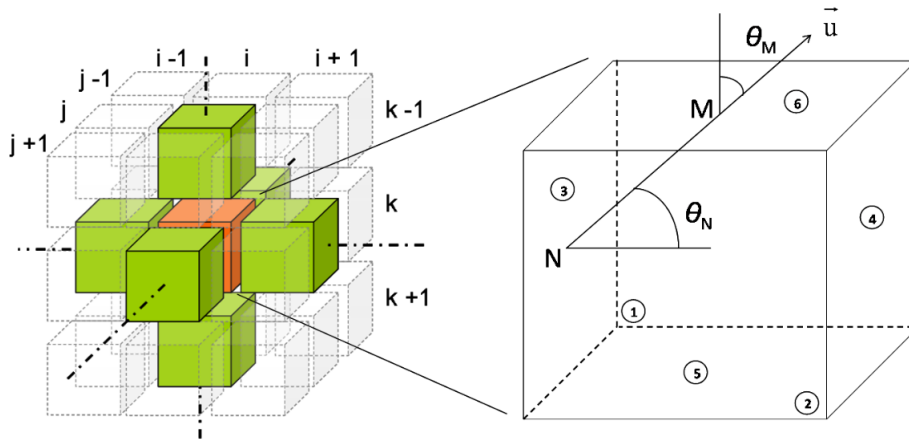


FIGURE 4.1 – Schéma d'un voxel.

Avec un couplage numérique faible (depuis (HEISEL, 2019)), la résolution de ce bilan de flux se fait en plusieurs étapes :

1. Obtention d'un champ de température initial (valeur imposée ou approchée par une simulation en conductif pur),
2. Résolution de l'E.T.R. à partir du champ de température pour évaluer un champ de luminance puis des flux radiatifs ϕ_{rad} ,
3. Injection des flux radiatifs dans les équations Eq. 4.4 ou Eq. 4.5 pour calculer un nouveau champ de température.

Les étapes 2 et 3 se répètent jusqu'à ce que l'écart entre les champs de température de deux itérations successives soit suffisamment faible pour que le calcul soit considéré stable :

$$\max |T_{ite} - T_{ite-1}| < \varepsilon_{tol} \quad (4.6)$$

où ite est l'itération en cours et ε_{tol} la tolérance choisie qui, pour ces travaux, a été fixée à 0,01%.

4.2.3.1 Résolution de l'E.T.R. par bandes spectrales

La résolution de l'E.T.R. dans *THERMIVOX* est basée sur un modèle à deux flux (présenté au Chapitre 1). Pour chaque face d'un voxel, il y a alors une luminance entrante orientée vers l'intérieur du voxel (notée L^e) et une luminance sortante orientée vers le voxel voisin (notée L^s).

Prenons comme exemple la face ⑥ (Fig. 4.1) d'un voxel, le flux radiatif sortant de celle-ci s'exprime alors par l'équation suivante :

$$\phi_6^s = \iint_{M \in S_6} \vec{\varphi}_r^s(M) \cdot \vec{n} dS_{M_6} \quad (4.7)$$

où $\vec{n}$ est la normale à la surface S_6 et $\vec{\varphi}_r^s$ est le flux surfacique évalué en un point M de la face ⑥ du voxel et égal à :

$$\vec{\varphi}_r^s = \sum_{i=1}^5 \iint_{N_i \in S_i} L' \left(M, \frac{\vec{N}_i \vec{M}}{N_i M} \right) \frac{\vec{N}_i \vec{M}}{N_i M} \frac{\cos \theta_{N_i}}{N_i M^2} dS_{N_i} \quad (4.8)$$

où L' est la luminance directionnelle totale (hypothèse du milieu gris) dans la direction $\vec{u}$ (Fig. 4.1). i représente ici l'indice des autres faces du voxel.

Comme les voxels sont homogènes, il n'y pas de diffusion du rayonnement au sein de ces derniers. Dans ce cas, la luminance directionnelle totale L' au point d'abscisse curviligne s s'exprime par une formulation simplifiée de l'E.T.R., soit :

$$\frac{dL'(s_i)}{ds_i} + \kappa_{abs} L'(s_i) = \kappa_{abs} \frac{n^2 \sigma_{SB} T^4}{\pi} \quad (4.9)$$

où σ_{SB} est la constante de Stefan-Boltzmann égale à $5,67 \cdot 10^{-8} \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-4}$ et κ_{abs} est le coefficient d'absorption du voxel. La résolution de cette équation donne :

$$L'(s_i) = L_i^e \exp(-\kappa_{abs} N_i M) + \frac{n^2 \sigma_{SB} T^4}{\pi} (1 - \exp(-\kappa_{abs} N_i M)) \quad (4.10)$$

L'expression du flux sortant de la face ⑥ (Eq. 4.7) peut alors être réécrite sous la forme suivante (toujours dans le cas d'un milieu gris) :

$$\phi_6^s = \iint_{M \in S_6} \sum_{i=1}^5 \left[\left(L_i^e - \frac{n^2 \sigma_{SB} T^4}{\pi} \right) \iint_{N_i \in S_i} \exp(-\kappa_{abs} N_i M) \frac{\cos \theta_M \cos \theta_{N_i}}{N_i M^2} dS_{N_i} + \frac{n^2 \sigma_{SB} T^4}{\pi} \iint_{N_i \in S_i} \frac{\cos \theta_M \cos \theta_{N_i}}{N_i M^2} dS_{N_i} \right] dS_{M_6} \quad (4.11)$$

Pour prendre en compte la dépendance spectrale des échanges radiatifs dans les calculs thermiques, le domaine spectral est discrétisé en un nombre de bandes N_B déterminé à partir de l'évolution des caractéristiques radiatives avec le nombre d'onde. La Figure 4.2 présente un exemple de discrétisation du domaine spectral en 8 bandes à partir de l'évolution de l'indice d'absorption du SilPower[®] avec le nombre d'onde. Plus le domaine spectral est discrétisé en un nombre de bandes important, plus les calculs sont précis mais leur coût temporel augmente logiquement.

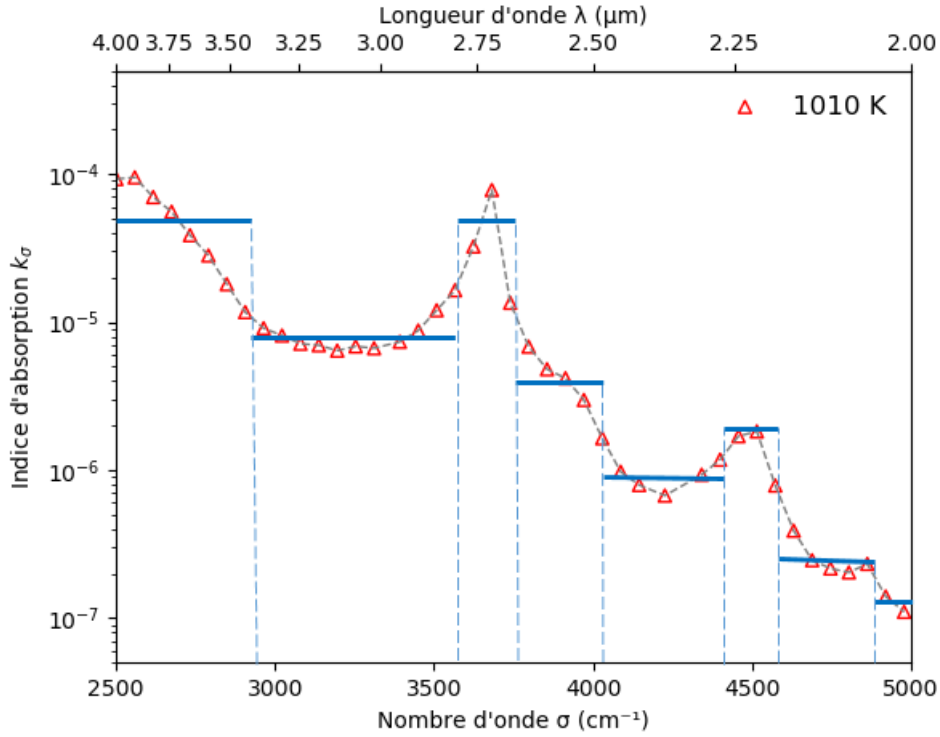


FIGURE 4.2 – Exemple de discrétisation du domaine spectral entre 2500 et 5000 cm^{-1} en 8 bandes selon l'évolution de l'indice d'absorption du SilPower[®] à 1010 K.

La luminance directionnelle totale est alors définie par la somme des luminances directionnelles spectrales évaluées sur chacune des bandes soit :

$$L'(s_i) = \sum_{m=1}^{N_B} \left(L_{i,m}^e \exp(-\kappa_{abs,\sigma_m} N_i M) + \frac{n_{\sigma_m}^2 \sigma_{SB,m} T^4}{\pi} (1 - \exp(-\kappa_{abs,\sigma_m} N_i M)) \right) \quad (4.12)$$

$\sigma_m = \sigma_1 - \sigma_2$ permet de définir les caractéristiques radiatives évaluées sur une bande spectrale m délimitée par deux nombres d'ondes σ_1 et σ_2 . La constante de Stefan-Boltzmann σ_{SB} découle de l'intégration de la loi de Planck présentée au Chapitre 1 sur la totalité du domaine spectral (1.2.2 et Eq. 1.1).

$$\int_0^{+\infty} L^o(\sigma, T) = \frac{2hc^2\sigma^3}{e^{\frac{C\sigma}{T}} - 1} d\sigma \quad (4.11)$$

avec $C = \frac{hc}{k_B}$.

Lors de calculs par bandes, il est nécessaire de recalculer cette valeur par intégration de la loi de Planck sur la bande spectrale m étudiée et à la température associée. La constante σ_{SB} est alors remplacée par la grandeur $\sigma_{SB,m}$ égale à :

$$\sigma_{SB,m} = \frac{2\pi k_B^4}{h^3 c^2} \sum_{n=1}^{+\infty} \left(e^{-nx_1} \left(\frac{x_1^3}{n} + \frac{3x_1^2}{n^2} + \frac{6x_1}{n^3} + \frac{6}{n^4} \right) - e^{-nx_2} \left(\frac{x_2^3}{n} + \frac{3x_2^2}{n^2} + \frac{6x_2}{n^3} + \frac{6}{n^4} \right) \right) \quad (4.13)$$

où $x_i = \frac{hc\sigma_i}{k_B T}$.

Les étapes de calcul de $\sigma_{SB,m}$ sont détaillées en Annexe B. D'un point de vue pratique, la sommation des 1000 premiers termes dans l'équation 4.13 est suffisante pour converger vers une valeur de $\sigma_{SB,m}$ constante jusqu'à la 5^{ème} décimale.

Le flux radiatif sortant de la face ⑥ peut alors être exprimé comme suit :

$$\begin{aligned} \phi_6^s = \iint_{M \in S_6} \sum_{i=1}^5 \sum_{m=1}^{N_B} \left[\left(L_{i,m}^e - \frac{n_{\sigma_m}^2 \sigma_{SB,m} T^4}{\pi} \right) \iint_{N_i \in S_i} \exp(-\kappa_{abs,\sigma_m} N_i M) \frac{\cos\theta_M \cos\theta_{N_i}}{N_i M^2} dS_{N_i} \right. \\ \left. + \frac{n_{\sigma_m}^2 \sigma_{SB,m} T^4}{\pi} \iint_{N_i \in S_i} \frac{\cos\theta_M \cos\theta_{N_i}}{N_i M^2} dS_{N_i} \right] dS_{M_6} \end{aligned} \quad (4.14)$$

$$\begin{aligned} \phi_6^s = \sum_{m=1}^{N_B} \left(\sum_{i=1}^5 \left[\left(L_{i,m}^e - \frac{n_{\sigma_m}^2 \sigma_{SB,m} T^4}{\pi} \right) \iiint_{M \in S_6, N_i \in S_i} \exp(-\kappa_{abs,\sigma_m} N_i M) \frac{\cos\theta_M \cos\theta_{N_i}}{N_i M^2} dS_{N_i} dS_{M_6} \right] + \right. \\ \left. \frac{n_{\sigma_m}^2 \sigma_{SB,m} T^4}{\pi} \delta^2 \underbrace{\sum_{i=1}^5 f_{6i}}_{=1} \right) \end{aligned} \quad (4.15)$$

f_{6i} sont les facteurs de forme dont la somme sur les cinq faces est égale à 1. De façon similaire à ces facteurs, des "facteurs de forme avec absorption" (sans dimension) sont définis (NIEZGODA, 2012), (HEISEL, 2019) :

$$F_{ij,m} = \frac{1}{\pi S_i} \iiint_{M_i \in S_i, N_j \in S_j} \exp(-\kappa_{abs,\sigma_m} N_j M_i) \frac{\cos\theta_{M_i} \cos\theta_{N_j}}{N_j M_i^2} dS_{N_j} dS_{M_i} \quad (4.16)$$

Finalement le flux sortant de la face ⑥ peut se définir comme une luminance isotrope équivalente sortante :

$$\phi_6^s = \pi \delta^2 L_6^s = \pi \delta^2 \sum_{m=1}^{N_B} \left[\sum_{i=1}^5 \left(L_{i,m}^e - \frac{n_{\sigma_m}^2 \sigma_{SB,m} T^4}{\pi} \right) F_{6i,m} + \frac{n_{\sigma_m}^2 \sigma_{SB,m} T^4}{\pi} \right] \quad (4.17)$$

$$L_6^s = \sum_{m=1}^{N_B} \left[\sum_{i=1}^5 \left(L_{i,m}^e - \frac{n_{\sigma_m}^2 \sigma_{SB,m} T^4}{\pi} \right) F_{6i,m} + \frac{n_{\sigma_m}^2 \sigma_{SB,m} T^4}{\pi} \right] \quad (4.18)$$

D'un point de vue géométrique, les trente-six facteurs de forme avec absorption peuvent être réduits à deux : un facteur pour les faces voisines à celle étudiée noté $F_{V,m} = F_{61,m} = F_{62,m} = F_{63,m} = F_{64,m}$ et un facteur pour la face opposée $F_{O,m} = F_{65,m}$.

Toujours en considérant la face ⑥, on peut écrire :

$$L_6^s = \sum_{m=1}^{N_B} \left[F_{V,m} \sum_{i=1}^4 L_{i,m}^e + F_O L_{5,m}^e + \frac{n_{\sigma_m}^2 \sigma_{SB,m} T^4}{\pi} (1 - F_{O,m} - 4F_{V,m}) \right] \quad (4.19)$$

Les équations développées dans cette section sont évidemment applicables aux luminances des cinq autres faces du voxel (sous réserve d'une permutation des indices). Les facteurs de formes

d'absorption se calculent à partir des coordonnées des points M $\begin{pmatrix} \delta x \\ \delta y \\ \delta \end{pmatrix}$ et N $\begin{pmatrix} \delta z \\ \delta t \\ 0 \end{pmatrix}$:

$$F_{O,m} = \int_{x=0}^1 \int_{y=0}^1 \int_{z=0}^1 \int_{t=0}^1 \frac{\exp(-\kappa_{abs,\sigma_m} \delta \sqrt{(x-z)^2 + (y-t)^2 + 1})}{((x-z)^2 + (y-t)^2 + 1)^2} dx dy dz dt \quad (4.20)$$

$$F_{V,m} = \int_{x=0}^1 \int_{y=0}^1 \int_{z=0}^1 \int_{t=0}^1 zt \frac{\exp(-\kappa_{abs,\sigma_m} \delta \sqrt{(y-x)^2 + z^2 + t^2})}{((y-x)^2 + z^2 + t^2)^2} dx dy dz dt \quad (4.21)$$

Après quelques transformations mathématiques ces expressions peuvent être réécrites à l'aide d'intégrales simples en coordonnées polaires :

$$F_{O,m} = \frac{2}{\pi} \int_0^1 \frac{\exp(-\kappa_{abs,\sigma_m} \delta \sqrt{r^2 + 1})}{(r^2 + 1)^2} r (\pi - 4r + r^2) dr + \frac{2}{\pi} \int_1^{\sqrt{2}} \frac{\exp(-\kappa_{abs,\sigma_m} \delta \sqrt{r^2 + 1})}{(r^2 + 1)^2} r \left(\pi - 2 - r^2 + 4\sqrt{r^2 - 1} - 4\arccos\left(\frac{1}{r}\right) \right) dr \quad (4.22)$$

$$F_{V,m} = \frac{1}{12\pi} \int_1^{\sqrt{2}} \frac{\exp(\delta \kappa_{abs,\sigma_m} r)}{r^3} \left(6r^4 - 6r^2 + 5 - 16(r^2 - 1)^{\frac{3}{2}} \right) dr + \frac{1}{12\pi} \int_{\sqrt{2}}^{\sqrt{3}} \frac{\exp(\delta \kappa_{abs,\sigma_m} r)}{r^3} \left(-3r^4 - 6r^2 + 1 + 8(r^2 - 2)^{\frac{3}{2}} \right) dr + \frac{8\delta \kappa_{abs,\sigma_m} - 3 + (3 - 5\delta \kappa_{abs,\sigma_m}) \exp(\delta \kappa_{abs,\sigma_m})}{12\pi (\delta \kappa_{abs,\sigma_m})^2} \quad (4.23)$$

Les calculs pour arriver à ces expressions des facteurs de formes sont détaillés dans (NIEZGODA, 2012). Il existe une relation de continuité entre les luminances de voxels voisins (Fig. 4.3). Par exemple, la luminance entrante par la face ⑥ est la somme de la partie transmise ($T_{5'6,m}$) de la luminance sortante de la face ⑤ du voxel supérieur (indice ') et de la partie réfléchie ($R_{65',m}$) de la luminance sortante de la face ⑥ du voxel considéré.

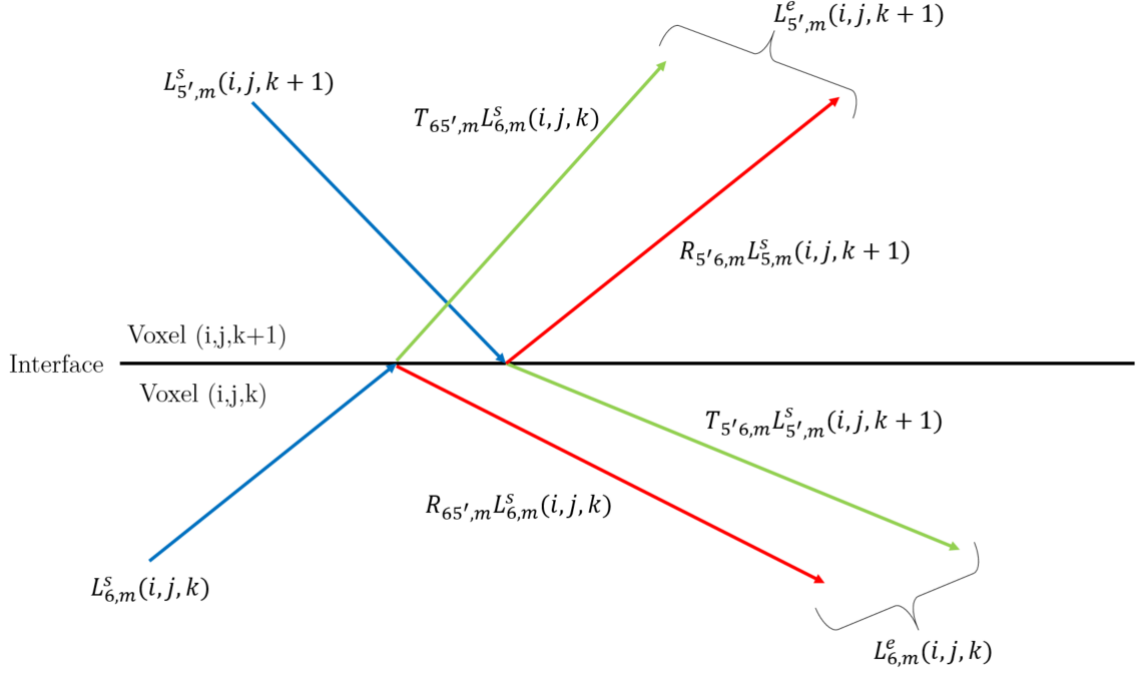


FIGURE 4.3 – Schéma illustrant la relation de continuité entre luminances à l'interface de deux voxels.

La luminance spectrale entrante de la face ⑥ de la bande spectrale m est alors égale à :

$$L_{6,m}^e(i,j,k) = R_{65',m}L_{6,m}^s(i,j,k) + T_{56',m}L_{5,m}^s(i,j,k+1) \quad (4.24)$$

La réflectivité $R_{ij,m}$ et la transmittivité $T_{ij,m}$ (qui sont donc des propriétés de surface, pas de volume) sont calculées à l'aide des relations de Fresnel et de Snell-Descartes (NIEZGODA, 2012) et avec les valeurs des indices de réfraction et d'absorption spectraux des voxels concernés sur la bande spectrale m .

4.2.3.2 Résolution de l'équation de la chaleur

Le développement de la méthode de résolution de l'E.T.R. dans la section précédente permet de réécrire l'équation de la chaleur (ou le bilan de flux, Eq. 4.4) pour un voxel de la façon suivante (pour le régime stationnaire) :

$$\sum_{k=1}^6 \phi_{cond,k}^i + \pi \delta^2 \sum_{k=1}^6 \left(\sum_{m=1}^{N_B} (L_{k,m}^e - L_{k,m}^s) \right) = 0 \quad (4.25)$$

Le calcul des flux conductifs $\phi_{cond,k}^i$ traversant chaque face du voxel se fait par un schéma numérique de type différences finies. Les noeuds du schéma se situent au centre du voxel. L'équation 4.25 devient alors :

$$\sum_{k=1}^6 \frac{2\delta\lambda_i\lambda_k}{\lambda_i + \lambda_k} (T_k - T_i) + \pi \delta^2 \sum_{k=1}^6 \left(\sum_{m=1}^{N_B} (L_{k,m}^e - L_{k,m}^s) \right) = 0 \quad (4.26)$$

Cette formulation est également valable pour le régime transitoire, à ceci près que le bilan de flux dans un voxel n'est plus nul, mais égal à l'évolution de température entre deux pas de temps n . Le domaine temporel est également explicité par un schéma de différences finies :

$$\sum_{k=1}^6 \frac{2\delta\lambda_i\lambda_k}{\lambda_i + \lambda_k} (T_k^n - T_i^n) + \pi\delta^2 \sum_{k=1}^6 \left(\sum_{m=1}^{N_B} (L_{k,m}^e - L_{k,m}^s) \right) = \rho_{v,i} C_{p,i} \delta^3 \frac{T_i^n - T_i^{n-1}}{\Delta t} \quad (4.27)$$

4.2.3.3 Conditions aux limites

Les équations décrites précédemment sont valables pour tous les calculs présentés dans ce chapitre et pour tous les voxels, à l'exception de ceux qui se trouvent sur les limites du volume étudié, i. e. les voxels des six faces, des douze arrêtes et des huit sommets. Pour ces voxels, les équations varient en fonction des conditions aux limites qui sont imposées.

Si la condition limite est une température imposée T_{imp} , alors la luminance entrante de la face du voxel concernée (e. g. la face ⑥) est définie par :

$$L_6^e(i, j, k) = \sum_{m=1}^{N_B} \varepsilon_m \frac{n_m^2 \sigma_{SB,m} T_{imp}^4}{\pi} \quad (4.28)$$

avec par exemple $i = 0$ ou $i = i_{max}$ en fonction du bord du volume sur lequel le voxel étudié se trouve. Si la condition limite est un flux imposé φ_0 , alors :

$$L_6^e(i, j, k) = \frac{\varphi_0 - \varphi_{cond}}{\pi} + L_6^s(i, j, k) \quad (4.29)$$

Dans le cas présent, φ_{cond} représente le flux conductif surfacique transitant au travers de la face du voxel considéré.

Même si la convection est négligée au sein du matériau, ce mode de transfert peut-être une condition limite des expériences à simuler. Dans ce cas, la luminance entrante du voxel s'exprimera par :

$$L_6^e(i, j, k) = \frac{1}{\pi} \left(h(T(i, j, k) - T_{env}) - \varphi_{cond} \right) + L_6^s(i, j, k) \quad (4.30)$$

où h est le coefficient d'échange convectif (en $W.m^{-2}.K^{-1}$) et T_{env} est la température de l'environnement.

Les conditions aux limites peuvent finalement être périodiques. Les termes de température et de luminance sont alors équivalents à ceux situés sur la face opposée du volume.

4.2.3.4 Implémentation numérique

L'implémentation numérique des systèmes d'équation dans le code a été reprise par C. Heisel au cours de ses travaux de thèse (HEISEL, 2019). Ce formalisme a été adapté au modèle à bandes spectrales, pour le régime stationnaire comme pour le régime transitoire.

L'équation 4.19, lorsqu'elle est appliquée aux N voxels du volume sur une bande spectrale m , peut s'écrire sous la forme matricielle suivante :

$$L_m^e = M_1 L_m^s + M_2 T^4 \quad (4.31)$$

L_m^e est un vecteur de taille $6N$ comprenant les six luminances entrantes de chacun des N voxels. L_m^s comprend, de la même façon, les luminances sortantes des six faces. M_1 et M_2 sont des matrices creuses de taille respective $6N \times 6N$ et $6N \times N$ composées de termes F_O et F_V . T est le vecteur de température de taille N dont tous les termes sont à la puissance 4. Ce système matriciel est donc composé de treize inconnues (douze luminances et une température).

L'expression de la continuité de la luminance d'un voxel à son voisin (Eq. 4.24) généralisée à tous les voxels est définie par :

$$L_m^s = M_3 L_m^e + C_1 \quad (4.32)$$

La matrice M_3 est alors une matrice creuse de taille $6N \times 6N$, remplie des termes de réflexion et de transmission. C_1 est un vecteur de taille $6N$ qui comporte les conditions aux limites radiatives.

La combinaison des équations 4.31 et 4.32 permet d'écrire un nouveau système matriciel ne comportant alors que sept inconnues (six luminances et une température) :

$$AL_m^e = BT^4 + K_1 \quad (4.33)$$

avec $A = I_d - M_1 M_3$, $B = M_2$ et $K_1 = M_1 C_1$. I_d est la matrice identité.

Dans le cadre du modèle à bandes spectrales, les facteurs de formes, les réflexions et transmissions (intervenant dans l'équation 4.24) sont calculés avec les caractéristiques radiatives à une bande m donnée et le système matriciel de l'équation 4.33 est résolu pour cette même bande. La résolution de l'E.T.R. se fait sur chacune des bandes de façon itérative. Il est donc nécessaire d'allouer de la mémoire pour deux vecteurs de luminances entrantes (chacun de taille $6N$) plutôt qu'un, comme cela est fait pour le modèle gris. Le premier vecteur est le résultat de la résolution du système matriciel (Eq. 4.33) pour une bande. Ces résultats (des luminances entrantes spectrales) sont ajoutés au second vecteur pour sommer les luminances entrantes spectrales obtenues sur chacune des bandes m entre elles. À la fin du calcul, la mémoire du premier vecteur est désallouée et le second vecteur est rempli par des sommes de luminances entrantes spectrales, c'est à dire des luminances entrantes totales. Il est donc à noter que cette étape du calcul nécessite deux fois plus de mémoire vive qu'un calcul gris. La luminance sortante pouvant être exprimée à partir de la luminance entrante (Eq. 4.32), l'équation 4.26 peut ainsi s'écrire :

$$CT + \sum_{m=1}^{N_B} DL_m^e + ET^4 + K_2 = 0 \quad (4.34)$$

C est alors un vecteur creux de taille N comportant les conductances (pour le calcul des flux conductifs), D et E sont des matrices de taille respective $N \times 6N$ et $N \times N$ comportant les conditions limites radiatives (des luminances entrantes et de l'émission propre) et K_2 est un vecteur de taille N comportant les conditions limites conductives. Ce système ainsi réduit à cinq matrices et deux vecteurs creux permet de réaliser des calculs sur des volumes relativement gros, soit des volumes d'environ 400 voxels au cube avec les moyens disponibles dans le cadre de cette thèse.

Pour une étude en régime instationnaire, deux vecteurs de taille N supplémentaires sont nécessaires : un vecteur F portant les termes "d'inertie" de l'équation de la chaleur et un vecteur comprenant les températures au pas de temps précédent T^{old} .

L'équation 4.34 devient ainsi :

$$CT + \sum_{m=1}^{N_B} DL_m^e + ET^4 + K_2 + F(T^{old} - T) = 0 \quad (4.35)$$

Des résolutions itératives des systèmes 4.33 et 4.34 (ou 4.35 dans le cas transitoire) permettent d'extraire les champs de température et de luminances finaux. Le système 4.34 n'étant pas linéaire, sa résolution se fait à l'aide d'un algorithme de type Levenberg-Marquardt (présenté au §2.5, (MARQUARDT, 1963)).

4.3 Calculs de conductivités thermiques apparentes de microstructures poreuses réfractaires

La conductivité thermique apparente est une propriété thermique d'un matériau hétérogène considérée comme représentative du matériau dans son ensemble. Cette grandeur est particulièrement intéressante pour réaliser des premières études de dimensionnement de systèmes complexes par des approches simplifiées ou faire une première sélection entre différents matériaux candidats à une même application ; comme par exemple le choix d'un isolant haute température pour les applications du CEA. Dans les études du transfert couplé conducto-radiatif, cette conductivité thermique est la somme de deux contributions : une conductivité phonique effective $\lambda_{cond,eff}$, représentative des échanges par conduction et une conductivité radiative $\lambda_{rad,eff}$, également effective, représentative du transfert radiatif. Cette dernière contribution découle de l'expression du flux radiatif sous la forme d'une loi de diffusion similaire à la loi de Fourier (Eq. 4.2). Cette formulation, valable pour un matériau absorbant, diffusant et optiquement épais, permet d'introduire une conductivité radiative, ou conductivité de Rosseland $\lambda_{rad,eff}$ (HOWELL et al., 2021). Dans le cas d'un milieu gris, celle-ci s'exprime par :

$$\lambda_{rad,eff}(T) = \frac{16}{3} \frac{n^2}{\beta_{ext}} \sigma_{SB} T^3 \quad (4.36)$$

On rappelle que β_{ext} est le coefficient d'extinction égal à $\beta_{ext} = \kappa_{abs} + \kappa_{sca}$ (en m^{-1}). Un milieu est considéré optiquement épais si son épaisseur optique, le produit du coefficient d'extinction β_{ext} et de l'épaisseur de l'échantillon d est grand devant l'unité :

$$\beta_{ext} d \gg 1 \quad (4.37)$$

Plusieurs modèles conductifs purs faisant intervenir une conductivité apparente avec une contribution radiative (PETROV, 1997)(VIGNOLES et al., 2021) permettent, bien qu'ils soient moins précis que les modèles couplés, d'approcher des solutions de champ de température sans omettre la contribution radiative qui, pour les températures élevées, ne peut pas être négligée.

La conductivité apparente du SilPower[®] a été estimée par Penazzi *et al.* (PENAZZI et al., 2022) pour différentes températures à l'aide d'une méthode inverse basée sur une expérience de type "fil chaud". Le dispositif expérimental ainsi développé consiste à placer un fil électrique entre deux plaques de SilPower[®] qui sont elles-mêmes introduites dans un four porté à la température à laquelle on souhaite identifier la conductivité thermique. Un courant parcourt ensuite le fil, ce qui provoque une élévation de la température d'environ 10 K pendant un certain laps de temps. On obtient alors un thermogramme sur lequel un modèle inverse peut être appliqué. Pour simuler ce thermogramme, les auteurs ont utilisé un modèle analytique purement conductif (i. e. sans résoudre l'E.T.R.) intégrant une conductivité apparente, paramètre qu'ils cherchent à identifier par leur modèle inverse. Celle-ci est ainsi définie par la somme d'une conductivité phonique effective évoluant linéairement et une conductivité radiative effective de type Rosseland :

$$\lambda_{app} = \lambda_{cond,eff} + \lambda_{rad,eff} = a + bT + \frac{16}{3} \frac{n^2}{\beta_{ext}} \sigma_{SB} T^3 \quad (4.38)$$

L'objectif de cette section est, dans un premier temps, de comparer les résultats obtenus par Penazzi *et al.* à des calculs de conductivités apparentes réalisés à l'aide du modèle conducto-radiatif gris de THERMIVOX. Dans un second temps, ces conductivités apparentes évaluées à partir de conductivités radiatives grises sont comparées à des conductivités calculées par des modèles à bandes spectrales pour évaluer l'influence de la dépendance spectrale du transfert radiatif sur les calculs thermiques.

4.3.1 Calcul de la conductivité apparente du SilPower® à partir d'un modèle conducto-radiatif gris.

L'évaluation d'une conductivité apparente dans *THERMIVOX* se fait par un calcul en régime stationnaire. Un gradient d'un degré est appliqué entre deux faces opposées d'un volume de SilPower® voxelisé et des conditions périodiques sont appliquées aux quatre autres faces du volume. Un champ de flux s'établit alors dans le volume numérique en fonction de la température d'étude et des propriétés thermophysiques de chaque voxel. Le gradient de température dans la structure étant suffisamment faible, on considère que les propriétés thermophysiques ne varient pas en température.

Pour chaque rangée de voxel perpendiculaire à la direction selon laquelle le gradient de température est imposé dans le volume, le flux conductif est calculé pour chaque voxel (par la loi de Fourier, Eq. 4.2) puis moyenné. À partir du flux conductif total moyen (moyenne des flux moyens de chaque rangée), on remonte à une conductivité phonique effective $\lambda_{cond,eff}$. En procédant de la même façon mais en évaluant cette fois-ci les flux radiatifs dans chacun des voxels (qui dérivent des bilans de luminances), on estime une conductivité radiative effective $\lambda_{rad,eff}$ alors basée sur une approximation de diffusion. La somme des deux conductivités effectives permet finalement d'obtenir la conductivité thermique apparente du matériau λ_{app} . Les conductivités apparentes ont ainsi été calculées à 295, 600 et 1010 K. La Table 4.2 présente les propriétés et caractéristiques utilisées pour ces calculs de conductivité.

Température	Propriétés	Air	Fibres de silice	PENAZZI et al.
295 K	ρ_v (kg.m ⁻³)	1,2	2200	581
	λ_{cond} (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	0,026	1,3	0,125*
	C_p (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹)	1010	740	750
	n	1,0	1,44	1,0
	k	0,0	10 ⁻²	-
	κ_{abs} (m ⁻¹)	0,0	6830	6830
600 K	ρ_v (kg.m ⁻³)	0,59	2200	581
	λ_{cond} (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	0,046	1,52	0,160*
	C_p (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹)	1051	1045	1070
	n	1,0	1,44	1,0
	k	0,0	10 ⁻²	-
	κ_{abs} (m ⁻¹)	0,0	6830	6830
1010 K	ρ_v (kg.m ⁻³)	0,35	2200	581
	λ_{cond} (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	0,069	1,75	0,207*
	C_p (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹)	1143	1180	1250
	n	1,0	1,44	1,0
	k	0,0	10 ⁻²	-
	κ_{abs} (m ⁻¹)	0,0	6830	6830

TABLE 4.2 – Propriétés thermo-physiques utilisées pour les calculs de conductivité thermiques apparentes à partir de conductivités radiatives effectives grises du SilPower®. Les propriétés de la silice et de l'air utilisées dans *THERMIVOX* ont été respectivement extraites de (BRÜCKNER, 1970) ((SUKENAGA et al., 2021) pour la conductivité phonique) et (DIXON, 2007). Les propriétés utilisées par (PENAZZI et al., 2022) sont les propriétés du milieu effectif contenant les fibres de silice et l'air.

* Les conductivités phoniques effectives ont été calculées à partir de l'expression identifiée par (PENAZZI et al., 2022) : $\lambda_{cond,eff} = 1,15.10^{-4}T + 9,09.10^{-2}$.

On rappelle que pour *THERMIVOX*, il est nécessaire de connaître les propriétés intrinsèques de chacune des phases du matériau (l'air et la silice dans ce cas). Les propriétés de chaque phase ont donc été extraites de la littérature (Table 4.2). En ce qui concerne les caractéristiques radiatives des fibres de silice, celles-ci sont déduites des résultats obtenus au Chapitre 3. Les propriétés utilisées dans (PENAZZI et al., 2022) sont les propriétés effectives que les auteurs ont identifiées sur une plaque de SilPower® de "densité standard" (SG) qui correspond à la version du matériau étudié dans ce document. On note également qu'ils ont évalué un coefficient d'extinction $\beta_{ext} = 6830 \text{ m}^{-1}$ qui prend en compte à la fois l'absorption et la diffusion. Or, dans *THERMIVOX*, les voxels sont homogènes et il n'y a par conséquent pas de diffusion au sein de ces derniers. Le coefficient d'extinction est alors égal au coefficient d'absorption. Dans le cas présent, il s'avère que la valeur moyenne du coefficient d'absorption des fibres de silice est équivalente au coefficient d'extinction estimé dans (PENAZZI et al., 2022) (même ordre de grandeur). Cette valeur est donc choisie dans le calcul pour comparaison.

Pour limiter les temps de calcul, tout en respectant l'hypothèse du milieu optiquement épais, les calculs de conductivité du SilPower® dans *THERMIVOX* ont été réalisés sur plusieurs "tranches" de $800 \times 200 \times 200$ voxels extraites des volumes étudiés par microtomographie. Pour la simulation, le gradient de température est imposé suivant la dimension la plus grande qui est dans le cas présent égale à $584 \text{ }\mu\text{m}$. Le coefficient d'absorption du SilPower® étant égal à 6830 m^{-1} , $\beta_{ext}d \approx 4$ et le milieu peut alors être considéré comme optiquement épais. Des conditions périodiques sont appliquées aux autres faces du volume. Chaque tranche étudiée avait une fraction volumique de fibre proche des 28% attendus. La dispersion entre chaque calcul de conductivité apparente étant faible (inférieur à 5% en relatif), les résultats présentés ci-après sont considérés représentatifs de la propriété thermique du matériau.

Les conductivités effectives phoniques et radiatives, et par conséquent les conductivités apparentes du SilPower®, calculées avec *THERMIVOX* et par le modèle de Penazzi *et al.* (PENAZZI et al., 2022) sont comparées dans la Table 4.3.

Température (K)	Modèle	Conductivité ($\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)		
		$\lambda_{cond,eff}$	$\lambda_{rad,eff}$	λ_{app}
295 K	<i>THERMIVOX</i>	0,121	$8,32 \cdot 10^{-4}$	0,122
	<i>PENAZZI et al.</i>	0,125	$1,14 \cdot 10^{-3}$	0,126
600 K	<i>THERMIVOX</i>	0,172	$2,94 \cdot 10^{-2}$	0,202
	<i>PENAZZI et al.</i>	0,160	$9,56 \cdot 10^{-3}$	0,170
1010 K	<i>THERMIVOX</i>	0,227	0,236	0,463
	<i>PENAZZI et al.</i>	0,207	$4,56 \cdot 10^{-2}$	0,253

TABLE 4.3 – Comparaison entre les conductivités effectives phoniques, radiatives grises et les conductivités apparentes moyennes du SilPower® calculées avec *THERMIVOX* et par le modèle de (PENAZZI et al., 2022).

À 295 K, les conductivités phoniques et radiatives sont relativement proches pour les deux modèles, malgré des méthodes de résolution différentes et l'utilisation de propriétés locales plutôt qu'effectives dans *THERMIVOX*. Les conductivités effectives radiatives sont faibles dans les deux cas, ce qui est attendu pour cette température, puisque le transfert radiatif est minimal. Pour des températures de 600 K et 1010 K, les conductivités effectives phoniques restent cohérentes d'un modèle à l'autre bien qu'il ne soit pas supposé que la conductivité phonique évolue linéairement dans *THERMIVOX*. L'hypothèse d'une telle évolution de la propriété par Penazzi *et al.* semble donc valide et rejoint les données extraites de la littérature.

En revanche, des écarts de plus en plus importants sont observés entre les conductivités radiatives des deux modèles avec l'augmentation de la température. La conductivité radiative estimée par Penazzi *et al.* est relativement faible malgré un coefficient d'extinction du matériau élevé. De plus, l'indice de réfraction effectif utilisé par les auteurs pour leurs calculs est supposé égal à l'unité. Cette hypothèse est discutable car les spectres du SilPower[®] présentés au chapitre précédent ont montré que la réflectance n'était jamais nulle dans la plage de semi-transparence, donc qu'un contraste d'indice de réfraction existait bien entre le matériau et l'air ambiant sur cette gamme spectrale. L'indice de réfraction du SilPower[®] ne devrait donc pas être égal à 1. De nouveaux calculs ont été réalisés à 600 et 1010 K avec les propriétés de la Table 4.2 mais en fixant l'indice du milieu effectif de (PENAZZI et al., 2022) à 1,44, valeur qui semble plus représentative pour ce matériau (Table 4.4).

Température (K)	Modèle	Conductivité (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)		
		$\lambda_{cond,eff}$	$\lambda_{rad,eff}$	λ_{app}
600 K	<i>THERMIVOX</i>	0,172	2,94.10 ⁻²	0,202
	<i>PENAZZI et al.</i>	0,160	1,38.10 ⁻²	0,174
1010 K	<i>THERMIVOX</i>	0,227	0,236	0,463
	<i>PENAZZI et al.</i>	0,207	6,57.10 ⁻²	0,253

TABLE 4.4 – Comparaison entre les conductivités effectives phoniques, radiatives et les conductivités apparentes du SilPower[®] calculées avec *THERMIVOX* et par (PENAZZI et al., 2022) avec un indice de réfraction du milieu effectif de 1,44.

Les conductivités radiatives effectives calculées par le modèle de (PENAZZI et al., 2022) sont plus élevées que pour un calcul avec un indice de réfraction égal à l'unité et les écarts entre les deux modèles pour une température de 600 K sont alors relativement faibles. Cependant, ceux-ci restent importants pour une température de 1010 K. Il semble ainsi, qu'à partir d'une certaine température, la simulation du transfert radiatif dans un milieu semi-transparent à haute température par des modèles gris diffère fortement d'un modèle de résolution à l'autre, bien que le milieu soit considéré comme optiquement épais dans les deux cas.

La théorie du transfert radiatif indique que 99% du transfert se réalise, à une température donnée, sur l'intervalle $[0,23.\sigma_{max}, 3,5.\sigma_{max}]$ où σ_{max} est le nombre d'onde auquel le maximum de puissance radiative est absorbé ou émis par un corps noir. Ce maximum, qui se décale vers les grands nombres d'onde avec une augmentation de la température, se calcule par la loi de Wien qui a été présentée au Chapitre 1 (Eq. 1.3).

$$\sigma_{max} = 1,9609.T \text{ cm}^{-1} \quad (1.3)$$

Or, les résultats obtenus au Chapitre 3 ont montré que les caractéristiques radiatives du SilPower[®] variaient fortement avec le nombre d'onde. À 1010 K, il est donc probable que le transfert radiatif s'effectue en partie sur une gamme spectrale où le SilPower[®] est semi-transparent ce qui n'est pas le cas pour des températures plus faibles. Le matériau n'est alors probablement plus optiquement épais (son coefficient d'absorption κ_{abs} est trop faible) et le modèle de conductivité radiative effective n'est plus valable.

4.3.2 Calcul de la conductivité radiative effective du SilPower[®] par un modèle à bandes spectrales

Pour valider l'hypothèse de l'influence de la semi-transparence du SilPower[®] sur le calcul d'une conductivité radiative effective, de nouvelles simulations ont été réalisées avec *THERMIVOX* mais cette fois-ci avec un modèle à bandes spectrales.

Les intervalles spectraux (Table 4.5) sur lesquels se déroulent le transfert radiatif à 295 et 1010 K ont été calculés à partir du nombre d'onde maximum σ_{max} évalué par la loi de Wien (Eq. 1.3) pour ces deux températures. Les modèles par bandes doivent intégrer à minima ces intervalles pour prendre en compte la totalité du transfert radiatif.

Température (K)	σ_{max} (cm ⁻¹)	0,23. σ_{max} (cm ⁻¹)	3.5. σ_{max} (cm ⁻¹)
295	578,47	133,04	2024,63
1010	1980,51	455,52	6931,79

TABLE 4.5 – Plages spectrales théoriques sur lesquelles 99% des échanges radiatifs sont réalisés à 295 et 1010 K.

Un premier modèle à deux bandes spectrales a été établi pour calculer la conductivité thermique effective du SilPower[®]. La première bande correspond à l'intervalle [100, 2000] cm⁻¹ et la seconde à l'intervalle [2000, 7000] cm⁻¹. Ces deux bandes ont été choisies à partir des spectres d'émittance du SilPower[®] à 295 et 1010 K. Pour ces deux températures, le matériau est alors opaque sur la première bande et semi-transparent sur la seconde.

Les caractéristiques radiatives utilisées sur chaque bande sont présentées dans la Table 4.6 :

Température (K)	Intervalle spectral (cm ⁻¹)	n_σ	k_σ	κ_σ (m ⁻¹)
295 K	100-2000	1,54	10 ⁻²	13823
	2000-7000	1,44	1,50.10 ⁻⁵	61,7
1010 K	100-2000	1,54	10 ⁻²	13823
	2000-7000	1,44	1,49.10 ⁻⁵	55,94

TABLE 4.6 – Caractéristiques radiatives du SilPower[®] utilisées pour le modèle à deux bandes spectrales à 295 et 1010 K. Le coefficient d'absorption $\kappa_{abs,\sigma}$ est calculé à partir des valeurs de l'indice d'absorption k_σ par la relation $\kappa_{abs,\sigma} = 4\pi k_\sigma \sigma$. Les valeurs indiquées dans cette table sont les moyennes de ces coefficients sur chacune des bandes spectrales.

N'ayant pas connaissance de l'indice de réfraction sur la plage spectrale [100, 2000] cm⁻¹ car l'optique géométrique n'est pas valide sur cette gamme, l'indice utilisé est celui extrait d'un verre de silice par (ROZENBAUM et al., 2019). La valeur de l'indice d'absorption k_σ sur cette gamme spectrale (non identifiable par notre méthodologie) est fixée à 10⁻² ce qui est cohérent pour une bande d'opacité. Les valeurs sur l'intervalle [2000, 7000] sont une moyenne des caractéristiques radiatives identifiées au chapitre précédent à 295 et 1010 K.

Conductivité (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	295 K	1010 K
Phonique $\lambda_{cond,eff}$	0,121	0,227
Radiative, $\lambda_{rad,eff}$	1,07.10 ⁻³	0,182
Apparente	0,122	0,409

TABLE 4.7 – Conductivités effectives du SilPower[®] calculées avec un modèle à 2 bandes spectrales à 295 et 1010 K.

La conductivité radiative effective calculée à 295 K avec le modèle à deux bandes (Table 4.7) est équivalente à celle calculée par le modèle gris (Table 4.4) et ce puisque le transfert radiatif à cette température est très faible. À 1010 K en revanche, le transfert radiatif devient important et la conductivité radiative calculée par le modèle spectral est alors plus faible que celle calculée par le modèle gris (Table 4.4).

Ce résultat est contre-intuitif car la prise en compte de la semi-transparence dans le calcul suggère que la part du flux radiatif incident absorbée est plus faible que ce qui est prédit par un modèle gris puisque une part du transfert se déroule dans la gamme de semi-transparence du matériau (Fig. 4.4). La conductivité radiative évaluée par un modèle spectral devrait donc être plus élevée que celle du modèle gris, car dans ce cas, le matériau est moins isolant.

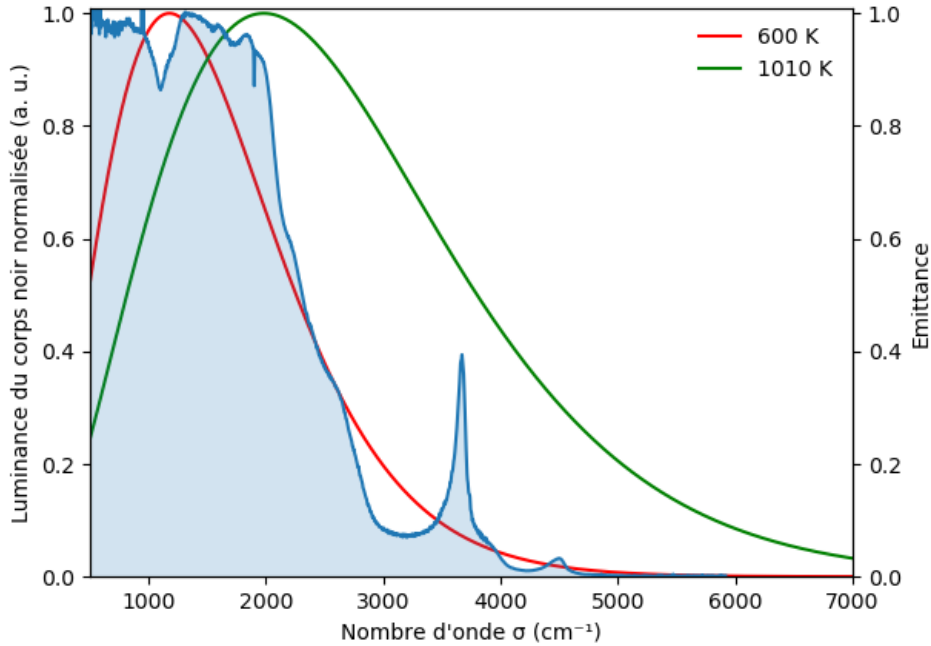


FIGURE 4.4 – Spectre d’émittance du SilPower[®] à 1010 K. La loi de Planck normalisée calculée à 1010 K montre qu’une part du transfert radiatif à cette température se déroule dans la plage de semi-transparence du matériau. Une température de 600 K représente un exemple de température limite théorique pour laquelle la quasi-totalité du transfert radiatif se déroule dans la gamme d’opacité du matériau ce qui explique la cohérence des conductivités radiatives calculées par deux modèles gris différents en §4.3.1. Cette comparaison d’un spectre d’émittance à 1010 K avec la loi de Planck calculée à 600 K est seulement théorique et qualitative, mais reste valable car il a été montré au Chapitre 3 que la largeur de la plage d’opacité du milieu évoluait peu avec la température.

Des calculs similaires à ceux qui viennent d’être présentés ont été réalisés avec un modèle à 8 bandes spectrales (tel que celui présenté en Fig. 4.2). La discrétisation du domaine spectral, plus fine, permet de prendre en compte la variation relativement importante de l’indice d’absorption due à la présence de groupes hydroxyles aux alentours de 3660 cm^{-1} . Néanmoins, pour les températures relativement faibles étudiées dans cette section, les apports d’une discrétisation plus fine du domaine spectral sur le calcul de la conductivité radiative effective sont négligeables. C’est pourquoi seuls les résultats obtenus par un modèle à deux bandes sont présentés.

4.3.3 Influence de la semi-transparence sur les performances d’isolation du SilPower[®]

Pour conforter les propos de la section précédente, une nouvelle expérience numérique est proposée. On considère de nouveau une tranche d’un volume tomographié de SilPower[®]. Un flux surfacique est imposé sur une des faces du volume et un échange convectif (avec un coefficient d’échange convectif $h = 5\text{ W.m}^{-2}\text{.K}^{-1}$) est appliqué sur la face opposée. Des conditions périodiques sont appliquées aux autres faces. La température initiale du matériau T_{ini} ainsi que la température

de l'environnement T_{env} sont fixées à 293 K. L'expérience numérique est réalisée dans *THERMIVOX* pour trois valeurs de flux surfacique différentes. Pour chacune de ces valeurs, le transfert couplé est résolu par un modèle gris puis par un modèle à deux bandes spectrales (Table 4.8).

Modèle (K)	Intervalle spectral (cm ⁻¹)	n_{σ}	k_{σ}	κ_{σ} (m ⁻¹)
Gris	-	1,44	10^{-2}	6830
Spectral	100-2000	1,54	10^{-2}	13823
	2000-7000	1,44	$1,49.10^{-5}$	55,94

TABLE 4.8 – Caractéristiques radiatives du SilPower[®] utilisées pour les modèles gris et à deux bandes spectrales.

Un flux incident de 1000 W.m⁻² conduit à une élévation équivalente de la température en face avant du matériau quelque soit le modèle radiatif utilisé (Table 4.9). Pour ce niveau de température, la quasi-totalité du transfert radiatif est théoriquement réalisée dans la gamme d'opacité du SilPower[®] (Fig. 4.5). C'est pourquoi aucune différence entre les deux modèles n'est observée. Pour des températures suffisamment faibles, on peut conclure que la simulation du transfert couplé conducto-radiatif dans un milieu semi-transparent par un modèle gris est alors adaptée.

Flux surfacique (W.m ⁻²)	Température en face avant (K)	
	Modèle gris	Modèle spectral
1000	493	493
4500	1193	906
6500	1594	931

TABLE 4.9 – Températures en face avant d'un échantillon numérique de SilPower[®] en fonction du flux incident, calculées avec des modèles gris et à 2 bandes spectrales.

Avec l'augmentation du flux incident (4500 et 6500 W.m⁻²), des différences importantes de température en face avant (jusqu'à plusieurs centaines de Kelvin) sont observées entre les deux modèles radiatifs. En effet, pour ces valeurs de flux, une part importante du transfert se déroule dans la gamme de semi-transparence du SilPower[®] (Fig. 4.5) et lors du calcul avec le modèle spectral, une quantité moindre d'énergie est absorbée par le matériau, d'où une élévation de température moins importante que pour le modèle gris.

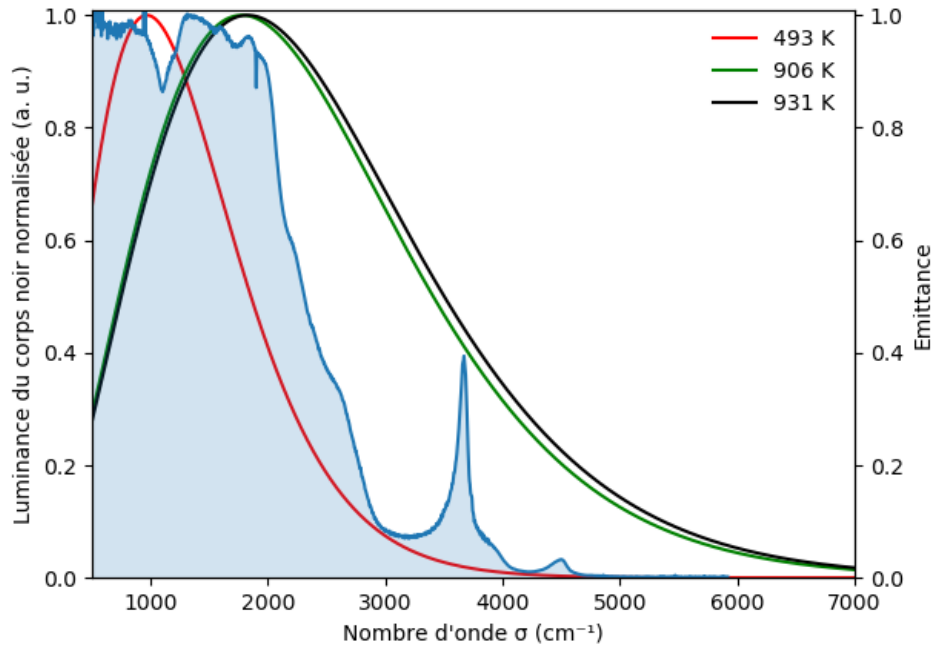


FIGURE 4.5 – Spectre d’émittance du SilPower® à 1010 K sur lequel est superposée la loi de Planck normalisée calculée à 493, 906 et 931 K. À 493 K, la quasi-totalité du transfert radiatif se déroule dans la plage d’opacité du matériau. Avec une augmentation en température, une part de plus en plus importante du transfert radiatif se déroule dans la plage de semi-transparence du SilPower®.

La faible différence de température en face avant entre des puissances de chauffe de 4500 et 6500 W.m^{-2} pour le modèle spectral par rapport au modèle gris est également cohérente. Déposer plus d’énergie n’augmentera pas la température en face avant puisqu’une part importante du transfert va se dérouler dans sa gamme de transparence, et ne sera pas absorbé par le matériau contrairement au modèle gris qui maintient une capacité d’absorption.

Ces expériences numériques montrent donc qu’un modèle gris n’est pas adapté à l’étude des milieux semi-transparents pour des température élevées puisque l’on surestime la quantité d’énergie radiative que l’isolant est capable d’absorber et donc sa capacité à protéger les systèmes en aval. L’évaluation des performances d’isolation de tels matériaux par une conductivité apparente est également discutable puisque cette grandeur ne permet pas de prendre en compte les contributions radiatives du transfert se déroulant dans la gamme de semi-transparence. Ces erreurs de simulation peuvent conduire à un mauvais dimensionnement des matériaux, qui ne rempliront pas leur rôle en régime de fonctionnement. Le comportement thermique du FOX imprégné en régime transitoire, qui est étudié dans la section suivante, en est d’ailleurs un exemple concret.

4.4 Modélisation des échanges couplés conduito-radiatifs de milieux poreux semi-transparents en régime transitoire

Cette section présente, au travers de l’étude du comportement thermique du FOX imprégné, le modèle couplé conduito-radiatif par bandes spectrales en régime transitoire qui a été implémenté dans *THERMIVOX* lors de ces travaux de thèse pour pouvoir prédire l’évolution temporelle du champ de température d’un matériau semi-transparent soumis à un flux thermique.

4.4.1 L'expérience *ECOTHERM*

L'expérience *ECOTHERM* a été développée au CEA pour évaluer les performances thermiques des matériaux développés sur le centre du Ripault. C'est une expérience en régime transitoire dont l'objectif est de suivre l'évolution temporelle de la température de la face arrière d'une plaque d'un matériau dont la face avant est soumise à un flux de chaleur continu. Il est ainsi possible de faire un tri entre les performances de plusieurs matériaux en comparant leur réponse à cette sollicitation. Dans un premier temps, le banc de mesure est décrit, puis un exemple de mesures réalisées sur le FOX imprégné d'aérogel de silice est présenté.

4.4.1.1 Description du banc expérimental

Le banc de mesure, présenté en Figure 4.7, est composé d'un décapeur industriel qui sert de source de chaleur par convection forcée. L'air sortant de l'appareil peut ainsi atteindre une température maximale de 800°C. L'échantillon (une plaque de matériau de 10 centimètres de côté et de 5 à 10 mm d'épaisseur) est positionnée dans une cale, au centre d'un empilement de plusieurs pièces (Fig. 4.6).

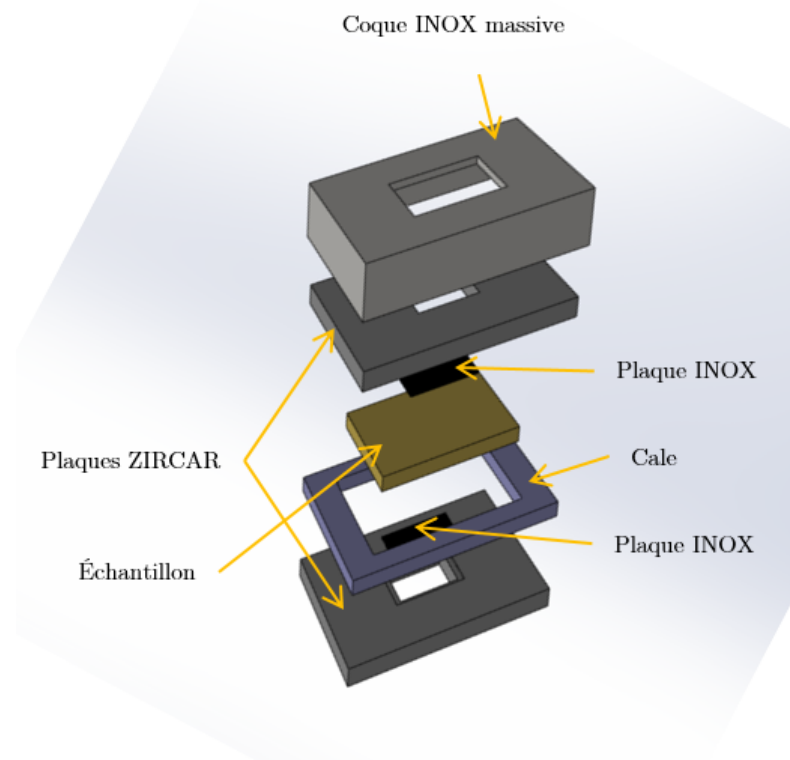


FIGURE 4.6 – Schéma éclaté de l'empilement de plaques contenant l'échantillon à étudier sur *ECOTHERM*.

Des plaques en inox de 5 cm de côté et de 1 mm d'épaisseur (en noir sur la Fig. 4.6) sont directement accolées au matériau. Deux plaques de garde en Zircar¹ prennent cet ensemble en tenaille et l'isolent de l'extérieur. Finalement, une coque en inox, massive, vient couvrir le système pour assurer le meilleur contact possible entre les éléments de cet assemblage et éviter l'apparition de résistances thermiques pouvant biaiser la réponse de l'isolant à la sollicitation de flux.

1. Zircar : céramique poreuse réfractaire en fibres de zircone, isolante à haute température

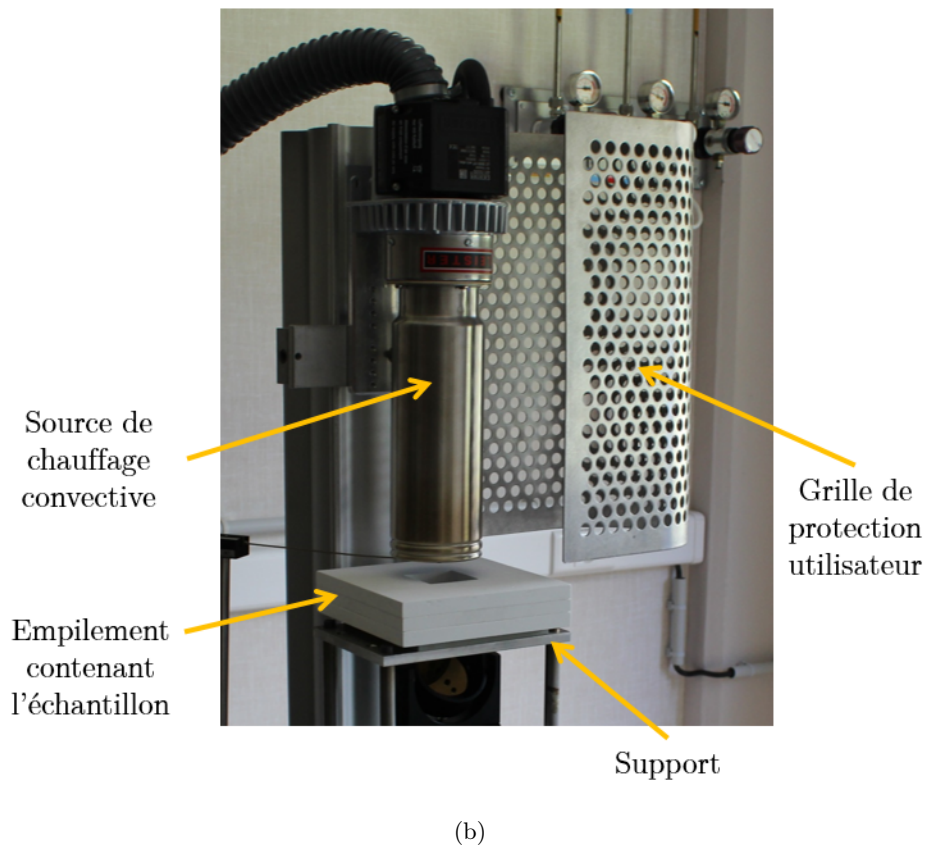
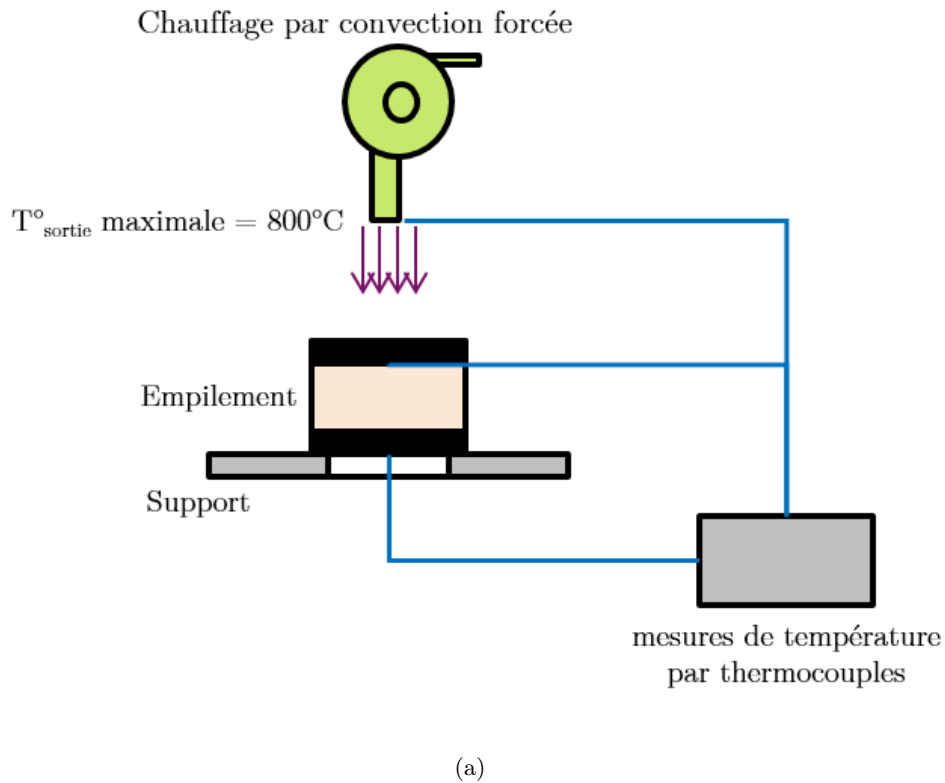


FIGURE 4.7 – (a) Schéma de l'expérience *ECOTHERM* (b) Photographie du banc expérimental *ECOTHERM*. La coque en inox qui recouvre normalement l'empilement de plaques n'est pas présente.

Le matériau étudié n'est donc pas directement chauffé par la source thermique. La plaque d'inox étant fine et très conductrice, sa température s'homogénéise rapidement et c'est l'énergie qu'elle absorbe qui est transmise par conduction et rayonnement à l'isolant. Pour contrôler la température, trois thermocouples sont utilisés. Un premier thermocouple, instrumenté sur le décapeur, permet de mesurer la température de l'air en sortie de celui-ci. Un deuxième thermocouple est placé entre la plaque d'inox supérieure et la face avant du matériau. Finalement un troisième thermocouple est placé au centre de la face arrière de la plaque d'inox inférieure. On mesure donc en réalité la température de la plaque plutôt que la température de la face arrière du matériau directement.

L'analyse des thermogrammes obtenus est réalisée en supposant des contacts parfaits entre les matériaux de l'empilement. Le contact étant assuré entre la plaque d'inox et le matériau grâce à la coque inox, on suppose qu'il n'y pas de pertes thermiques et que le flux sortant de l'échantillon est absorbé en totalité par la plaque.

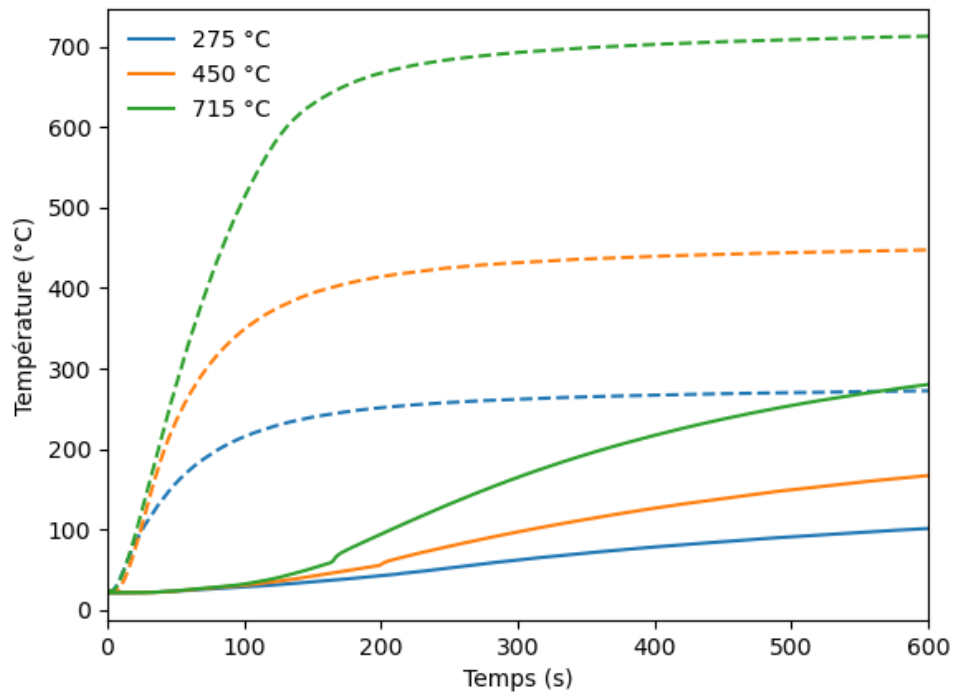
4.4.1.2 Thermogrammes expérimentaux du FOX imprégné

De premières expériences avec *ECOTHERM* ont été réalisées en 2018 sur des plaques de FOX imprégné. Ce sont les résultats de ces mesures, présentés ci-après, qui ont soulevés des interrogations sur l'influence de la nature semi-transparente des microconstituants de base des matériaux étudiés au CEA sur le transfert radiatif et qui ont abouti au besoin d'identifier leur caractéristiques radiatives spectrales et donc à l'élaboration de ce sujet de thèse.

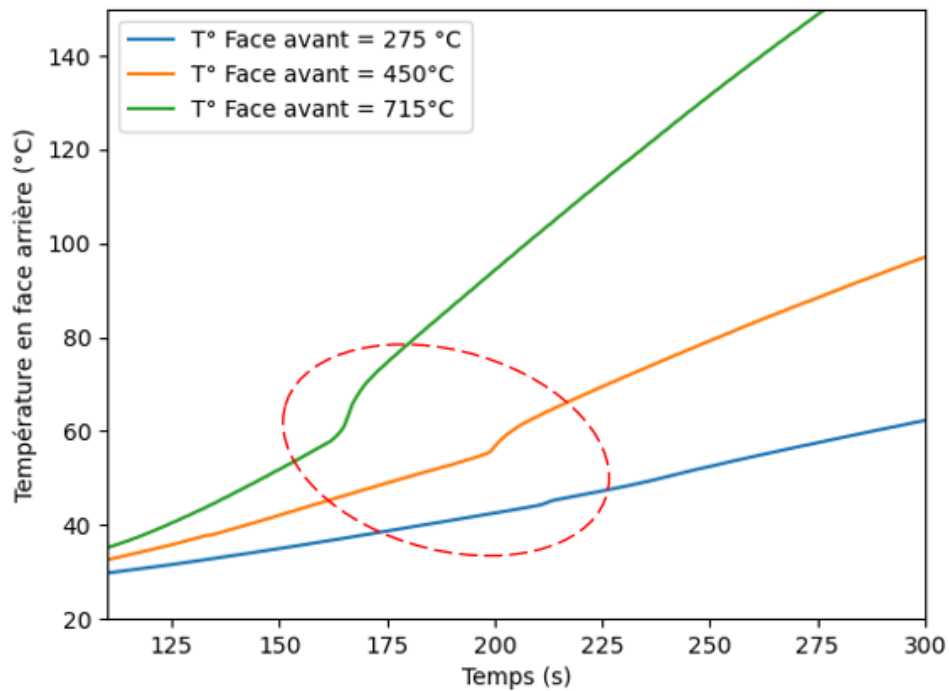
Les thermogrammes expérimentaux d'une plaque de FOX imprégné d'aérogel de silice de 1 cm d'épaisseur ont été obtenus pour trois régimes de température distincts (Fig. 4.8). Pour chaque mesure, la puissance de chauffe imposée permet d'atteindre la température cible en face avant en 200 s. Cette température est maintenue pendant 400 s supplémentaires. La température en face arrière de l'empilement est mesurée pendant toute la durée de l'expérience, soit 600 s.

Pour les trois mesures présentées en Figure 4.8a, une brusque élévation de la température en face arrière est observée entre 150 et 200 s en fonction de la température en face avant (Fig. 4.8b). Plus la température en face avant est importante, plus ce "saut" de température se produit tôt. Il est fait l'hypothèse que c'est la nature semi-transparente des phases du matériau (les fibres de FOX et l'aérogel) qui est la cause de ce phénomène. Ainsi, au début de l'expérience, la température en face avant de la plaque est relativement faible et le transfert radiatif dans le matériau se fait alors dans une gamme spectrale où les fibres de FOX et l'aérogel sont opaques. En d'autres termes, le rayonnement thermique est absorbé puis diffusé (par conduction) ou réémis dans le milieu. On retrouve alors un comportement similaire à celui rencontré lors du calcul de la conductivité apparente du SilPower[®] à basse température (§4.3.2). En revanche, lorsqu'une température suffisamment élevée est atteinte en face avant, les transferts radiatifs se déroulent alors en majorité sur une gamme spectrale où les deux phases sont semi-transparentes, voire transparentes. Une portion importante du rayonnement n'est alors plus absorbée par le matériau et atteint la plaque d'inox accolée à la face arrière du matériau où la mesure de température est réalisée, et une brusque élévation de la température est observée.

L'intégration des caractéristiques radiatives des deux phases composant le FOX imprégné dans un modèle couplé conducto-radiatif à bandes spectrales en régime transitoire doit ainsi permettre de valider l'hypothèse faite sur l'influence de la semi-transparence du matériau sur le comportement thermique observé expérimentalement.



(a)



(b)

FIGURE 4.8 – (a) Thermogrammes expérimentaux des faces avant (en pointillés) et arrière (traits continus) d'une plaque de FOX imprégné de 1 cm d'épaisseur pour trois températures de chauffe en face avant. (b) Thermogrammes expérimentaux en face arrière étudiés entre 110 et 300 s. Les "sauts" de température sont indiqués par la zone rouge pointillée.

4.4.2 Simulation du champ de température du FOX imprégné en régime transitoire

L'implémentation du modèle couplé conducto-radiatif en régime transitoire dans *THERMIVOX* permet de simuler l'expérience *ECOTHERM* et de calculer les champs de température d'une microstructure 3D en fonction du temps. Pour se faire, un flux surfacique est imposé comme condition limite sur la face avant du matériau et des pertes convectives et radiatives servent de conditions limites en face arrière. Finalement, des conditions limites périodiques sont imposées sur les faces restantes.

Les résultats présentés ci-après ont été obtenus à partir de simulations réalisées sur de petits volumes (100 voxels au cube) avec un pas de temps de 0,01 s pour des raisons de temps de calcul. L'objectif était, dans un premier temps, de valider qualitativement le modèle spectral en régime transitoire ainsi que les hypothèses faites à propos des phénomènes physiques provoquant les élévations brusques de températures observées expérimentalement sur le FOX imprégné. Des études sur des volumes plus importants, permettant une validation quantitative, n'ont pas pu être réalisées dans le temps imparti à ces travaux de thèse.

Bien qu'il ait été montré que l'indice d'absorption variait avec la température, cette dépendance n'a pas encore été introduite dans le modèle à bandes spectrales existant (encore une fois par manque de temps). Néanmoins, cette amélioration est envisagée pour les études plus quantitatives, car elle est relativement simple à implémenter et permettra d'affiner le calcul des échanges radiatifs, notamment sur les gammes spectrales où des variations importantes de l'indice d'absorption sont constatées (gamme de semi-transparence).

Les thermogrammes de la face arrière d'un volume de FOX imprégné (100 voxels de côté) ont été simulés par un modèle à deux bandes spectrales pour plusieurs puissances de chauffe. Le modèle spectral est composé d'une bande d'opacité (100-2000 cm^{-1}) et d'une bande de semi-transparence (2000-10000 cm^{-1}). Les caractéristiques radiatives de la bande de semi-transparence sont une moyenne des indices identifiés à 1328 K pour les fibres de FOX et à 1354K pour l'aérogel (Table 4.10). Les propriétés thermophysiques des fibres et de l'aérogel sont renseignées dans la Table 4.11. Les conditions limites des calculs sont identiques pour chacune des simulations exceptée la valeur du flux surfacique incident en face avant.

Phase	Intervalle spectral	n_σ	k_σ	$\kappa_{abs,\sigma}$
Fibres de FOX	100-2000 cm^{-1}	1,55	10^{-2}	$1,38.10^4$
	2000-10000 cm^{-1}	1,60	$5,49.10^{-6}$	15,95
Aérogel	100-2000 cm^{-1}	1,0	10^{-2}	$1,38.10^4$
	2000-10000 cm^{-1}	1,0	$1,94.10^{-5}$	15,95

TABLE 4.10 – Caractéristiques radiatives spectrales moyennes des fibres de FOX et de l'aérogel de silice sur les deux intervalles spectraux d'un modèle à bandes.

Propriétés	Fibres de FOX	Aérogel
Masse volumique (kg.m^{-3})	3800	200
Conductivité phonique ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	22	0,013
Capacité Calorifique massique ($\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	900	700

TABLE 4.11 – Propriétés thermophysiques des fibres de FOX et de l'aérogel utilisées pour les calculs transitoires dans *THERMIVOX*.

On observe ainsi, sur la Figure 4.9, des comportements similaires entre les thermogrammes aux premiers instants de la simulation, c'est à dire lorsque les températures sont suffisamment faibles pour que les échanges radiatifs se déroulent dans la bande d'opacité du FOX imprégné (Fig. 4.10). L'évolution de la température est alors relativement monotone.

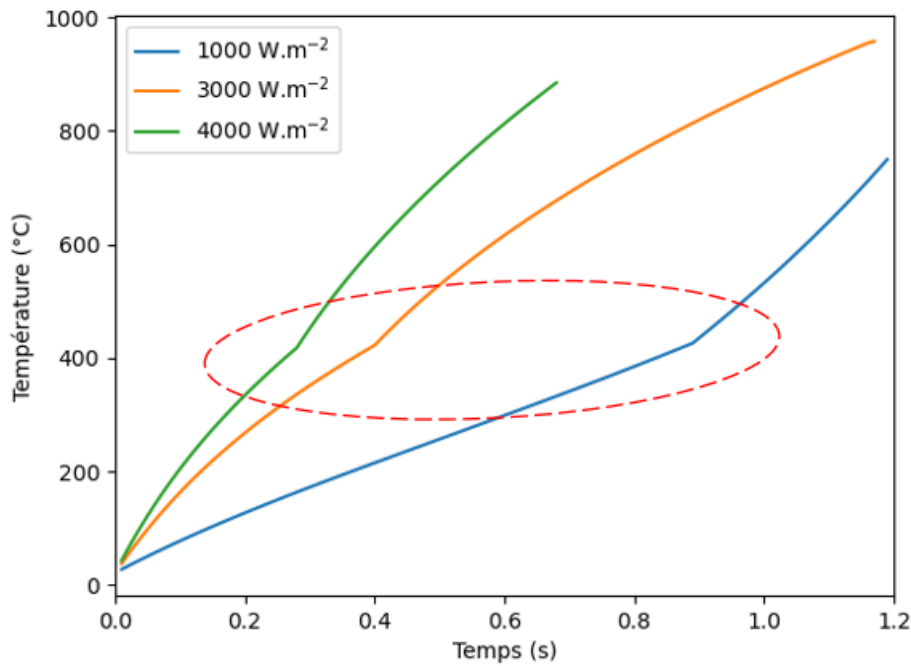


FIGURE 4.9 – Thermogrammes en face arrière d'un échantillon de FOX imprégné simulés pour plusieurs puissances de chauffe en face avant. La zone rouge pointillée situe les "sauts" de température.

Pour les trois puissances de chauffe, à partir d'une température critique d'environ 673 K en face avant, la température évolue selon une tendance différente et l'on retrouve finalement le comportement (les "sauts" de températures) observé sur les thermogrammes expérimentaux (Fig. 4.8b). On précise que pour des volumes aussi petits, la température en face avant est équivalente (à quelques Kelvin près) à celle de la face arrière à tout instant. Pour cette température, une part suffisamment importante du transfert radiatif se déroule dans la gamme de semi-transparence du matériau (Fig. 4.10). Une part du rayonnement absorbée par le matériau dans les premiers instants de l'échauffement transite alors directement au travers de celui-ci et provoque un échauffement sur la face arrière. Plus le flux imposé est important, plus la température de "saut" est atteinte rapidement, ce qui explique que les élévations brusques de température s'observent de plus en plus tôt avec une puissance de chauffe croissante. Ce comportement se retrouve sur les thermogrammes expérimentaux (Fig. 4.8b).

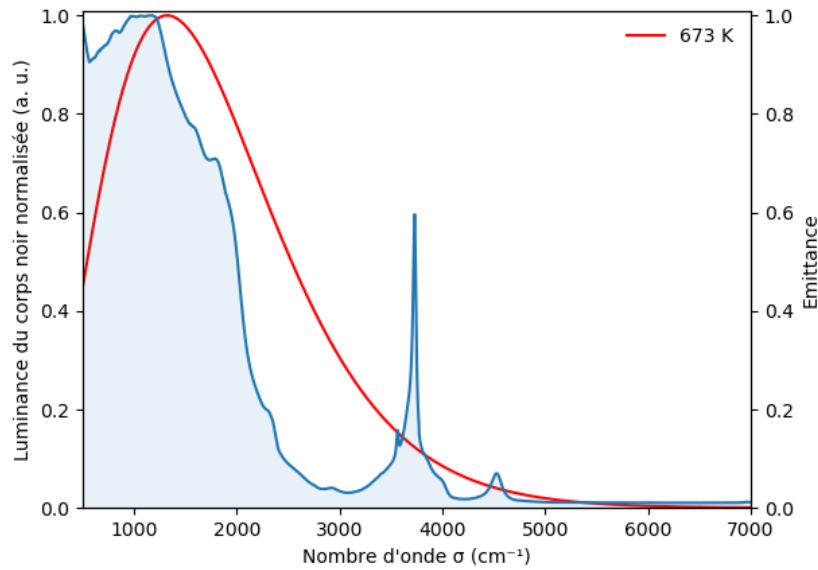


FIGURE 4.10 – Spectre d'émittance du FOX imprégné à 1354 K. La loi de Planck normalisée calculée à 673 K montre qu'à cette température, une part suffisamment importante du transfert radiatif se déroule dans la bande de semi-transparence du FOX imprégné.

Les échelles de température et de temps auxquelles les "sauts" de température se produisent ne sont quantitativement pas équivalents à ceux des thermogrammes expérimentaux à cause de la faible épaisseur du volume numérique (73 μm). Il n'est en effet pas possible, sur un si petit volume, de visualiser les effets d'inertie thermique. Néanmoins, ces résultats confirment l'importance de prendre en compte la dépendance spectrale du transfert radiatif ainsi que l'évolution des caractéristiques radiatives vis-à-vis de la fréquence du rayonnement dans le calcul du transfert couplé en régime transitoire puisqu'il est ainsi possible de simuler des comportements qui ne sont pas prédictibles par des modèles gris.

4.4.3 Comparaison des comportements thermiques du FOX pur et du FOX imprégné

Des mesures sur le FOX pur ont également été réalisées sur le banc de mesure *ECOTHERM* (Fig. 4.11). Bien que le même type de fibres semi-transparentes soit utilisé pour ce matériau et le FOX imprégné, les élévations brusques de température observées lors des mesures sur le FOX imprégné (Fig. 4.8b) ne sont pas reproduites sur les thermogrammes du FOX pur. On rappelle que la matrice fibreuse du FOX pur ainsi que du FOX imprégné représente environ 6% de la fraction volumique des matériaux. Il est donc probable que l'air présent dans le FOX pur ou l'aérogel du FOX imprégné aient une influence prépondérante sur le comportement radiatif des deux matériaux. Dans le cas du FOX pur, l'influence de la nature semi-transparente des fibres sur le transfert radiatif est négligeable puisqu'une partie majoritaire du rayonnement se propage dans l'air qui est transparent sur tout le domaine spectral étudié.

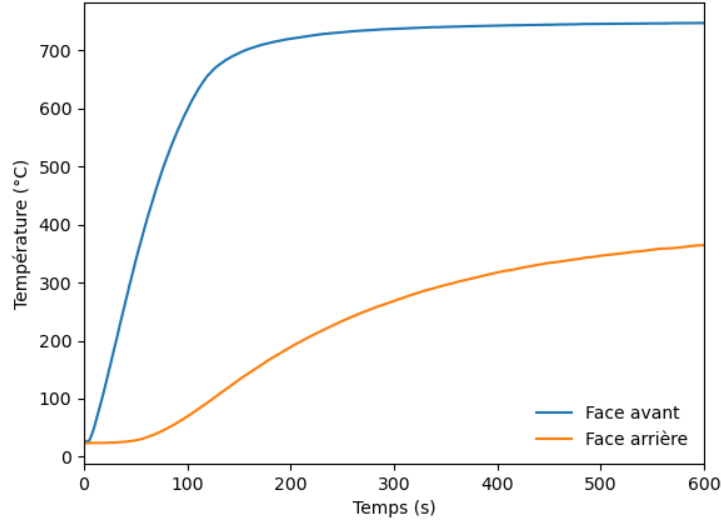


FIGURE 4.11 – Thermogrammes expérimentaux en face avant et arrière d’une plaque de FOX pur de 10 mm d’épaisseur obtenus sur le banc de mesure *ECOTHERM*.

Le thermogramme de la face arrière d’un échantillon de FOX pur a été simulé avec un modèle à deux bandes spectrales dans *THERMIVOX* (Fig. 4.12). Le volume numérique utilisé pour le calcul est identique à celui utilisé pour les simulations en §4.4.2, à ceci près que la phase poreuse qui était initialement de l’aérogel a été remplacé par de l’air (avec $n_\sigma = 1.0$ et $k_\sigma = 0.0$). Les propriétés thermophysiques et radiatives des fibres de FOX ainsi que les paramètres de calculs (pour une puissance de chauffe de 3000 W.m^{-2}) sont également identiques aux simulations précédentes.

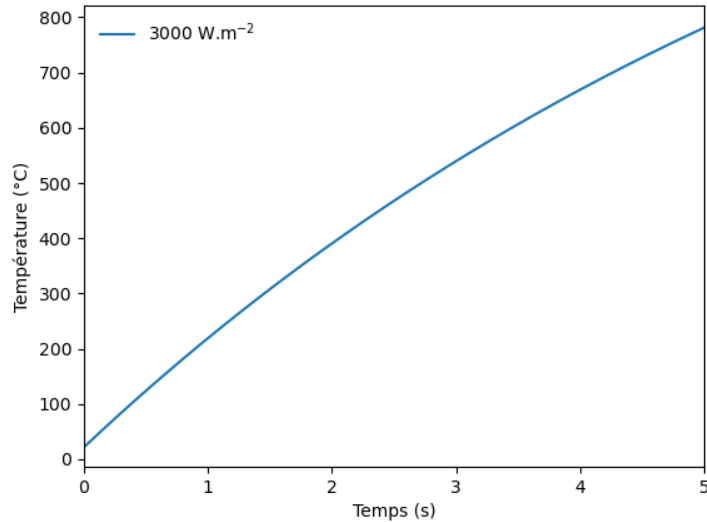


FIGURE 4.12 – Thermogramme simulé en face arrière d’un échantillon de FOX pur pour une puissance de chauffe de 3000 W.m^{-2} .

L'évolution de température sur la face arrière du volume est monotone sur toute la durée de l'expérience numérique, i. e. aucun "saut" de température ne se produit. Il est alors possible de conclure que c'est bien la présence de l'aérogel de silice qui est à l'origine des élévations brusques de température observées expérimentalement sur le FOX imprégné (Fig. 4.8b). La température simulée de l'échantillon du FOX pur (Fig. 4.12) augmente plus lentement que la température du FOX imprégné pour une même puissance de chauffe (Fig. 4.8b). Ce comportement est cohérent car le FOX pur est plus transparent que le FOX imprégné à cause de l'air qui remplace l'aérogel. Le flux radiatif que le volume de FOX pur peut absorber est plus faible, ce qui limite son échauffement. En d'autres termes, le FOX pur est moins performant d'un point de vue de l'isolation thermique, puisqu'une part importante du flux radiatif transite directement au travers du matériau.

Ce comportement se confirme par la comparaison des thermogrammes expérimentaux des échantillons de FOX pur et imprégné de même épaisseur (Fig. 4.8a et Fig. 4.11) puisque l'élévation de la température de la plaque d'inox en face arrière (4.6) est plus importante lors des mesures avec le FOX pur que pour les mesures avec le FOX imprégné. Le FOX pur protège donc moins efficacement la plaque d'inox en face arrière que le FOX imprégné.

Ces résultats ainsi que ceux obtenus en §4.4.2 montrent toute la pertinence de l'utilisation d'un modèle couplé conducto-radiatif à bandes spectrales en régime transitoire avec les caractéristiques radiatives adaptées, puisqu'il a ainsi été possible de valider les hypothèses concernant l'influence non-négligeable de la semi-transparence sur le comportement thermique des matériaux élaborés au CEA et destinés à des applications à haute température.

Conclusion du dernier chapitre

Ce chapitre a présenté un nouveau modèle à bandes spectrales implémenté dans le code de calcul du transfert couplé conducto-radiatif sur des microstructures 3D, *THERMIVOX*, pour deux types d'applications sur des milieux semi-transparents : le calcul d'une conductivité thermique apparente en régime stationnaire et la simulation au cours du temps du champ de température d'un volume soumis à un flux de chaleur. Ces deux expériences numériques ont permis de conclure quant à la pertinence de prendre en compte la dépendance spectrale du transfert radiatif dans la simulation.

En effet, la prise en compte de la dépendance spectrale du transfert radiatif par un modèle à bandes, alors plus représentatif de la physique des transferts, a montré que l'évaluation des performances thermiques (d'isolation) des milieux semi-transparents par une conductivité radiative effective était adaptée jusqu'à des températures modérées (environ 600 K pour le SilPower®) et même équivalente aux résultats proposés par un modèle gris puisque le transfert radiatif se déroule alors essentiellement dans la gamme d'opacité du matériau. En revanche, pour des températures élevées, une part importante du transfert radiatif se déroule dans la gamme de semi-transparence et transite ainsi directement au travers du matériau sans être absorbée et n'est alors pas prise en compte dans le calcul de conductivité radiative. Par conséquent, la conductivité apparente finalement estimée n'est pas représentative du comportement thermique réel du matériau.

L'hypothèse de l'influence de la dépendance spectrale du transfert radiatif sur le comportement thermique du matériau a été finalement confirmée par l'étude du FOX imprégné dont le comportement thermique expérimental a pu être expliqué par un modèle à bandes spectrales en régime transitoire, ce qui n'était pas possible avec un modèle gris. Cette simulation a également permis de conclure que la réponse spectrale de l'aérogel semi-transparent comblant les pores de la matrice de FOX était à l'origine de brusques élévations de températures lors de l'échauffement du matériau.

En plus du temps de calcul qui augmente fortement avec la taille du volume, les limites des modèles présentés dans ce chapitre sont essentiellement liées aux besoins importants en mémoire vive lorsque des simulations sont réalisées sur des volumes importants (pour s'assurer de la représentativité des milieux numériques utilisés). Il pourra donc être pertinent d'intégrer des modèles spectraux, dans d'autres techniques de couplage conducto-radiatif, notamment stochastiques, pour pallier cette difficulté et prédire pour un moindre coût le comportement thermique des matériaux et ainsi aiguiller les processus d'élaboration.

Conclusion générale

L'objectif principal de cette thèse était de proposer une solution numérique permettant d'affiner les prédictions de champ de température de matériaux microporeux semi-transparents destinés à la protection thermique de systèmes soumis à de puissants flux de chaleur. Ces travaux se sont basés sur un code de calcul du transfert couplé conducto-radiatif de microstructures 3D voxélisées développé au CEA : *THERMIVOX*.

Pour utiliser ce code de calcul, il a été nécessaire, dans un premier temps, d'identifier l'indice de réfraction complexe spectral des constituants des matériaux microporeux étudiés pour la résolution numérique du transfert radiatif. Une nouvelle méthodologie, combinant outils expérimentaux (microtomographie à rayons X, spectroscopie FTIR) et numériques (générateur d'objets, code MCRT et algorithme d'optimisation) a donc été mise en place pour identifier, à l'échelle des microconstituants, les indices de réfraction et d'absorption spectraux en fonction de la température.

La pertinence et les limites de cette méthodologie ainsi que des différents outils qui la composent, ont été évaluées au travers d'une première étude purement numérique. Il a ainsi été conclu qu'il était possible d'identifier un indice de réfraction complexe spectral avec une précision suffisante pour pouvoir simuler des propriétés radiatives équivalentes aux propriétés mesurées expérimentalement (à l'incertitude de mesure près) et donc de réaliser par la suite des calculs thermiques pertinents, en accord avec les attentes de cette thèse.

Grâce à la méthodologie ainsi développée, les indices de réfraction complexes spectraux intrinsèques de deux matériaux hétérogènes semi-transparents ont été identifiés de 300 à 1300 K. Le premier matériau, une matrice fibreuse de silice (monophasique) hétérogène, le SilPower[®], a permis d'éprouver les outils numériques développés (générateur d'objets, code MCRT et algorithme d'optimisation) lors de ces travaux, puisqu'il a été possible de générer des milieux numériques représentatifs incluant des hétérogénéités à différentes échelles et d'en extraire des indices optiques cohérents. La méthodologie a également été appliquée à un second matériau, cette fois multiphasique, le FOX imprégné, qui n'est autre qu'une matrice fibreuse d'alumino-silicates dont les pores sont remplis par un aérogel de silice. Il a ainsi été possible d'identifier les contributions radiatives de chacune des phases, i. e. leurs indices optiques respectifs.

La seconde partie de ces travaux a été dédiée à l'implémentation d'un modèle à bandes spectrales en régime stationnaire et transitoire dans le code de calcul du transfert couplé conducto-radiatif *THERMIVOX*. Les simulations en régime stationnaire ont ainsi permis le calcul de la conductivité thermique apparente du SilPower[®] en prenant en compte la dépendance spectrale du transfert radiatif. Ces simulations ont été réalisées avec les indices de réfraction complexes spectraux identifiés dans la première partie de ce travail.

Au travers du calcul de la conductivité thermique apparente du SilPower[®], il a été montré que la simulation du comportement thermique de milieux semi-transparents par des modèles gris était seulement adaptée pour de faibles températures (dans le cas du SilPower[®], jusqu'à environ 600

K). Pour des températures plus élevées, ces modèles surestiment systématiquement la capacité du matériau semi-transparent à absorber le rayonnement thermique. Des interrogations ont également été soulevées concernant la pertinence même d'évaluer les performances thermiques d'un milieu semi-transparent par un modèle de conductivité apparente, puisqu'il n'est pas possible de prendre en compte une part du transfert radiatif dans le calcul de la conductivité radiative malgré l'utilisation d'un modèle à bandes spectrales pourtant plus représentatif de la physique du transfert radiatif.

Finalement, le modèle à bandes spectrales a été implémenté en régime transitoire dans *THERMIVOX*. À partir des indices de réfraction complexes spectraux extraits par l'application de la méthodologie d'identification sur le FOX imprégné, l'évolution temporelle de la température d'un échantillon de ce matériau a été simulée. Il a ainsi été conclu que la nature semi-transparente de l'aérogel de silice était à l'origine d'élévations brusques de température observées expérimentalement sur ce matériau. La prise en compte de la dépendance spectrale du transfert radiatif est donc tout à fait pertinente, puisqu'elle permet de simuler des phénomènes complexes que des modèles gris classiques ne sont pas en mesure de prédire. Il s'agira néanmoins, à très court terme, de réaliser les études sur des volumes suffisamment importants et d'inclure la dépendance des caractéristiques radiatives à la température dans les calculs pour acquérir des résultats quantitatifs comparables aux mesures.

Ces derniers résultats concernant la simulation du comportement thermique du FOX imprégné en régime transitoire répondent à la problématique principale de ces travaux de thèse et en sont par conséquent la conclusion. Au delà de l'apport scientifique de ces travaux à une meilleure compréhension des phénomènes radiatifs complexes qui se déroulent au sein de milieux semi-transparentes et à haute température, des outils ont été développés (ou améliorés) dans une optique de conception de nouveaux matériaux à propriétés ciblées.

La connaissance des indices optiques intrinsèques de différents types de microconstituants via l'application de la méthodologie d'identification permettra ainsi d'orienter le choix des composants lors de la conception de nouveaux matériaux. Grâce à l'utilisation de ces indices intrinsèques, du générateur d'objets et du code MCRT, une multitude de microstructures pourront être générées en prenant en compte les difficultés ou contraintes rencontrées lors de l'élaboration, et ce pour un moindre coût. De cette façon, il sera possible de concevoir des matériaux physiquement réalisables et dont les propriétés thermiques répondent le plus possible aux besoins. Cette approche offrira également la possibilité d'identifier l'indice de réfraction complexe spectral de microconstituants inclus dans une phase solide dont les caractéristiques sont déjà connues. Une application de la méthodologie mise en place sur une matrice fibreuse chargée en aérogel et en opacifiants est d'ailleurs prévue à court terme.

Annexe A

Distributions de paramètres géométriques de fibres

Cette annexe regroupe les distributions des propriétés géométriques des fibres (diamètre, longueur, orientations) identifiées après traitement d'images de microtomographie à rayons X obtenues sur deux matériaux : le SilPower[®] et le FOX pur.

A.1 Distributions des fibres micrométriques de SilPower[®]

Les distributions des propriétés géométriques des fibres du SilPower[®] ont été extraites à partir de quatre volumes tomographiés de 1000 voxels au cube, deux à une taille de voxel de 0,360 μm et deux à une taille de 0,730 μm . Les distributions de diamètres extraites aux deux différentes échelles mettent en avant l'hétérogénéité importante du matériau puisque celles-ci varient d'une échelle à l'autre. La moyenne des paramètres des distributions extraites des volumes étudiés à une taille de voxel de 0,730 μm est retenue pour la génération d'un milieu numérique puisqu'un nombre plus important de fibre est observé. En revanche, les distributions de longueurs et d'orientations de fibres sont relativement constantes d'un volume à l'autre et il est conclu que ces distributions sont représentatives du matériaux. Les paramètres de ces lois de distributions injectés dans le générateur d'objets sont une moyenne des résultats des quatre volumes.

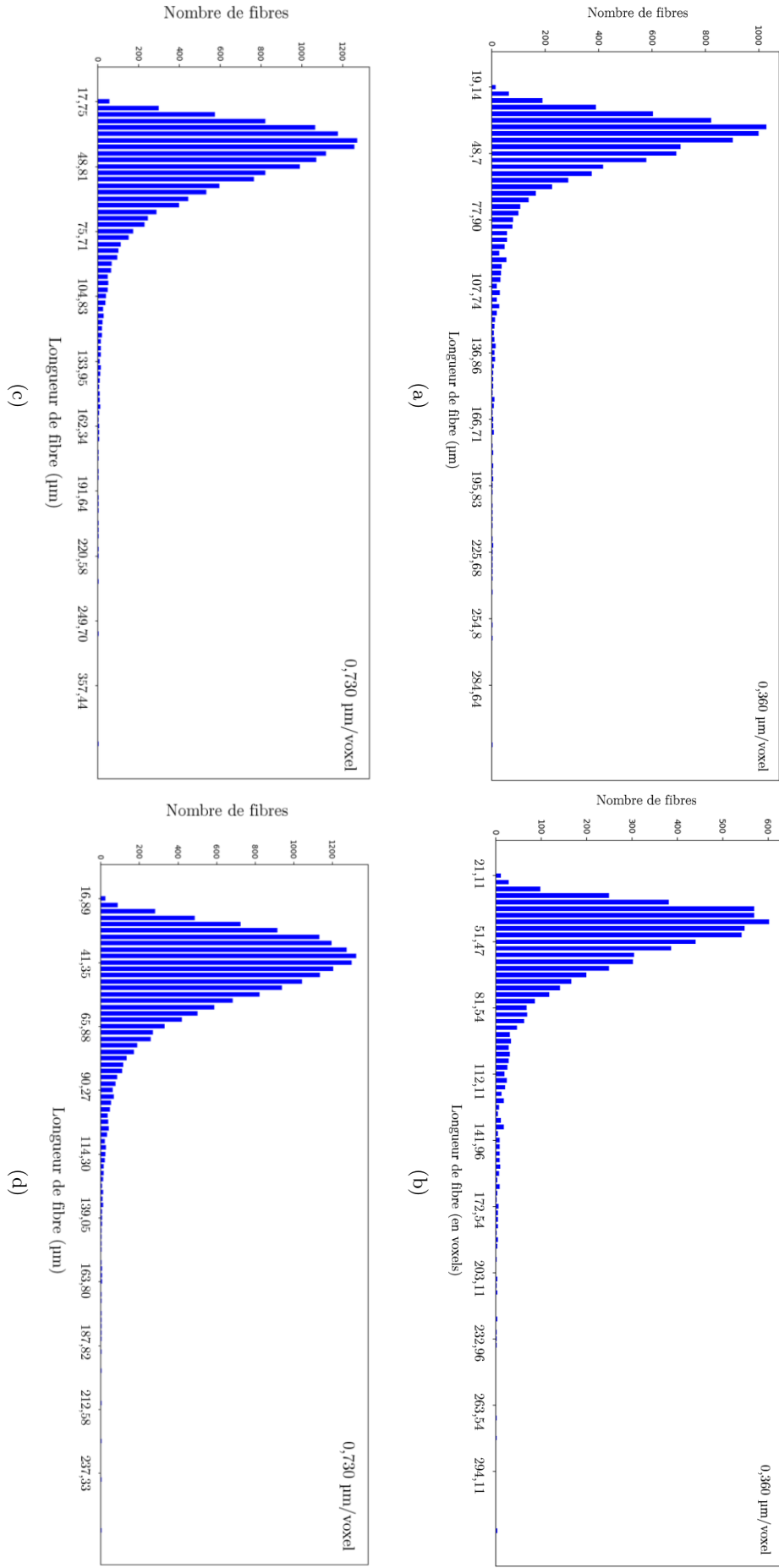


FIGURE A.1 – (a) Distribution de longueur de fibres de SilPower® d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 µm, (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 µm, (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 µm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 µm.

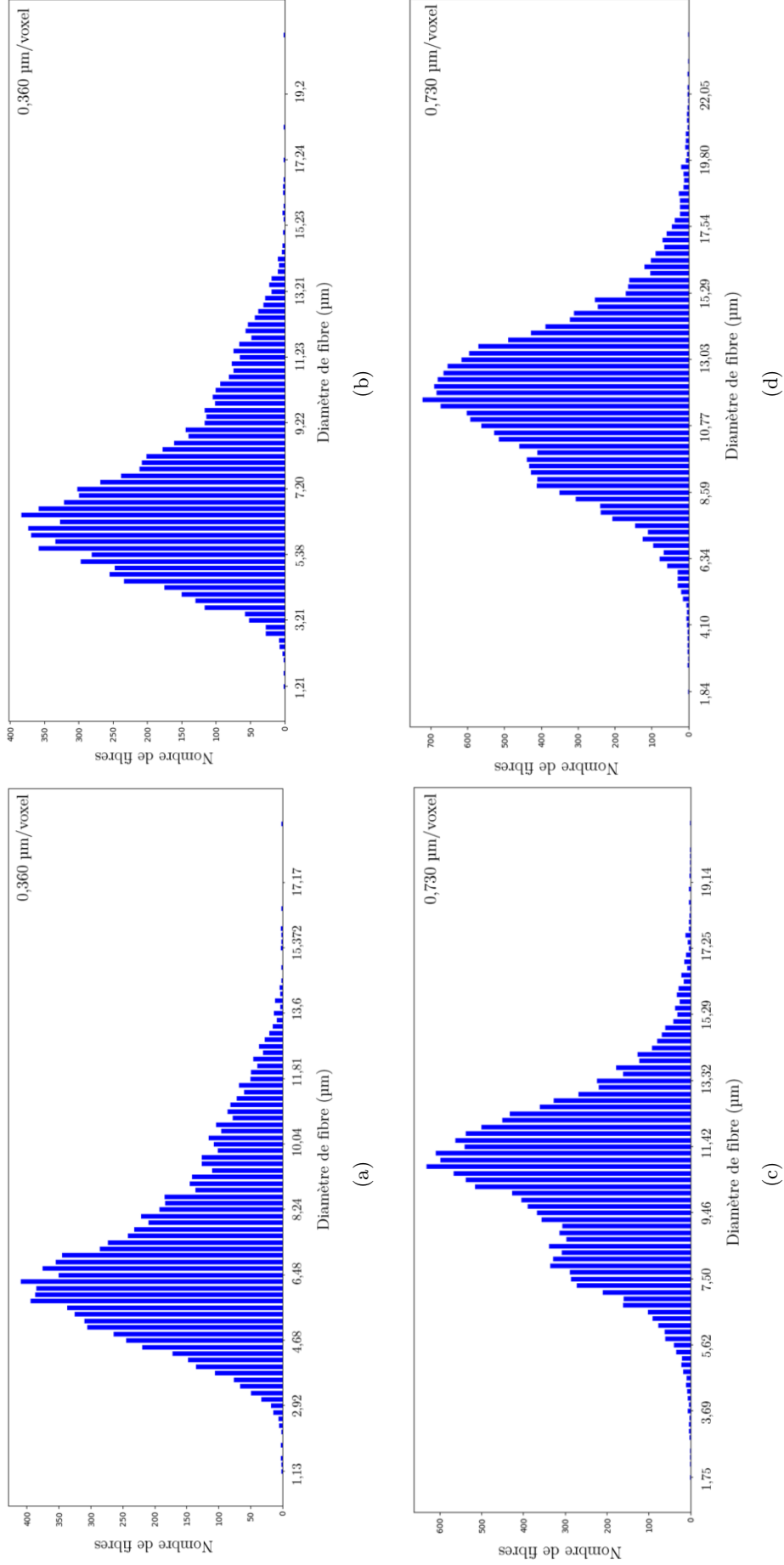


FIGURE A.2 – (a) Distribution de diamètre de fibres de SilPower® d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 µm, (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 µm, (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 µm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 µm.

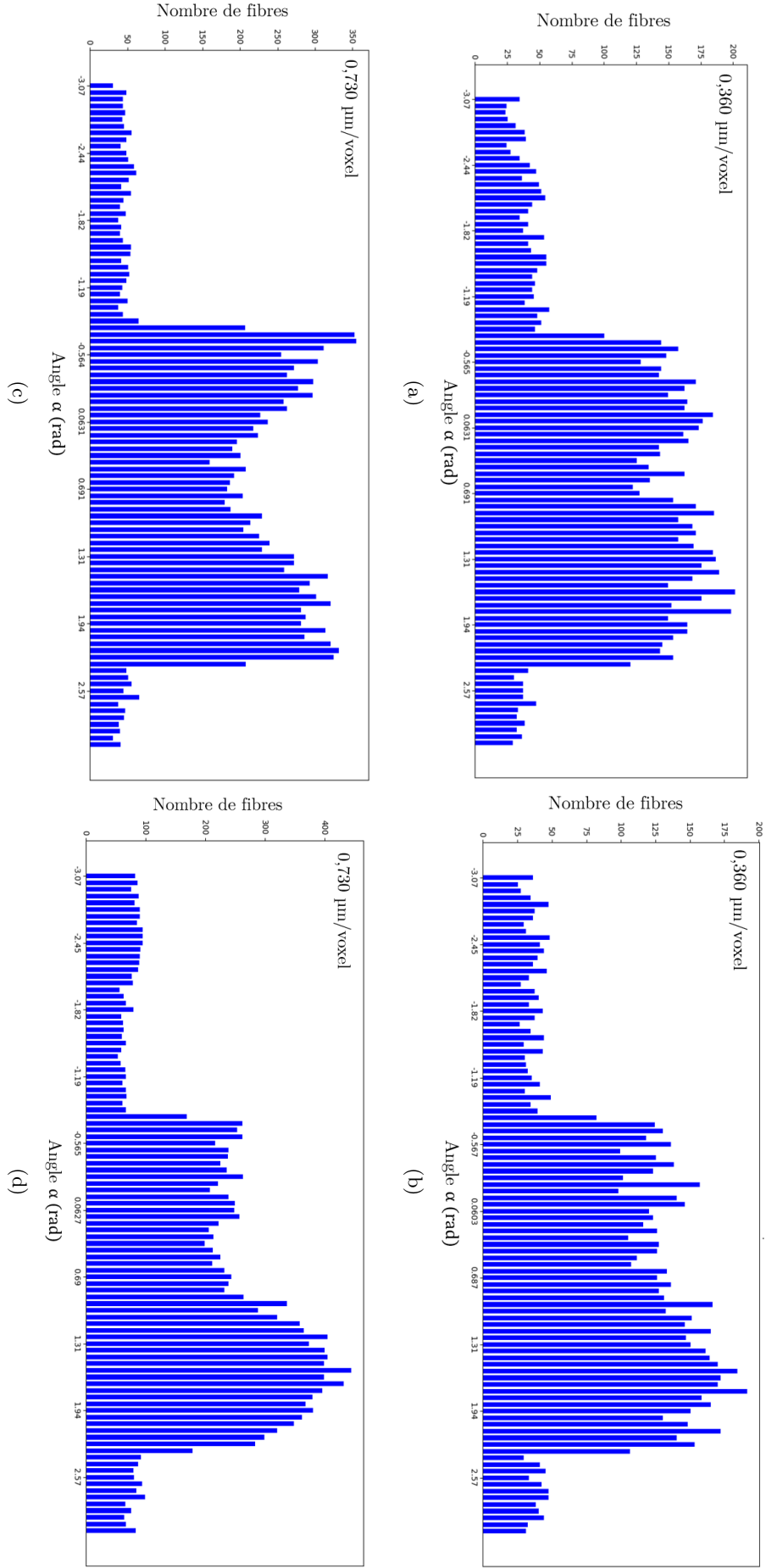


FIGURE A.3 – (a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler α de fibres de SilPower[®] d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm .

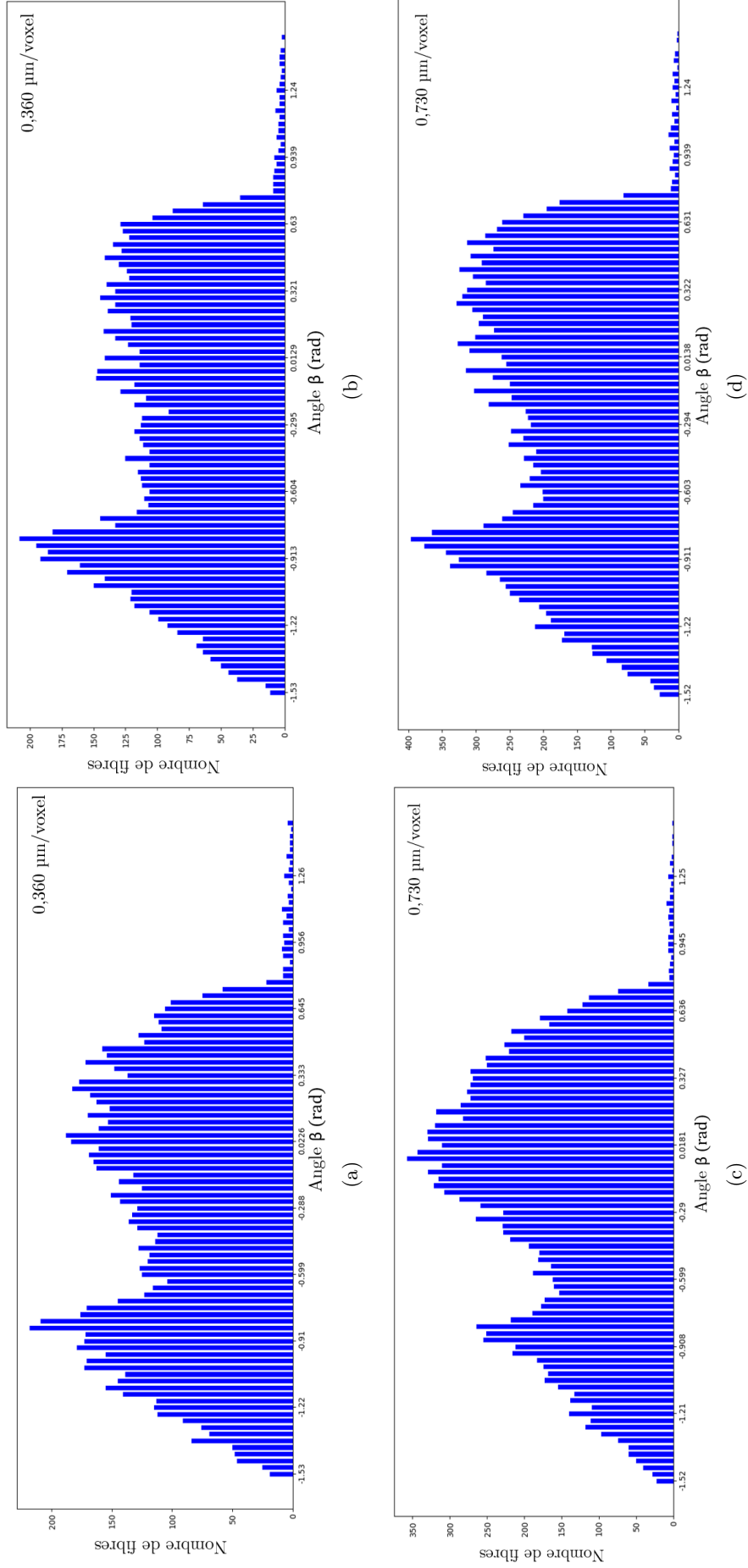


FIGURE A.4 – (a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler β de fibres de SilPower® d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm .

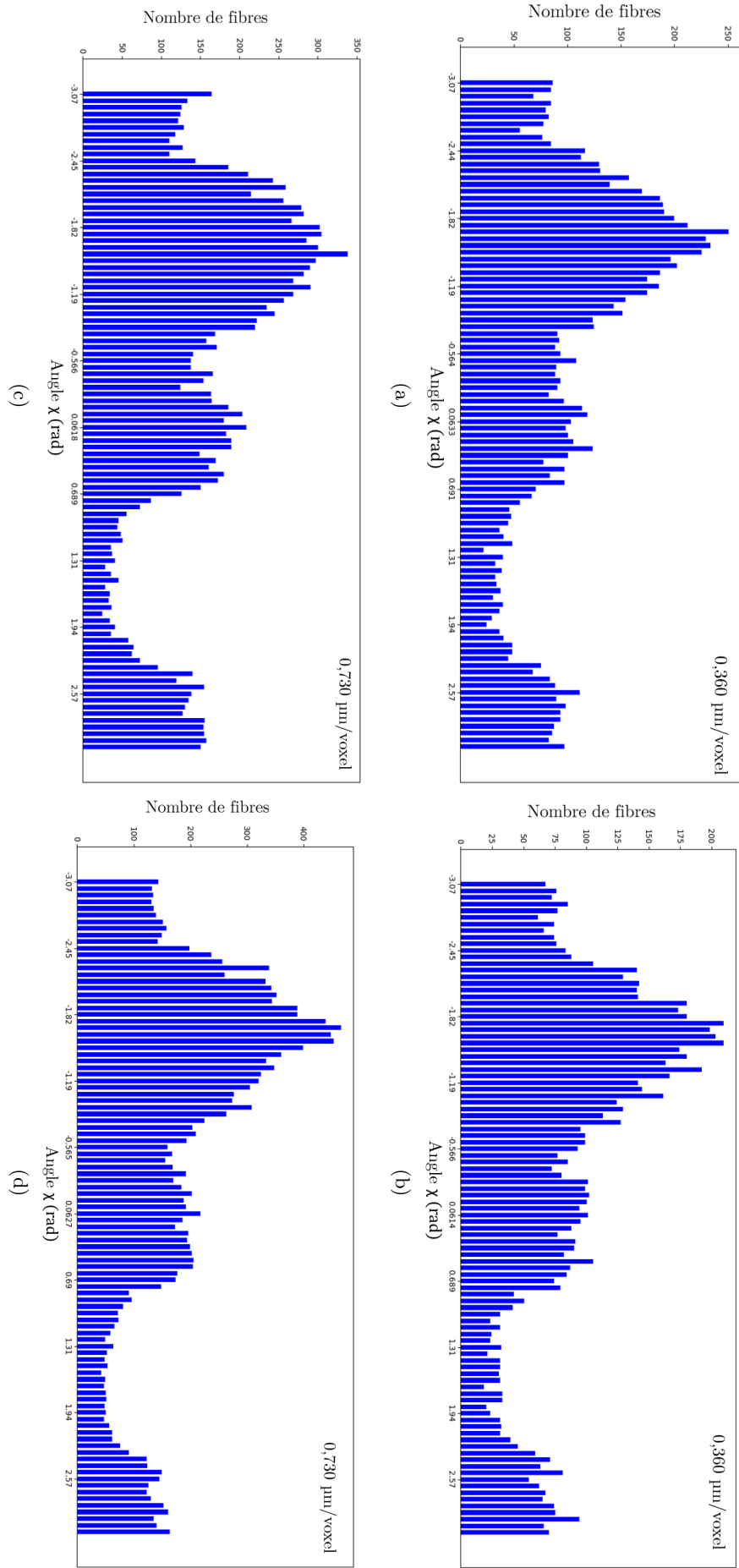


FIGURE A.5 – (a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler χ de fibres de SilPower[®] d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm .

A.2 Distributions des fibres micrométriques de FOX

Les distributions de propriétés géométriques des fibres de FOX présentées ci-après ont également été extraites de quatre volumes : deux pour des tailles de voxel de 0,360 μm et deux pour 0,730 μm . Chacun de ces volumes est un cube de 1000 voxels de côté. Les distributions extraites avec ces deux résolutions sont similaires d'un volume à l'autre. Il est donc fait l'hypothèse que ces distributions sont représentatives du matériau dans son ensemble. Les lois statistiques déduites de ces distributions sont une moyenne des résultats obtenus sur les quatre volumes tomographiés.

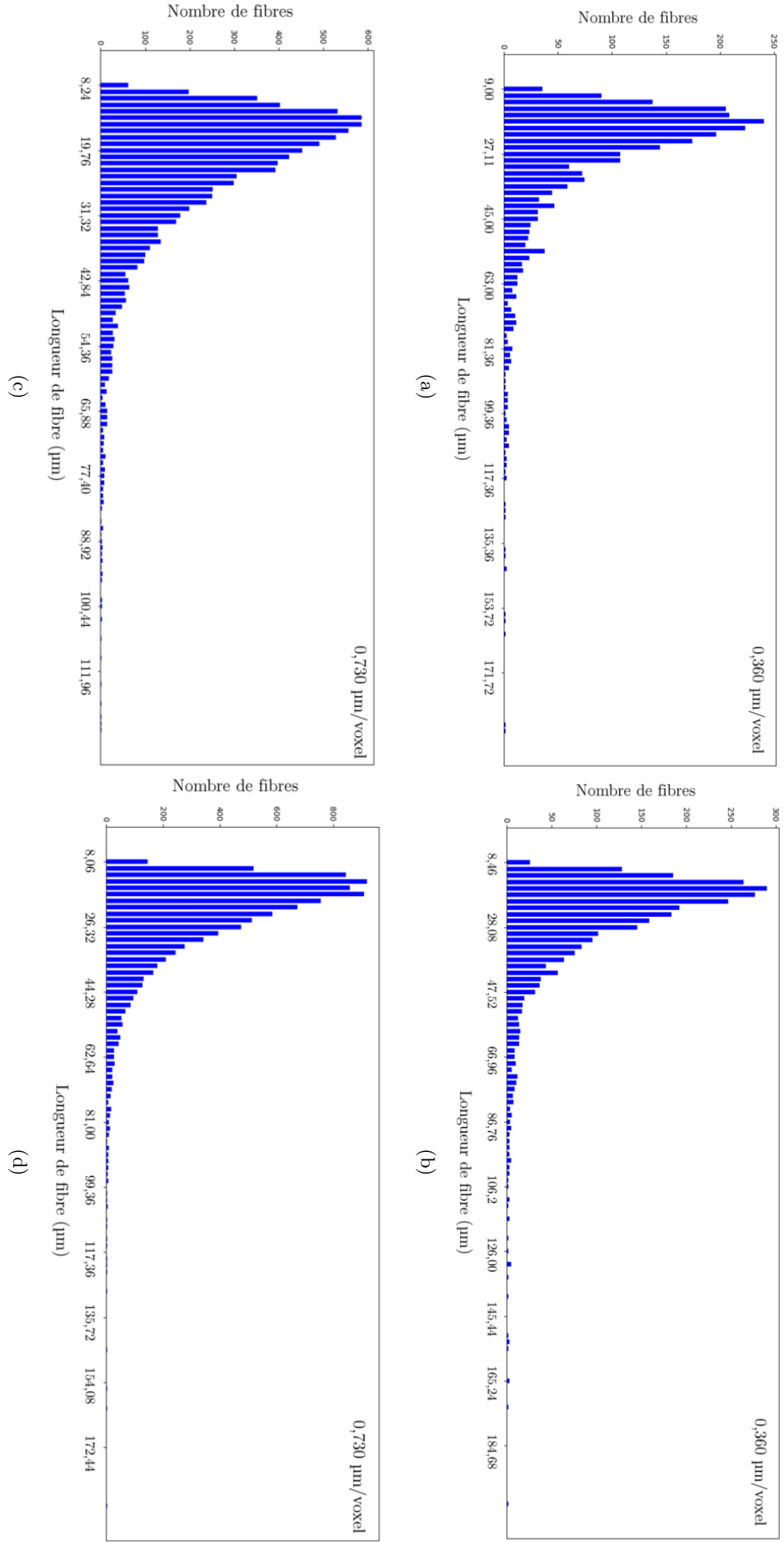


FIGURE A.6 – (a) Distribution de longueur de fibres de FOX d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de $0,360 \mu\text{m}$, (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de $0,360 \mu\text{m}$, (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de $0,730 \mu\text{m}$ et (d) V4 étudié à une taille de voxel de $0,730 \mu\text{m}$.

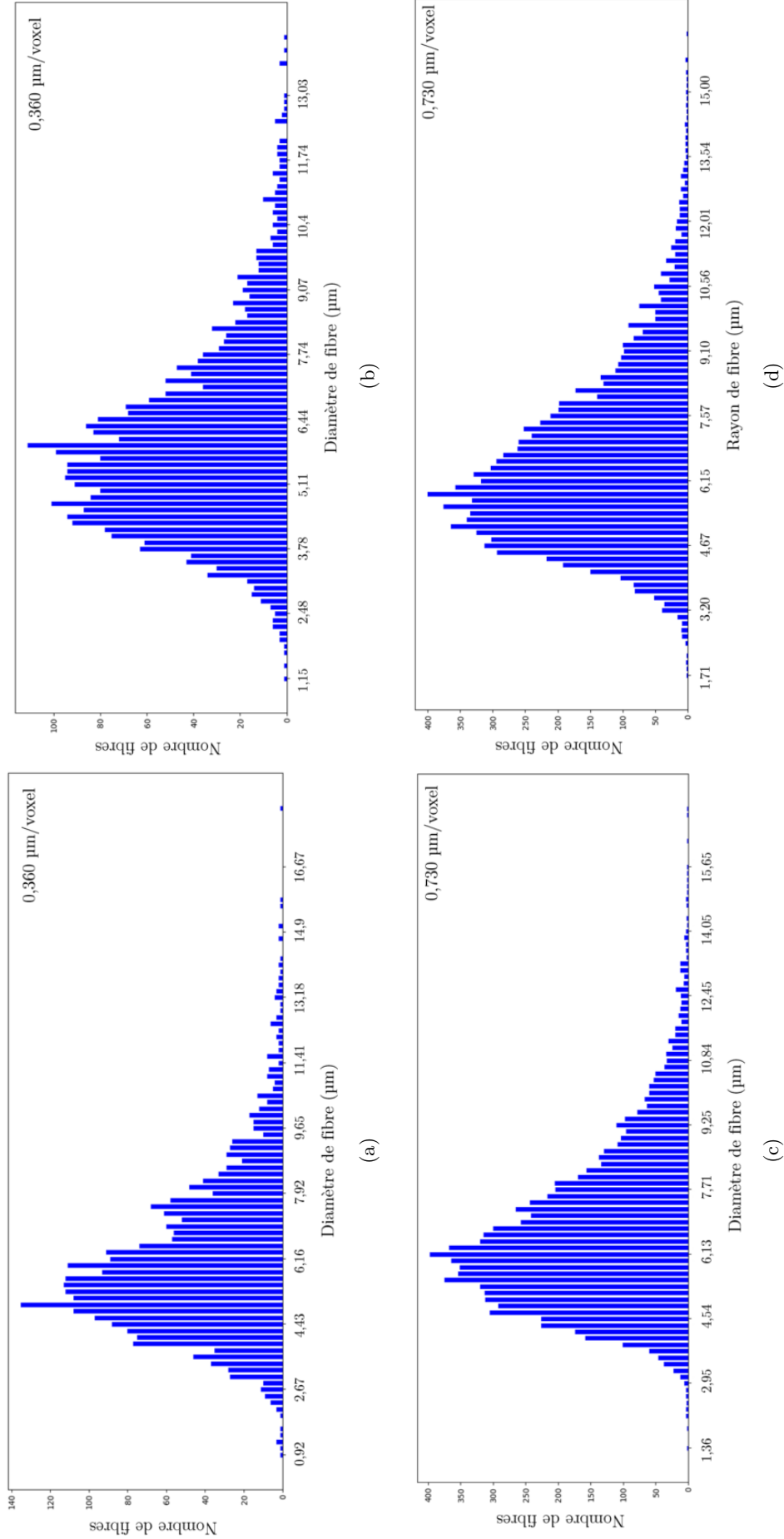


FIGURE A.7 – (a) Distribution de diamètre de fibres de FOX d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 µm, (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 µm, (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 µm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 µm.

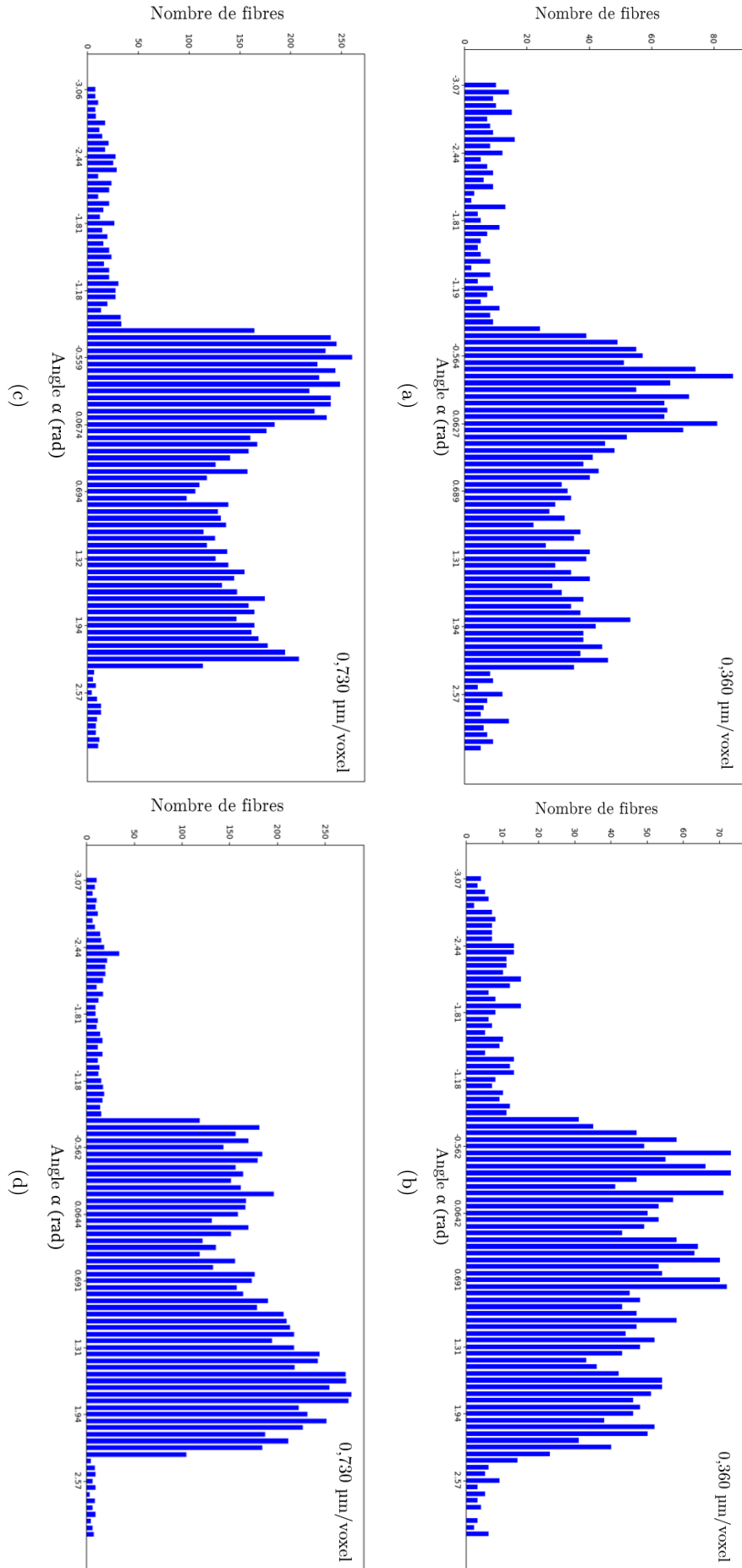


FIGURE A.8 – (a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler α de fibres de FOX d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm .

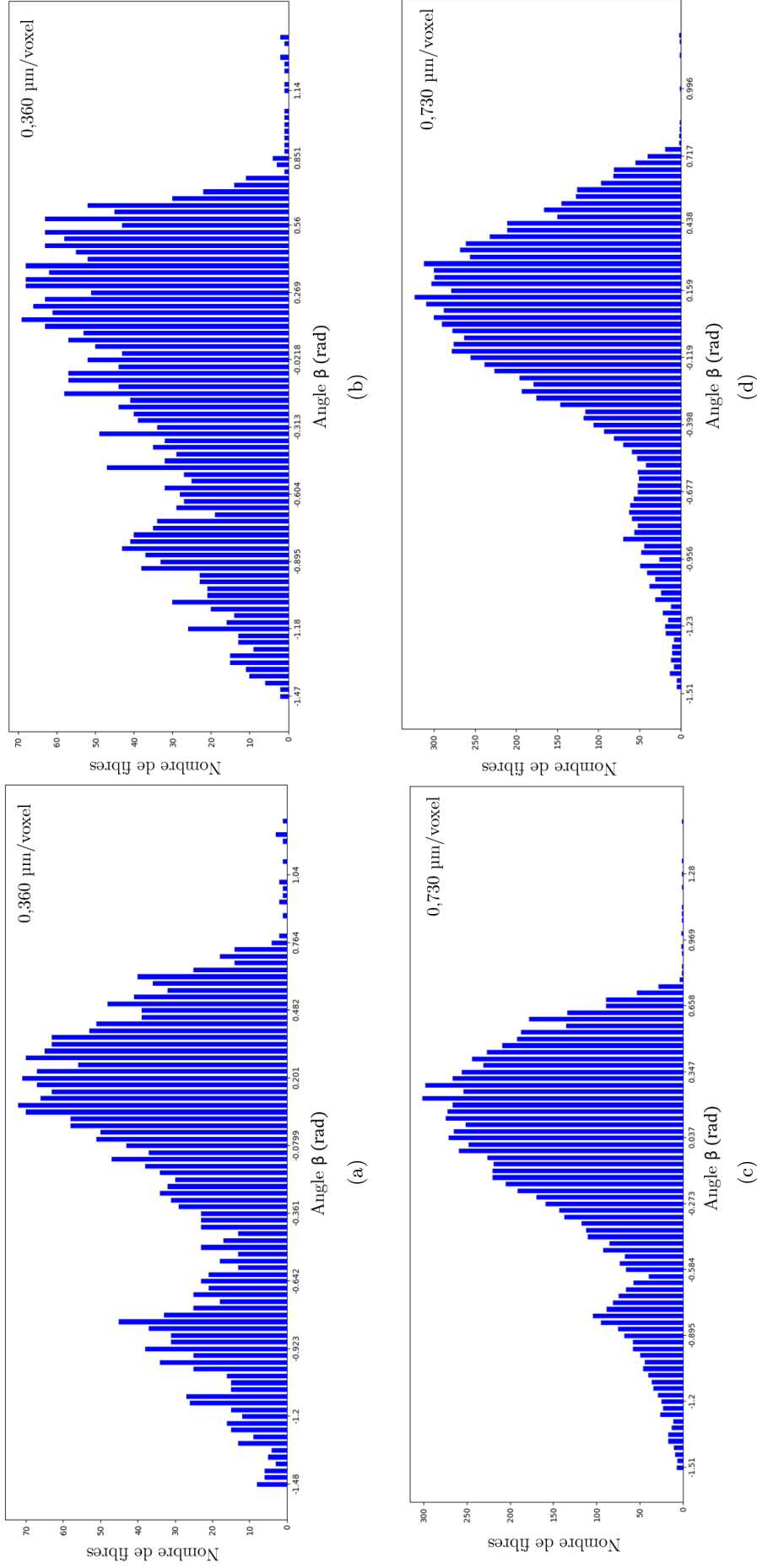


FIGURE A.9 – (a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler β de fibres de FOX d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm .

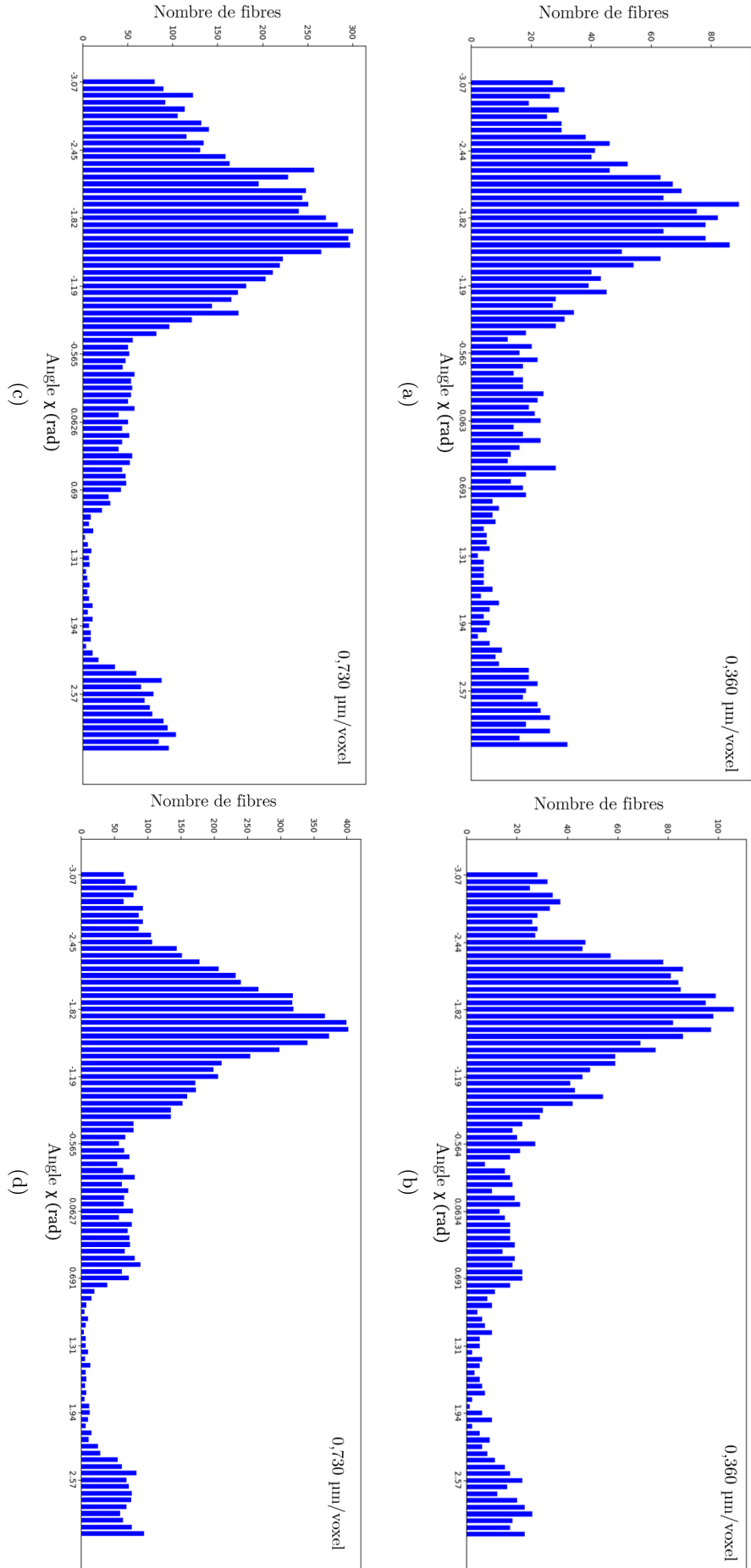


FIGURE A.10 – (a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler χ de fibres de FOX d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm .

Annexe B

Intégration de la loi de Planck sur une bande spectrale

Soit la loi de Planck définie par :

$$L^o(\sigma, T) = \frac{2hc^2\sigma^3}{e^{\frac{hc\sigma}{k_B T}} - 1} \quad (\text{B.1})$$

L'intégration sur l'intervalle $[\sigma_1, +\infty]$ se fait par changement de variable, soit $x = \frac{hc\sigma}{k_B T}$ et $dx = \frac{hc}{k_B T} d\sigma$

$$\int_{\sigma_1}^{+\infty} L^o(\sigma, T) d\sigma = \int_{x_1}^{+\infty} L^o(x, T) dx \quad (\text{B.2})$$

$$\int_{x_1}^{+\infty} L^o(x, T) dx = \int_{x_1}^{+\infty} 2hc \left(\frac{k_B T}{hc} \right)^3 \frac{x^3}{e^x - 1} \left(\frac{k_B T}{hc} \right) dx = \frac{2k_B^4 T^4}{h^3 c^2} \int_{x_1}^{+\infty} \frac{x^3}{e^x - 1} dx \quad (\text{B.3})$$

or :

$$\frac{1}{e^x - 1} = \frac{e^{-x}}{1 - e^{-x}} = \sum_{n=1}^{+\infty} e^{-nx} \quad (\text{B.4})$$

ce qui permet d'écrire que :

$$\int_{x_1}^{+\infty} L^o(x, T) dx = \underbrace{\frac{2k_B^4 T^4}{h^3 c^2}}_{C_1} \underbrace{\sum_{n=1}^{+\infty} \int_{x_1}^{+\infty} x^3 e^{-nx} dx}_I \quad (\text{B.5})$$

L'intégrale I se calcule par une triple intégration par parties :

$$I = \sum_{n=1}^{+\infty} \left[\frac{-x^3}{n} e^{-nx} \right]_{x_1}^{+\infty} - \int_{x_1}^{+\infty} -\frac{3x^2}{n} e^{-nx} dx = \sum_{n=1}^{+\infty} \left(\underbrace{\frac{x_1^3}{n} e^{-nx_1}}_{C_2} + \int_{x_1}^{+\infty} \frac{3x^2}{n} e^{-nx} dx \right) \quad (\text{B.6})$$

$$I = \sum_{n=1}^{+\infty} \left(C_2 + \left[\frac{-3x^2}{n^2} e^{-nx} \right]_{x_1}^{+\infty} - \int_{x_1}^{+\infty} -\frac{6x}{n^2} e^{-nx} dx \right) = \sum_{n=1}^{+\infty} \left(C_2 + \underbrace{\frac{3x_1^2}{n^2} e^{-nx_1}}_{C_3} + \int_{x_1}^{+\infty} \frac{-6x}{n^2} e^{-nx} dx \right) \quad (\text{B.7})$$

$$I = \sum_{n=1}^{+\infty} \left(C_2 + C_3 + \underbrace{\frac{6x_1}{n^3} e^{-nx_1}}_{C_4} + \int_{x_1}^{+\infty} \frac{6}{n^3} e^{-nx} dx \right) \quad (\text{B.8})$$

$$I = \sum_{n=1}^{+\infty} \left(C_2 + C_3 + C_4 + \frac{6}{n^4} e^{-nx_1} \right) \quad (\text{B.9})$$

De cette façon :

$$\int_{x_1}^{+\infty} L^o(x, T) dx = \frac{2k_B^4 T^4}{h^3 c^2} \sum_{n=1}^{+\infty} \left(e^{-nx_1} \left(\frac{x_1^3}{n} + \frac{3x_1^2}{n^2} + \frac{6x_1}{n^3} + \frac{6}{n^4} \right) \right) \quad (\text{B.10})$$

Dans le cas où $\sigma_1 < \sigma_2$, l'intégration sur une bande spectrale revient donc à :

$$\int_{\sigma_1}^{\sigma_2} L^o(\sigma, T) d\sigma = \int_{\sigma_1}^{+\infty} L^o(\sigma, T) d\sigma - \int_{\sigma_2}^{+\infty} L^o(\sigma, T) d\sigma \quad (\text{B.11})$$

Finalement :

$$\int_{x_1}^{x_2} L^o(x, T) dx = \frac{2k_B^4 T^4}{h^3 c^2} \sum_{n=1}^{+\infty} \left(e^{-nx_1} \left(\frac{x_1^3}{n} + \frac{3x_1^2}{n^2} + \frac{6x_1}{n^3} + \frac{6}{n^4} \right) - e^{-nx_2} \left(\frac{x_2^3}{n} + \frac{3x_2^2}{n^2} + \frac{6x_2}{n^3} + \frac{6}{n^4} \right) \right) \quad (\text{B.12})$$

La loi de Stefan-Boltzmann définit le pouvoir émissif par $M^o = \pi L^o = \sigma_{SB} T^4$:

$$\sigma_{SB, m} = \pi \frac{2k_B^4}{h^3 c^2} \sum_{n=1}^{+\infty} \left(e^{-nx_1} \left(\frac{x_1^3}{n} + \frac{3x_1^2}{n^2} + \frac{6x_1}{n^3} + \frac{6}{n^4} \right) - e^{-nx_2} \left(\frac{x_2^3}{n} + \frac{3x_2^2}{n^2} + \frac{6x_2}{n^3} + \frac{6}{n^4} \right) \right) \quad (\text{B.13})$$

Dans le cas d'une intégration sur le domaine $[0, +\infty]$, l'équation B.12 est alors égale :

$$\int_0^{\infty} L^o(x, T) dx = \frac{2k_B^4 T^4}{h^3 c^2} \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{6}{n^4} = 12 \frac{k_B^4 T^4}{h^3 c^2} \zeta(4) = 2 \frac{k_B^4 T^4}{h^3 c^2} \frac{\pi^4}{15} \quad (\text{B.14})$$

$$M^o = \sigma_{SB} T^4 = 2 \frac{k_B^4 T^4}{h^3 c^2} \frac{\pi^5}{15} \quad (\text{B.15})$$

Note : $\zeta(2k)$ est la fonction de Riemann.

$$\sum_{n=1}^{+\infty} n^{-4} = \zeta(4) \approx \frac{\pi^4}{90} \quad (\text{B.16})$$

On retrouve ainsi la valeur de la constante de Stefan-Boltzmann σ_{SB} :

$$\sigma_{SB} = 2 \frac{k_B^4}{h^3 c^2} \frac{\pi^5}{15} = 5,67037.10^{-8} W.m^{-2}.K^{-4} \quad (\text{B.17})$$

Liste des figures

1.1	Milieux poreux à différentes échelles : (a) Photographie d'une mousse métallique, (b) image par microscopie à balayage (MEB) d'un échantillon de coton (RASHID et al., 2019), (c) image MEB d'opacifiants micrométriques et (d) image MEB de fibres nano-poreuses (TIAN et al., 2018).	5
1.2	Principe de mesures par microtomographie à rayons X (LANDIS & KEANE, 2010).	7
1.3	Gamme spectrale du rayonnement thermique sur le spectre électromagnétique (BRUN, 2003). FIR correspond au lointain, MIR au moyen et NIR au proche infrarouge.	9
1.4	(a) Luminance spectrale et (b) luminance spectrale normalisée du corps noir à différentes températures.	11
1.5	Angle solide $d\Omega$ défini par ses coordonnées sphériques.	11
1.6	Réflexions et transmissions multiples sur une lame homogène à faces parallèles.	15
1.7	Schémas de (a) la réflexion spéculaire, (b) de la réflexion diffuse isotrope et (c) de la réflexion mixte.	17
1.8	Schéma d'un interféromètre de Michelson.	19
1.9	Exemple de mesure de (a) réflectance et (b) transmittance normales-hémisphériques en sphère intégrante (DUPLEIX et al., 2013).	20
1.10	Image MEB d'un échantillon fibreux avec des opacifiants. Le diamètre des fibres est de quelques microns.	22
2.1	Schéma de principe détaillant les étapes de la méthodologie d'identification de l'indice de réfraction complexe spectral.	29
2.2	Image MEB d'un échantillon fibreux avec des opacifiants. Le diamètre des fibres est de quelques microns.	29
2.3	Photographie du dispositif expérimental de spectroscopie FTIR à température ambiante.	30
2.4	Illustrations des différentes mesures de flux permettant le calcul d'une réflectance normale-hémisphérique : (a) F_{ref} (b) F_{trou} (c) F_{ech} . Des exemples de chemins optiques du rayonnement sont illustrés en rouge. La mesure $F_{ambient}$ correspond au schéma (a) mais sans source lumineuse.	31
2.5	Illustration des différentes mesures de flux permettant le calcul d'une transmittance normale-hémisphérique : (a) F_{ech} (b) F_{ref} .	32
2.6	Dispositif expérimental de mesure d'émittance directionnelle en température.	33
2.7	Platine "trois positions" du dispositif expérimental.	33
2.8	Modélisation du trajet optique du laser (en rouge) permettant le chauffage homogène de l'échantillon positionné sur le porte échantillon (en noir).	35
2.9	Coupes 2D obtenues par microtomographie X sur un feutre de silice fibreux (a) en niveau de gris, (b) segmentée (les fibres sont en blanc et la phase fluide en noir), et (c) une reconstruction 3D de la microstructure segmentée. Les voxels mesurent 0,360 μm de côté.	36
2.10	(a) Schéma d'une capsule, objet composé de deux sphères et d'un cylindre fini et (b) une représentation en 3D.	37

2.11	Convention géométrique utilisée pour le calcul de l'orientation des objets numériques.	37
2.12	Microstructures numériques générées avec l'outil du CEMHTI et composées de : (a) sphères, (b) de capsules, (c) d'ellipsoïdes, (d) de capsules et de sphères.	39
2.13	(a) Cas 2D d'une cellule élémentaire d'un milieu fibreux, (b) la portion des objets traversant les frontières de la cellule est périodisée (en rouge).	40
2.14	Découpe d'un échantillon à partir d'un volume de cellules élémentaires dupliquées. .	40
2.15	Schéma de principe d'une simulation réalisée avec le code MCRT. Les rayons quittant l'échantillon par la face avant (en rouge) participent au calcul de la réflectance hémisphérique alors que ceux qui quittent l'échantillon par la face arrière (en vert) permettent le calcul de la transmittance hémisphérique.	41
2.16	Initialisation d'une simulation MCRT : l'échantillon (en rouge), composé d'une cellule élémentaire périodisée (en gris), est limité par une source rayonnante (en bleu). . . .	42
2.17	Schéma d'intersection entre un rayon lumineux d'origine O et de direction $\vec{d}$ et une sphère. P et P' sont les deux solutions d'intersection possibles.	44
2.18	Schéma d'intersection entre un cylindre fini de rayon r et un rayon lumineux d'origine O et de direction $\vec{d}$. Le point K est le projeté du point d'intersection P sur l'axe (AB) . .	45
2.19	Exemples d'intersections entre plusieurs rayons lumineux (en bleu) et une capsule. Plusieurs solutions sont à chaque fois disponibles. Les croix rouges représentent les solutions rejetées et les vertes celles qui sont acceptées. À cause des erreurs d'arrondis numériques, les positions d'origine des rayons ② et ④ se trouvent à l'intérieur de la capsule. Par conséquent, la solution la plus proche n'est pas une solution physique puisque que celle-ci se trouve dans la direction opposée de celle du rayon.	47
2.20	Écart-types relatifs aux propriétés radiatives simulées en fonction du nombre de rayons à 1500, 3750 et 5000 cm^{-1}	48
2.21	Temps de calcul moyen d'une itération du code MCRT en fonction du nombre de rayons.	49
2.22	Découpe d'un échantillon de 3 mm d'épaisseur à partir de cellules élémentaires de 2 et 1 mm de côté. L'échantillon coupe la cellule de 2 mm dans son épaisseur alors que 3 cellules complètes de 1 mm permettent d'atteindre les bonnes dimensions de l'échantillon.	49
2.23	Ecart absolu entre les propriétés radiatives simulées par MCRT de deux échantillons de 3 mm d'épaisseur générés avec des cellules élémentaires de respectivement 1 et 2 mm de côté.	50
2.24	Évolution schématique de la fonction coût $f(n_\sigma, k_\sigma)$ en fonction des valeurs des indices optiques.	51
2.25	Schéma de principe de la validation numérique de la méthodologie.	54
2.26	(a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (b) Erreur relative entre les valeurs de référence et les valeurs optimisées des indices optiques et (c) Erreur relative étudiée sur la plage de semi-transparence uniquement.	56
2.27	(a) Comparaison entre l' <i>expérience numérique</i> et les propriétés radiatives simulées avec les indices optimisés, (b) erreur absolue entre l' <i>expérience numérique</i> et les propriétés simulées avec les indices optimisés, (c) comparaison entre l' <i>expérience numérique</i> et les propriétés radiatives simulées avec les indices de départ et (d) erreur absolue entre l' <i>expérience numérique</i> et les propriétés simulées avec les indices de départ. Sur les graphiques, les grandeurs R , T et E représentent respectivement la réflectance $\rho_\sigma^\square$, la transmittance $\tau_\sigma^\square$ et l'émittance $\varepsilon_\sigma^\square$	58
2.28	(a) Indice d'absorption de départ, de référence et optimisé en fonction du nombre d'onde, (b) Erreur relative entre les valeurs de référence et les valeurs optimisées de l'indice d'absorption sur la plage de semi-transparence.	59

2.29	Schéma de principe de l'étude de sensibilité de l'indice de réfraction complexe optimisé à la microstructure numérique. Une fois identifiés, les indices, qui sont alors erronés, sont utilisés pour simuler les propriétés radiatives de la microstructure numérique non-modifiée. Ces dernières sont comparées aux valeurs propriétés radiatives de l' <i>expérience numérique</i> afin de quantifier l'influence des différentes erreurs de géométrie numérique.	60
2.30	(a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés avec une erreur sur la fraction volumique de fibres de 2%, (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés, (d) erreur absolue entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.	61
2.31	(a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés avec une erreur sur l'épaisseur de l'échantillon de 10%, (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés, (d) erreur absolue entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.	62
2.32	(a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés avec une erreur sur le rayon des fibres de 5%, (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés, (d) erreur absolue entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.	63
2.33	(a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés avec une erreur sur la longueur des fibres de 5%, (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés, (d) erreur absolue entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.	64
2.34	(a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés avec une erreur sur le rayon des fibres de 5% et sur la fraction volumique de 2%, (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés, (d) erreur absolue entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.	67
2.35	(a) Indices optiques de départ, de référence et optimisés à partir d'une mesure bruitée , (b) erreur relative entre les indices optiques de référence et optimisés en fonction du nombre d'onde, (c) comparaison entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés, (d) erreur absolue entre l' <i>expérience numérique</i> et la simulation MCRT avec les indices optimisés erronés.	69
2.36	Ecarts entre les (a) réflectances, (b) transmittances et (c) émittances de l' <i>expérience numérique</i> et celles simulées pour différents couples (n_σ, k_σ) à 3665 cm^{-1}	71
2.37	Ecarts entre les (a) réflectances, (b) transmittances et (c) émittances de l' <i>expérience numérique</i> et celles simulées pour différents couples (n_σ, k_σ) à 4017 cm^{-1}	72
3.1	Photographie d'un échantillon de SilPower®.	76
3.2	Photographie MEB d'un échantillon de SilPower®.	77
3.3	Image de microtomographie du SilPower® en niveau de gris correspondant à une altitude de (a) 1,91, (b) 4,00 et (c) 6,62 mm à partir du haut de l'échantillon. Les fibres sont les objets les plus clairs. Le diamètre du disque observé est de 6 mm.	78

3.4	Deux images en niveau de gris de microtomographie de 1000 pixels de côté du SilPower® avec une taille de pixel de 0,730 µm. Sur l'image (b), on peut observer des zones de forte densité de fibres qui ne sont pas présentes sur l'image (a).	79
3.5	(a) Image en niveau de gris de microtomographie de 1000 pixels de côté du SilPower® avec une taille de pixel de 0,360 µm et (b) Superposition de l'image en niveau de gris et du résultat de la segmentation montrant que la phase fibreuse a été correctement différenciée du bruit de fond. (c) Image finale segmentée (les fibres sont en blanc, l'air en noir).	79
3.6	Reconstruction 3D d'un volume de SilPower® tomographié.	80
3.7	(a) Image d'une cellule élémentaire numérique de SilPower® (28% de fraction volumique de fibres) et (b) une coupe 2D de cette cellule (les fibres sont bleues).	81
3.8	Réflectance (R) et transmittance (T) normales-hémisphériques mesurées et émittance (E) déduite par la loi de Kirchhoff d'un échantillon de SilPower® de 2,85 mm d'épaisseur. L'incertitude expérimentale sur les mesures de réflectance et transmittance dans la gamme spectrale étudiée est estimée à $\pm 0,01$. Elle est estimée à $\pm 0,02$ pour l'émittance.	82
3.9	Indices de réfraction et d'absorption spectraux du SilPower® optimisés à partir de trois microstructures numériques de fractions volumiques de fibres de 20, 28 et 30%.	83
3.10	Les propriétés radiatives simulées d'un échantillon de SilPower® de 2,85 mm sont comparées aux propriétés expérimentales. L'erreur absolue entre les deux jeux de données est évaluée en fonction du nombre d'onde. Le processus d'optimisation réalisé avec une microstructure de 20% de fraction volumique de fibres ne permet même pas de réduire les écarts entre expérience et simulation en deçà des incertitudes de mesure.	85
3.11	Comparaison entre les propriétés radiatives expérimentales d'un échantillon de SilPower® de 2,85 mm d'épaisseur et les propriétés simulées issus des calculs d'optimisation avec des fractions volumiques de fibres de (a) 28% et (b) 30%.	86
3.12	Propriétés radiatives simulées pour des fractions volumiques de fibres de (a) 28% et (c) 30% et expérimentales obtenues sur des échantillons de SilPower® numérique et réel de 2,2 mm d'épaisseur. L'erreur absolue entre l'expérience et la simulation est évaluée pour chaque fraction volumique : (b) 28% et (d) 30%.	87
3.13	Indices de réfraction et d'absorption spectraux obtenus à partir de cellules élémentaires de 1 et 5 mm. Les calculs d'optimisation mènent à des résultats similaires. L'écart observé vers 3660 cm^{-1} est la conséquence des limites du modèle de pre-processing. La valeur de l'indice d'absorption étant trop éloignée d'une solution, l'algorithme compense en modifiant fortement l'indice de réfraction.	88
3.14	Coupes réalisées aux différentes étapes de génération d'une cellule élémentaire numérique contenant des hétérogénéités à l'échelle millimétrique. (a) Une première phase fibreuse est générée, puis (b) des sphères assimilables à des bulles d'air sont insérées dans le volume. (c) Une seconde phase fibreuse, dont les fibres ne peuvent pas être positionnées dans le volume des sphères est finalement générée pour obtenir le volume final. Sur ces images, les fibres sont en bleu. L'image (d) est un agrandissement d'une coupe du SilPower® pour comparaison (les fibres sont en niveaux de gris).	89
3.15	Indices de réfraction et d'absorption spectraux moyens identifiés à partir d'une microstructure numérique incluant des hétérogénéités à l'échelle millimétrique et à partir de mesures de spectroscopie FTIR. Les échantillons numérique et réel font 2,85 mm d'épaisseur.	90
3.16	(a) Propriétés radiatives expérimentales et simulées d'un échantillon de SilPower® de 2,20 mm d'épaisseur. Les propriétés simulées ont été obtenues par une simulation MCRT avec les indices optiques extraits d'une optimisation sur un échantillon de 2,85 mm d'épaisseur. (b) Erreur absolue entre les propriétés radiatives expérimentales et simulées en fonction du nombre d'onde.	92

3.17 Spectres d'émittance d'un échantillon de SilPower [®] de 2,00 mm d'épaisseur porté en température jusqu'à 1010 K.	94
3.18 Indices d'absorption spectral des fibres de SilPower [®] à 295 et 1010 K. La capacité d'absorption des fibres de silice s'atténue avec la température après le front de transmission.	94
3.19 Spectre d'émittance expérimental et simulé d'un échantillon de SilPower [®] porté à 1022 K.	95
3.20 Photographie d'un échantillon de FOX imprégné.	96
3.21 Images en niveau de gris de microtomographie de 1000 pixels de côté du FOX pur avec des tailles de pixel de (a) 0,360 μm et (b) 0,730 μm	97
3.22 (a) Image du FOX pur segmentée de 1000 pixels de côté avec une taille de pixel de 360 μm et (b) une reconstruction 3D du volume tomographié.	97
3.23 Photographie MEB d'un échantillon de FOX avant frittage. De la silice colloïdale est encore présente entre les fibres à cette étape du procédé. Il est néanmoins possible d'observer les courbures importantes des fibres.	98
3.24 Coupe obtenue par microtomographie à rayons X montrant des résultats de la labellisation des fibres de FOX. Une couleur représente une fibre. Certaines fibres qui semblent continues (entourées en rouge) sont scindées en plusieurs entités.	98
3.25 Coupe d'une cellule élémentaire de FOX avec une fraction volumique de fibres de 6%.	99
3.26 Mesures de spectroscopie FTIR réalisées sur un échantillon de FOX pur de 2 mm d'épaisseur à température ambiante. Le point de Christiansen se situe à 1185 cm^{-1}	100
3.27 Indices optiques des fibres de FOX pur optimisés à partir d'un échantillon numérique de 2 mm d'épaisseur et de mesures de spectroscopie FTIR réalisés sur un échantillon de même épaisseur.	101
3.28 (a) Propriétés radiatives d'un échantillon de FOX pur de 4 mm mesurées et simulées avec des indices optimisés sur un échantillon de 2 mm d'épaisseur. (b) Les erreurs maximales rencontrées sur la simulation de la transmittance et de la réflectance sont de $\pm 0,015$, valeur légèrement supérieure à l'incertitude expérimentale estimée à $\pm 0,01$. L'erreur faite sur l'émittance reste quant à elle comprise dans l'intervalle d'incertitude $\pm 0,02$ annoncé précédemment. Entre 2000 et 2350 cm^{-1} , la validité de l'optique géométrique est discutable puisque des erreurs plus importantes sont observées.	102
3.29 Spectres d'émittance d'un échantillon de FOX pur de 3 mm d'épaisseur porté en température jusqu'à 1328 K.	103
3.30 Indices d'absorption spectraux des fibres de FOX pur identifiés à 962 et 1328 K. Les indices identifiés à 295 K sont également présentés pour comparaison.	104
3.31 Propriétés radiatives d'un échantillon de FOX imprégné d'aérogel de 2,4 mm à température ambiante.	105
3.32 Emittances spectrales d'un échantillon de FOX imprégné d'aérogel de 2,4 mm d'épaisseur à 954 et 1354 K.	105
3.33 Indices d'absorption spectraux de l'aérogel identifiés lors de l'étude d'un échantillon de FOX imprégné porté à 954 et 1354 K. Les indices d'absorption des fibres de FOX pur extraits précédemment à 962 et 1328 K sont présentés pour comparaison.	106
3.34 Photographie d'un échantillon d'aérogel.	107
3.35 Propriétés radiatives d'un échantillon d'aérogel de 2 mm d'épaisseur mesurées à 295 K.	107
3.36 Spectres d'émittance d'un échantillon d'aérogel pur de 2 mm d'épaisseur à 917 et 1326 K.	108
3.37 Spectres d'émittance expérimentaux et numériques d'un échantillon d'aérogel pur de 2 mm d'épaisseur à 917 et 1326 K. La simulation est réalisée avec les indices d'absorption identifiés à 954 et 1354 K.	109

4.1	Schéma d'un voxel.	118
4.2	Exemple de discrétisation du domaine spectral entre 2500 et 5000 cm^{-1} en 8 bandes selon l'évolution de l'indice d'absorption du SilPower [®] à 1010 K.	120
4.3	Schéma illustrant la relation de continuité entre luminances à l'interface de deux voxels.	123
4.4	Spectre d'émittance du SilPower [®] à 1010 K. La loi de Planck normalisée calculée à 1010 K montre qu'une part du transfert radiatif à cette température se déroule dans la plage de semi-transparence du matériau. Une température de 600 K représente un exemple de température limite théorique pour laquelle la quasi-totalité du transfert radiatif se déroule dans la gamme d'opacité du matériau ce qui explique la cohérence des conductivités radiatives calculées par deux modèles gris différents en §4.3.1. Cette comparaison d'un spectre d'émittance à 1010 K avec la loi de Planck calculée à 600 K est seulement théorique et qualitative, mais reste valable car il a été montré au Chapitre 3 que la largeur de la plage d'opacité du milieu évoluait peu avec la température.	131
4.5	Spectre d'émittance du SilPower [®] à 1010 K sur lequel est superposée la loi de Planck normalisée calculée à 493, 906 et 931 K. À 493 K, la quasi-totalité du transfert radiatif se déroule dans la plage d'opacité du matériau. Avec une augmentation en température, une part de plus en plus importante du transfert radiatif se déroule dans la plage de semi-transparence du SilPower [®]	133
4.6	Schéma éclaté de l'empilement de plaques contenant l'échantillon à étudier sur <i>ECOTHERM</i>	134
4.7	(a) Schéma de l'expérience <i>ECOTHERM</i> (b) Photographie du banc expérimental <i>ECOTHERM</i> . La coque en inox qui recouvre normalement l'empilement de plaques n'est pas présente.	135
4.8	(a) Thermogrammes expérimentaux des faces avant (en pointillés) et arrière (traits continus) d'une plaque de FOX imprégné de 1 cm d'épaisseur pour trois températures de chauffe en face avant. (b) Thermogrammes expérimentaux en face arrière étudiés entre 110 et 300 s. Les "sauts" de température sont indiqués par la zone rouge pointillée.	137
4.9	Thermogrammes en face arrière d'un échantillon de FOX imprégné simulés pour plusieurs puissances de chauffe en face avant. La zone rouge pointillée situe les "sauts" de température.	139
4.10	Spectre d'émittance du FOX imprégné à 1354 K. La loi de Planck normalisée calculée à 673 K montre qu'à cette température, une part suffisamment importante du transfert radiatif se déroule dans la bande de semi-transparence du FOX imprégné.	140
4.11	Thermogrammes expérimentaux en face avant et arrière d'une plaque de FOX pur de 10 mm d'épaisseur obtenus sur le banc de mesure <i>ECOTHERM</i>	141
4.12	Thermogramme simulé en face arrière d'un échantillon de FOX pur pour une puissance de chauffe de 3000 W.m^{-2}	141
A.1	(a) Distribution de longueur de fibres de SilPower [®] d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm	148
A.2	(a) Distribution de diamètre de fibres de SilPower [®] d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm	149

A.3	(a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler α de fibres de SilPower [®] d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm	150
A.4	(a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler β de fibres de SilPower [®] d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm	151
A.5	(a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler χ de fibres de SilPower [®] d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm	152
A.6	(a) Distribution de longueur de fibres de FOX d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm	154
A.7	(a) Distribution de diamètre de fibres de FOX d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm	155
A.8	(a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler α de fibres de FOX d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm	156
A.9	(a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler β de fibres de FOX d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm	157
A.10	(a) Distribution d'orientation selon l'angle d'Euler χ de fibres de FOX d'un volume V1 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (b) d'un volume V2 étudié à une taille de voxel de 0,360 μm , (c) d'un volume V3 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm et (d) d'un volume V4 étudié à une taille de voxel de 0,730 μm	158

Liste des tableaux

2.1	Configurations de mesure des spectromètres Vertex 70 et Vertex 80v.	34
3.1	Fractions volumiques de fibres calculées pour chacun des volumes tomographiés. . . .	80
3.2	Paramètres des lois de distributions statistiques des propriétés géométriques des fibres du SilPower®.	80
3.3	Paramètres des lois de distributions statistiques des propriétés géométriques des fibres du FOX pur.	99
4.1	Nombre de Rayleigh Ra calculé à 20 et 1000°C à partir des propriétés thermophysiques de l'air.	117
4.2	Propriétés thermo-physiques utilisées pour les calculs de conductivité thermiques apparentes à partir de conductivités radiatives effectives grises du SilPower®. Les propriétés de la silice et de l'air utilisées dans <i>THERMIVOX</i> ont été respectivement extraites de (BRÜCKNER, 1970) ((SUKENAGA et al., 2021) pour la conductivité phonique) et (DIXON, 2007). Les propriétés utilisées par (PENAZZI et al., 2022) sont les propriétés du milieu effectif contenant les fibres de silice et l'air. * Les conductivités phoniques effectives ont été calculées à partir de l'expression identifiée par (PENAZZI et al., 2022) : $\lambda_{cond,eff} = 1,15.10^{-4}T + 9,09.10^{-2}$	127
4.3	Comparaison entre les conductivités effectives phoniques, radiatives grises et les conductivités apparentes moyennes du SilPower® calculées avec <i>THERMIVOX</i> et par le modèle de (PENAZZI et al., 2022).	128
4.4	Comparaison entre les conductivités effectives phoniques, radiatives et les conductivités apparentes du SilPower® calculées avec <i>THERMIVOX</i> et par (PENAZZI et al., 2022) avec un indice de réfraction du milieu effectif de 1,44.	129
4.5	Plages spectrales théoriques sur lesquelles 99% des échanges radiatifs sont réalisés à 295 et 1010 K.	130
4.6	Caractéristiques radiatives du SilPower® utilisées pour le modèle à deux bandes spectrales à 295 et 1010 K. Le coefficient d'absorption $\kappa_{abs,\sigma}$ est calculé à partir des valeurs de l'indice d'absorption k_σ par la relation $\kappa_{abs,\sigma} = 4\pi k_\sigma \sigma$. Les valeurs indiquées dans cette table sont les moyennes de ces coefficients sur chacune des bandes spectrales.	130
4.7	Conductivités effectives du SilPower® calculées avec un modèle à 2 bandes spectrales à 295 et 1010 K.	130
4.8	Caractéristiques radiatives du SilPower® utilisées pour les modèles gris et à deux bandes spectrales.	132
4.9	Températures en face avant d'un échantillon numérique de SilPower® en fonction du flux incident, calculées avec des modèles gris et à 2 bandes spectrales.	132
4.10	Caractéristiques radiatives spectrales moyennes des fibres de FOX et de l'aérogel de silice sur les deux intervalles spectraux d'un modèle à bandes.	138
4.11	Propriétés thermophysiques des fibres de FOX et de l'aérogel utilisées pour les calculs transitoires dans <i>THERMIVOX</i>	139

Bibliographie

- ARAMBAKAM, R., VAHEDI TAFRESHI, H., & POURDEYHIMI, B. (2012). Analytical monte carlo ray tracing simulation of radiative heat transfer through bimodal fibrous insulations with translucent fibers. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 55(23), 7234-7246. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2012.07.049>
- AUGUST, A., & NESTLER, B. (2020). About the surface area to volume relations of open cell foams. *Engineering Research Express*, 2. <https://doi.org/10.1088/2631-8695/ab6ac6>
- BADRI, M. A., FAVENNEC, Y., JOLIVET, P., & ROUSSEAU, B. (2020). Conductive-radiative heat transfer within SiC-based cellular ceramics at high-temperatures : A discrete-scale finite element analysis. *Finite Elements in Analysis and Design*, 178, 103410. <https://doi.org/10.1016/j.finel.2020.103410>
- BAILLIS, D., ARDUINI-SCHUSTER, M., & SACADURA, J. F. (2002). Identification of spectral radiative properties of polyurethane foam from hemispherical and bi-directional transmittance and reflectance measurements. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 73(2), 297-306. [https://doi.org/10.1016/S0022-4073\(01\)00199-6](https://doi.org/10.1016/S0022-4073(01)00199-6)
- BHATTACHARYA, A., CALMIDI, V. V., & MAHAJAN, R. L. (2002). Thermophysical properties of high porosity metal foams. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 45(5), 1017-1031. [https://doi.org/10.1016/S0017-9310\(01\)00220-4](https://doi.org/10.1016/S0017-9310(01)00220-4)
- BJÖRCK, A. (1996). *Numerical methods for least squares problems*. Society for Industrial ; Applied Mathematics.
- BOCHKANOV, S. (2022). *ALGLIB - C++/C# numerical analysis library*. <https://www.alglib.net/>
- BOUALLOU, C., & SACADURA, J. F. (1991). Thermal radiation, convection, and conduction in porous media contained in two-dimensional vertical cavities. *Journal of Heat Transfer*, 113(1), 255-258. <https://doi.org/10.1115/1.2910538>
- BOUVRY, B. (2015). *Développement de matériaux réfractaires à haute émissivité pour superstructure de fours verriers* (These de doctorat). Orléans.
- BOUVRY, B., del CAMPO, L., DE SOUSA MENESES, D., ROZENBAUM, O., ECHEGUT, R., LECHEVALIER, D., GAUBIL, M., & ECHEGUT, P. (2016). Hybrid methodology for retrieving thermal radiative properties of semi-transparent ceramics. *The Journal of Physical Chemistry C*, 120(6), 3267-3274. <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.5b09693>
- BRUCATO, A., CASSANO, A. E., GRISAFI, F., MONTANTE, G., RIZZUTI, L., & VELLA, G. (2006). Estimating radiant fields in flat heterogeneous photoreactors by the six-flux model [eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/aic.10984>]. *AIChE Journal*, 52(11), 3882-3890. <https://doi.org/10.1002/aic.10984>
- BRÜCKNER, R. (1970). Properties and structure of vitreous silica. i. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 5(2), 123-175. [https://doi.org/10.1016/0022-3093\(70\)90190-0](https://doi.org/10.1016/0022-3093(70)90190-0)
- BRUN, J.-F. (2003). *Mesure et analyse de l'émittance spectrale d'oxydes diélectriques à haute température : une approche des phénomènes préfusionnels* (These de doctorat). Orléans.
- CASE, K. M. (1957). Transfer problems and the reciprocity principle. *Revs. Mod. Phys.*, Vol : 29. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.29.651>

- CASTRO, R. O., & TRELLES, J. P. (2015). Spatial and angular finite element method for radiative transfer in participating media. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 157, 81-105. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2015.02.008>
- CHEHEB, Z., ALBOUCHI, F., & BEN NASRALLAH, S. (2008). Measurement of thermal radiative and conductive properties of semitransparent materials using a photothermal crenel method. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 109(4), 620-635. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2007.08.005>
- CURRY, H. B. (1944). The method of steepest descent for non-linear minimization problems. *Quarterly of Applied Mathematics*, 2(3), 258-261. <https://doi.org/10.1090/qam/10667>
- DAUVOIS, Y. (2016). *Modélisation du transfert thermique couplé conductif et radiatif au sein de milieux fibreux portés à haute température* (thèse de doct.). Paris-Saclay.
- DAUVOIS, Y., ROCHAIS, D., ENGUEHARD, F., & TAINE, J. (2016). Statistical radiative modeling of a porous medium with semi transparent and transparent phases : Application to a felt of overlapping fibres. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 106. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2016.09.035>
- DE SOUSA MENESES, D., MELIN, P., del CAMPO, L., COSSON, L., & ECHEGUT, P. (2015). Apparatus for measuring the emittance of materials from far infrared to visible wavelengths in extreme conditions of temperature. *Infrared Physics & Technology*, 69, 96-101. <https://doi.org/10.1016/j.infrared.2015.01.011>
- DE SOUSA MENESES, D., BRUN, J.-F., ECHEGUT, P., & SIMON, P. (2004). Contribution of semi-quantum dielectric function models to the analysis of infrared spectra. *Applied Spectroscopy*, 58(8), 969-974. <https://doi.org/10.1366/0003702041655467>
- DEHGHAN, M., RAHMANI, Y., DOMIRI GANJI, D., SAEDODIN, S., VALIPOUR, M. S., & RASHIDI, S. (2015). Convection–radiation heat transfer in solar heat exchangers filled with a porous medium : homotopy perturbation method versus numerical analysis. *Renewable Energy*, 74, 448-455. <https://doi.org/10.1016/j.renene.2014.08.044>
- DEZ, V. L., VAILLON, R., LEMONNIER, D., & LALLEMAND, M. (2000). Conductive–radiative coupling in an absorbing–emitting axisymmetric medium. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 65(6), 787-803. [https://doi.org/10.1016/S0022-4073\(99\)00112-0](https://doi.org/10.1016/S0022-4073(99)00112-0)
- DIXON, J. (2007). The Shock Absorber Handbook : Second Edition. *The Shock Absorber Handbook : Second Edition*, 1-415. <https://doi.org/10.1002/9780470516430>
- DOMBROVSKY, L. A., TAGNE, H. K., BAILLIS, D., & GREMILLARD, L. (2007). Near-infrared radiative properties of porous zirconia ceramics. *Infrared Physics & Technology*, 51(1), 44-53. <https://doi.org/10.1016/j.infrared.2006.11.003>
- DUPLEIX, A., DE SOUSA MENESES, D., HUGHES, M., & MARCHAL, R. (2013). Mid-infrared absorption properties of green wood. *Mid-infrared absorption properties of green wood*, 1-13.
- ECKES, M. (2012). *Opacification de matériaux oxydes au passage solide-liquide : rôle de la structure et de la dynamique* (These de doctorat). Orléans.
- ESRF. (2022). *European synchrotron radiation facility (ESRF)*. <https://www.esrf.fr/>
- FAVENNEC, Y., MATHEW, T., BADRI, M., JOLIVET, P., ROUSSEAU, B., LEMONNIER, D., & COELHO, P. (2019). Ad hoc angular discretization of the radiative transfer equation. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 225, 301-318. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2018.12.032>
- FIVELAND, W. A. (1987). Discrete ordinate methods for radiative heat transfer in isotropically and anisotropically scattering media. *Journal of Heat Transfer*, 109 :3. <https://doi.org/10.1115/1.3248167>
- FU, T., TANG, J., CHEN, K., & ZHANG, F. (2016). Determination of scattering and absorption coefficients of porous silica aerogel composites. *Journal of Heat Transfer*, 138(3), 032702. <https://doi.org/10.1115/1.4031734>

- GE, W., MARQUEZ, R., MODEST, M. F., & ROY, S. P. (2015). Implementation of high-order spherical harmonics methods for radiative heat transfer on openfoam. *Journal of Heat Transfer*, 137(5), 052701. <https://doi.org/10.1115/1.4029546>
- GONNEAU, V., ROCHAIS, D., & ENGUEHARD, F. (2021). Modelling of heat transfer within heterogeneous media by Brownian walkers. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 184, 122261. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2021.122261>
- GUERRA, T., MENESES, D. D. S., ROZENBAUM, O., & BLANCHARD, C. (2021). From representative volume element of interacting particles to the extraction of their effective properties. *Optics Express*, 29(22), 35900. <https://doi.org/10.1364/OE.438451>
- HE, X., CHENG, X., ZHANG, Y., & SHAO, Z. (2018). Multiscale structural characterization of methyltriethoxysilane-based silica aerogels. *Journal of Materials Science*, 53. <https://doi.org/10.1007/s10853-017-1597-1>
- HEISEL, C. (2019). *Conception et réalisation, par fabrication additive, de matériaux cellulaires architecturés* (These de doctorat). Limoges.
- HOWELL, J. R., MENGÜC, P. M., SIEGEL, R., & DAUN, K. (2021). *Thermal Radiation Heat Transfer* (7th). CRC Press.
- IPSDK. (2022). *IPSDK - Solution de Traitement d'images - by Reactiv IP* [Reactiv IP]. <https://www.reactivip.com/fr/traitement-dimages/>
- JAYAKUMAR, A., & A, M. (2021). Image-based method for evaluation of effective thermal conductivity of metal foam with hollow ligaments. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 164, 120490. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2020.120490>
- JEON, S., PARK, S.-N., YOO, Y., HWANG, J., PARK, C.-W., & LEE, G. (2010). Simultaneous measurement of emittance, transmittance, and reflectance of semitransparent materials at elevated temperature. *Optics Letters*, 35(23), 4015-4017. <https://doi.org/10.1364/OL.35.004015>
- KADOYA, K., MATSUNAGA, N., & NAGASHIMA, A. (1985). Viscosity and thermal conductivity of dry air in the gaseous phase. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 14(4), 947-970. <https://doi.org/10.1063/1.555744>
- KHAJEH, E., & MAIJER, D. M. (2010). Physical and numerical characterization of the near-eutectic permeability of aluminum–copper alloys. *Acta Materialia*, 58(19), 6334-6344. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2010.07.055>
- KISCHKAT, J., PETERS, S., GRUSKA, B., SEMTSIV, M., CHASHNIKOVA, M., KLINKMÜLLER, M., FEDOSENKO, O., MACHULIK, S., ALEKSANDROVA, A., MONASTYRSKYI, G., FLORES, Y., & MASSELINK, W. T. (2012). Mid-infrared optical properties of thin films of aluminum oxide, titanium dioxide, silicon dioxide, aluminum nitride, and silicon nitride. *Applied Optics*, 51(28), 6789-6798. <https://doi.org/10.1364/AO.51.006789>
- KITAMURA, R., PILON, L., & JONASZ, M. (2007). Optical constants of silica glass from extreme ultraviolet to far infrared at near room temperature. *Applied Optics*, 46(33), 8118. <https://doi.org/10.1364/AO.46.008118>
- KRZYŻANOWSKA, H., KULIK, M., & ŻUK, J. (1998). Ellipsometric study of refractive index anisotropy in porous silicon. *Journal of Luminescence*, 80(1), 183-186. [https://doi.org/10.1016/S0022-2313\(98\)00093-3](https://doi.org/10.1016/S0022-2313(98)00093-3)
- KUMAR, A. (2021). *Textural control of coupled radiative and conductive heat transfer in fibrous media at very high temperatures* (thèse de doct.). Université de nantes.
- KUSCHMITZ, S., RING, T. P., WATSCHKE, H., LANGER, S. C., & VIETOR, T. (2021). Design and additive manufacturing of porous sound absorbers—a machine-learning approach. *Materials*, 14(7), 1747. <https://doi.org/10.3390/ma14071747>
- LANDIS, E. N., & KEANE, D. T. (2010). X-ray microtomography. *Materials Characterization*, 61(12), 1305-1316. <https://doi.org/10.1016/j.matchar.2010.09.012>

- LARKIN, P. J. (2018). Chapter 3 - instrumentation and sampling methods. In P. J. LARKIN (Éd.), *Infrared and raman spectroscopy (second edition)* (p. 29-61). Elsevier. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-804162-8.00003-3>
- LE FOLL, S., DELMAS, A., & ANDRÉ, F. (2017). Identification of radiative properties for heterogeneous materials at high temperature. *International Journal of Thermal Sciences*, 120, 314-320. <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2017.06.019>
- LE HARDY, D., FAVENNEC, Y., ROUSSEAU, B., & HECHT, F. (2017). Specular reflection treatment for the 3d radiative transfer equation solved with the discrete ordinates method. *Journal of Computational Physics*, 334, 541-572. <https://doi.org/10.1016/j.jcp.2017.01.019>
- LEE, K. H., & VISKANTA, R. (1997). Prediction of spectral radiative transfer in a condensed cylindrical medium using discrete ordinates method. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 58(3), 329-345. [https://doi.org/10.1016/S0022-4073\(97\)00037-X](https://doi.org/10.1016/S0022-4073(97)00037-X)
- LI, H. (2018). *Approche structurale in situ des milieux fondus sous conditions extrêmes de température et de pression* (These de doctorat). Orléans.
- LI, Y., CHEN, H.-W., WANG, F.-Q., XIA, X.-L., & TAN, H.-P. (2021). A development to determine spectral radiative properties of semitransparent struts of open-cell ceramic foams : from macro-scale measurement to pore-scale simulation. *Infrared Physics & Technology*, 113, 103646. <https://doi.org/10.1016/j.infrared.2021.103646>
- MAANANE, Y., ROGER, M., DELMAS, A., GALTIER, M., & ANDRÉ, F. (2020). Symbolic monte carlo method applied to the identification of radiative properties of a heterogeneous material. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 249, 107019. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2020.107019>
- MANARA, J., ARDUINI-SCHUSTER, M., RÄTZER-SCHEIBE, H. .-, & SCHULZ, U. (2009). Infrared-optical properties and heat transfer coefficients of semitransparent thermal barrier coatings. *Surface and Coatings Technology*, 203(8), 1059-1068. <https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2008.09.033>
- MARIANI, V. C., & DOS SANTOS COELHO, L. (2009). Estimation of the apparent thermal diffusivity coefficient using an inverse technique. *Inverse Problems in Science and Engineering*, 17(5), 569-589. <https://doi.org/10.1080/17415970802285293>
- MARQUARDT, D. W. (1963). An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. *Journal of the Society for Industrial and Applied Mathematics*, 11(2), 431-441. <https://doi.org/10.1137/0111030>
- MAXWELL GARNETT, J. C. (1904). Colours in Metal Glasses and in Metallic Films. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series A*, 203, 385-420.
- MISHCHENKO, M. I. (2009). Gustav mie and the fundamental concept of electromagnetic scattering by particles : a perspective. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 110(14), 1210-1222. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2009.02.002>
- MORENO, J., CASADO, C., & MARUGÁN, J. (2019). Improved discrete ordinate method for accurate simulation radiation transport using solar and LED light sources. *Chemical Engineering Science*, 205, 151-164. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2019.04.034>
- NIEZGODA, M. (2012). *Modélisation du transfert thermique au sein de matériaux poreux multiconstituants* (These de doctorat). Orléans.
- NIEZGODA, M., ROCHAIS, D., ENGUEHARD, F., ROUSSEAU, B., & ECHEGUT, P. (2012). Modeling heat transfer within porous multiconstituent materials. *Eurotherm Conference n°95 – Computational Thermal Radiation in Participating Media IV*. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/369/1/012001>
- NZIE, A. (2021). *Comportement infrarouge de milieux hétérogènes : mesure et restitution par différentes techniques d'homogénéisation* (These de doctorat). Orléans.
- OUCHTOUT, S., ROUSSEAU, B., & FAVENNEC, Y. (2022). Finite element framework for modeling conducto-radiative transfers within heterogeneous media at both discrete and continuous

- scales. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 197, 123274. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2022.123274>
- PALIK, E. D. (1998). *Handbook of optical constants of solids* [Google-Books-ID : nxoqxyoHfbIC]. Academic Press.
- PAREDES, J. I., MARTÍNEZ-ALONSO, A., & TASCÓN, J. M. D. (2002). Scanning probe microscopies for the characterization of porous solids : strengths and limitations. In F. RODRIGUEZ-REINOSO, B. MCENANEY, J. ROUQUEROL & K. UNGER (Éd.), *Studies in surface science and catalysis* (p. 1-10). Elsevier. [https://doi.org/10.1016/S0167-2991\(02\)80213-0](https://doi.org/10.1016/S0167-2991(02)80213-0)
- PATNAIK, P. (2003). *Handbook of inorganic chemicals*. McGraw-Hill.
- PENAZZI, L., JANNOT, Y., MEULEMANS, J., FARGES, O., & SCHICK, V. (2022). Influence of radiation heat transfer on parallel hot-wire thermal conductivity measurements of semi-transparent materials at high temperature. *International Journal of Thermal Sciences*, 179, 107690. <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2022.107690>
- PETROV, V. A. (1997). Combined radiation and conduction heat transfer in high temperature fiber thermal insulation. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 40(9), 2241-2247. [https://doi.org/10.1016/S0017-9310\(96\)00242-6](https://doi.org/10.1016/S0017-9310(96)00242-6)
- PISCIA, D., MONTERO, J. I., BAILEY, B., MUÑOZ, P., & OLIVA, A. (2013). A new optimisation methodology used to study the effect of cover properties on night-time greenhouse climate. *Biosystems Engineering*, 116(2), 130-143. <https://doi.org/10.1016/j.biosystemseng.2013.07.005>
- RAITHBY, G. D., & CHUI, E. H. (1990). A Finite-Volume Method for Predicting a Radiant Heat Transfer in Enclosures With Participating Media. *Journal of Heat Transfer*, 112(2), 415-423. <https://doi.org/10.1115/1.2910394>
- RANDRIANALISOA, J., & BAILLIS, D. (2010). Radiative properties of densely packed spheres in semi-transparent media : a new geometric optics approach. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 111(10), 1372-1388. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2010.01.014>
- RANDRIANALISOA, J., HAUSSENER, S., BAILLIS, D., & LIPIŃSKI, W. (2017). Radiative characterization of random fibrous media with long cylindrical fibers : comparison of single- and multi-RTE approaches. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 202, 220-232. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2017.08.002>
- RASHID, M., MAHLTIG, B., & MAMUN, K. (2019). Surface Modification of Cotton Fabric with Effect Pigment -A Review of Improved Textile Optical Functionalization, 10-15. <https://doi.org/10.5923/j.textile.20190801.02>
- RAYLEIGH, L. (1916). On convection currents in a horizontal layer of fluid, when the higher temperature is on the under side. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 32(192), 529-546. <https://doi.org/10.1080/14786441608635602>
- RETAILLEAU, F., ALLHEILY, V., JEAN, T., MERLAT, L., HENRY, J.-F., & RANDRIANALISOA, J. H. (2022). Temperature-controlled spectrophotometry : a simultaneous analysis of phase transition, thermal degradation and optical properties of semi-transparent composites from 20 °C to 450 °C. *Optics Express*, 30(12), 21125-21147. <https://doi.org/10.1364/OE.455921>
- ROUSSEAU, B., BRUN, J. F., MENESES, D. D. S., & ECHEGUT, P. (2005). Temperature measurement : christiansen wavelength and blackbody reference. *International Journal of Thermophysics*, 26(4), 1277-1286. <https://doi.org/10.1007/s10765-005-6726-4>
- ROUSSEAU, B. (2001). *Origines des propriétés thermoradiatives d'oxydes noirs : optimisation d'un émetteur infrarouge* (These de doctorat). Orléans.
- ROZENBAUM, O., BLANCHARD, C., & DE SOUSA MENESES, D. (2019). Determination of high-temperature radiative properties of porous silica by combined image analysis, infrared spectroscopy and numerical simulation. *International Journal of Thermal Sciences*, 137, 552-559. <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2018.12.025>

- SACADURA, J., & BAILLIS, D. (2002). Experimental characterization of thermal radiation properties of dispersed media. *International Journal of Thermal Sciences*, 41(7), 699-707. [https://doi.org/10.1016/S1290-0729\(02\)01365-0](https://doi.org/10.1016/S1290-0729(02)01365-0)
- SAINT-GOBAIN. (2022). *SilPower® / quartz*. <https://www.quartz.saint-gobain.com/products/silpower>
- SANS, M., FARGES, O., SCHICK, V., MOYNE, C., & PARENT, G. (2019). Modeling the flash method by using a conducto-radiative monte carlo algortihm : application to porous media. *Proceeding of Proceedings of the 9th International Symposium on Radiative Transfer, RAD-19*, 319-326. <https://doi.org/10.1615/RAD-19.390>
- SCHUSTER, A. (1905). Radiation Through a Foggy Atmosphere [ADS Bibcode : 1905ApJ....21....1S]. *The Astrophysical Journal*, 21, 1. <https://doi.org/10.1086/141186>
- SCHWARZSCHILD, K. (1906). On the equilibrium of the Sun's atmosphere. *Nachrichten von der Königlichen Gesellschaft der Wissenschaften zu Göttingen. Math.-phys. Klasse*, 195, 41-53.
- SHAH, S., CRAWSHAW, J., & BOEK, E. (2017). Three-dimensional imaging of porous media using confocal laser scanning microscopy. *Journal of Microscopy*, 265(2), 261-271. <https://doi.org/10.1111/jmi.12496>
- SUKENAGA, S., ENDO, T., NISHI, T., YAMADA, H., OHARA, K., WAKIHARA, T., INOUE, K., KAWANISHI, S., OHTA, H., & SHIBATA, H. (2021). Thermal Conductivity of Sodium Silicate Glasses and Melts : Contribution of Diffusive and Propagative Vibration Modes. *Frontiers in Materials*, 8.
- TAN, C. Z., & ARNDT, J. (2000). Temperature dependence of refractive index of glassy SiO₂ in the infrared wavelength range. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 61(8), 1315-1320. [https://doi.org/10.1016/S0022-3697\(99\)00411-4](https://doi.org/10.1016/S0022-3697(99)00411-4)
- TAN, H.-P., WANG, P.-Y., & XIA, X.-L. (2000). Transient Coupled Radiation and Conduction in an Absorbing and Scattering Composite Layer. *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*, 14, 77-87. <https://doi.org/10.2514/2.6492>
- THOMAS, M. E. (1998). Temperature dependence of the complex index of refraction. In *Handbook of optical constants of solids* (p. 177-201). Elsevier. <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-055630-7.50011-0>
- TIAN, D., LI, X.-X., & HE, J.-H. (2018). Geometrical potential and nanofiber membrane's highly selective adsorption property. *Adsorption Science & Technology*, 37, 026361741881382. <https://doi.org/10.1177/0263617418813826>
- TONG, J. K., HUANG, X., BORISKINA, S. V., LOOMIS, J., XU, Y., & CHEN, G. (2015). Infrared-transparent visible-opaque fabrics for wearable personal thermal management. *ACS Photonics*, 2(6), 769-778. <https://doi.org/10.1021/acsphotonics.5b00140>
- TROVALET, L. (2011). *Résolution numérique des transferts par rayonnement et conduction au sein d'un milieu semi-transparent pour une géométrie 3D de forme complexe* (These de doctorat). Nancy 1.
- VIGNOLES, G. L. (2016). A hybrid random walk method for the simulation of coupled conduction and linearized radiation transfer at local scale in porous media with opaque solid phases. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 93, 707-719. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2015.10.056>
- VIGNOLES, G. L., ROCHAIS, D., & CHUPIN, S. (2021). Computation of the conducto-radiative effective heat conductivity of porous media defined by triply periodic minimal surfaces. *International Journal of Thermal Sciences*, 159, 106598. <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2020.106598>
- WANG, L., HABIBI, M. H., ELDRIDGE, J. I., & GUO, S. M. (2014). Infrared radiative properties of plasma-sprayed BaZrO₃ coatings. *Journal of the European Ceramic Society*, 34(15), 3941-3949. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2014.05.015>

- WANG, P.-Y., CHENG, H.-E., & TAN, H.-P. (2002). Transient thermal analysis of semitransparent composite layer with an opaque boundary. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 45(2), 425-440. [https://doi.org/10.1016/S0017-9310\(01\)00143-0](https://doi.org/10.1016/S0017-9310(01)00143-0)
- WANG, S., ZHANG, H., CHEN, H., ZHONG, Y., & YUE, X. (2020). A numerical model of the open-width coupling drying process for cotton fabrics based on the theory of heat and mass transfer in porous media. *Textile Research Journal*, 90(13), 1639-1657. <https://doi.org/10.1177/0040517519891706>
- WEI, L.-Y., QI, H., LI, G.-J., & ZHANG, W.-J. (2021). Improved teaching-learning-based optimization for estimation of temperature-dependent radiative properties of semitransparent media. *International Journal of Thermal Sciences*, 161, 106694. <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2020.106694>
- WEI, Z., LEE, K.-M., TCHIKANDA, S. W., ZHOU, Z., & HONG, S.-P. (2003). Effects of radiative transfer modeling on transient temperature distribution in semitransparent glass rod. *Journal of Heat Transfer*, 125(4), 635-643. <https://doi.org/10.1115/1.1565081>
- WELLELE, O., ORLANDE, H. R. B., RUPERTI, N., COLAÇO, M. J., & DELMAS, A. (2006). Coupled conduction-radiation in semi-transparent materials at high temperatures. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 67(9), 2230-2240. <https://doi.org/10.1016/j.jpcs.2006.06.007>
- YANG, Y. S., HOWELL, J. R., & KLEIN, D. E. (1983). Radiative Heat Transfer Through a Randomly Packed Bed of Spheres by the Monte Carlo Method. *Journal of Heat Transfer*, 105(2), 325-332. <https://doi.org/10.1115/1.3245582>
- ZEGHONDY, B., IACONA, E., & 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), 2810-2819. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2006.02.034>
- ZENG, J. S. Q., GREIF, R., STEVENS, P., AYERS, M., & HUNT, A. (1996). Effective optical constants n and extinction coefficient of silica aerogel. *Journal of Materials Research*, 11(3), 687-693. <https://doi.org/10.1557/JMR.1996.0083>
- ZHAO, J., & LIU, L. H. (2007). Spectral Element Approach for Coupled Radiative and Conductive Heat Transfer in Semitransparent Medium. *Journal of Heat Transfer*, 129. <https://doi.org/10.1115/1.2755061>
- ZHAO, J.-J., DUAN, Y.-Y., WANG, X.-D., ZHANG, X.-R., HAN, Y.-H., GAO, Y.-B., LV, Z.-H., YU, H., & BU-XUAN, W. (2013). Optical and radiative properties of infrared opacifier particles loaded in silica aerogels for high temperature thermal insulation. *International Journal of Thermal Sciences*, 70, 54-64. <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2013.03.020>
- ZHAO, S., DONG, J., MONTE, C., SUN, X., & ZHANG, W. (2020). New phase function development and complete spectral radiative properties measurements of aerogel infused fibrous blanket based on simulated annealing algorithm. *International Journal of Thermal Sciences*, 154, 106407. <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2020.106407>

Cyril DAOÛT

Modélisation des propriétés radiatives spectrales de microstructures poreuses réfractaires

Résumé :

Les milieux poreux céramiques sont, depuis plusieurs décennies, largement utilisés dans les applications hautes températures du fait de leur très bonnes capacités d'isolation thermique. L'évolution des moyens de calcul informatiques a conduit au développement de modèles numériques performants permettant de prédire les champs de température et de flux auxquels ces matériaux sont soumis en régime de fonctionnement. Néanmoins, il subsiste encore des cas d'études pour lesquels ces modèles ne sont pas adaptés et ne permettent pas de rendre compte de la physique des transferts thermiques avec suffisamment de fidélité. Les matériaux semi-transparents, régulièrement utilisés dans les applications hautes températures, en sont un exemple concret. En effet, le comportement radiatif de ces matériaux varie à la fois avec la longueur d'onde du rayonnement électromagnétique et avec la température. Ainsi, avec des modèles de transferts thermiques gris, pour lesquels les caractéristiques radiatives sont considérées constantes sur tout le domaine spectral quelle que soit la température, il n'est pas possible de prédire correctement le comportement thermique réel d'un milieu semi-transparent. L'objectif principal de cette thèse a donc été de développer un modèle du transfert thermique couplé conducto-radiatif prenant en compte la dépendance spectrale des échanges radiatifs. Ce modèle permet alors de simuler plus précisément, en régime transitoire et à des températures élevées, le comportement thermique de volumes numériques représentatifs de milieux semi-transparents multiphasiques.

Dans un premier temps, une nouvelle méthodologie permettant l'identification, en fonction de la température, de l'indice de réfraction complexe spectral intrinsèque des microconstituants (ou phases) du milieu semi-transparent a été développée. Cette méthodologie, qui combine outils numériques (génération de milieux, lancer de rayons par méthode de Monte-Carlo) et expérimentaux (spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier) offre la possibilité d'extraire des caractéristiques radiatives à une échelle microscopique à partir de mesures réalisées à l'échelle macroscopique. Appliquée à un matériau multiphasique, il a ainsi été possible d'identifier les contributions radiatives de chacune des phases solides en présence, contrairement aux méthodes plus classiques ne permettant qu'une identification de caractéristiques effectives. Les indices de réfraction complexes spectraux ainsi identifiés ont pu, dans un second temps, être utilisés dans un code de calcul de transferts conducto-radiatifs, en les attribuant à chaque voxel (ou maille) associé à une phase d'un volume numérique représentatif du matériau étudié. Des modèles à bandes spectrales ont alors été implémentés dans le code de calcul, en régime stationnaire et transitoire, pour prendre en compte l'évolution spectrale des caractéristiques radiatives des microconstituants du matériau semi-transparent. Ces adaptations ont finalement permis de reproduire numériquement des comportements thermiques complexes observés expérimentalement et qui ne sont pas prévisibles par des modèles gris classiques.

Mots clés : couplage conducto-radiatif, propriétés radiatives spectrales, matériaux numériques, spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier, lancer de rayons Monte-Carlo

Simulation of the spectral radiative properties of porous refractory microstructures

Abstract :

For several decades now, porous ceramic media have been widely used in high temperature processes because of their strong insulation ability. The evolution of computational means has led to the development of effective numerical models, allowing the prediction of how temperature and flux field materials are affected in operating regimes. However, there still are study cases where these models are not suitable and do not account for the physics of thermal transfers with enough accuracy. Semi-transparent materials, frequently used in high temperature applications, are a tangible example. Indeed, the radiative behavior of such materials varies both with the electromagnetic radiation wavelength and temperature. It is then impossible to correctly predict the real thermal behavior of a semi-transparent material from grey thermal transfer models, where radiative characteristics are considered constant over the whole spectral domain and at any given temperature. Thus, the main goal of this thesis was to develop a conducto-radiative thermal transfer model where the spectral dependency of radiative exchanges is taken into account. This model enables the accurate simulation of the thermal behavior when considering numerical representative volumes of semi-transparent media in transitory regime and at high temperatures. Firstly, a new methodology was developed to identify the spectral complex refractive index of the microconstituants of semi-transparent media with temperature. This methodology, which combines numerical tools (media generation, Monte-Carlo ray tracing) and experimental tools (infrared Fourier's transform spectroscopy), offers the possibility of extracting radiative characteristics at a microscopic scale from macroscopic size measurements. When applied to a multiphasic material, this methodology made it possible to identify the radiative contribution of each solid phase separately, unlike classical methods that only allow the identification of effective characteristics. Secondly, the identified spectral complex refractive indices were inputted into a conducto-radiative transfer code in which they were assigned to every voxel (or mesh) associated to numerical volume phase, representative of the studied material. Spectral band models were then implemented in the thermal transfers code, both in stationary and transitory regime, to take into account the spectral evolution of the semi-transparent microconstituants' radiative characteristics. These adjustments eventually enabled the simulation of complex thermal behaviors, observed experimentally, that cannot be predicted with classical grey models.

Keywords : conducto-radiative coupling, spectral radiative properties, numerical materials, Fourier's transform infrared spectroscopy, Monte-Carlo ray tracing



CEA Le Ripault,
BP 16,
37260 Monts

CEMHTI, UPR 3079,
1D av. de la recherche scientifique,
45071 Orléans

