

# CARACTERISATION RADIATIVE DE MILIEUX POREUX PAR UNE METHODE STOCHASTIQUE

Marie ZARROUATI<sup>1,2\*</sup>, Franck ENGUEHARD<sup>1</sup>, Jean TAINÉ<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire EM2C, UPR 288 du CNRS, Ecole Centrale Paris, Grande Voie des Vignes, F-92295 Châtenay-Malabry Cedex

<sup>2</sup>Centre de Recherche Claude Delorme-Air Liquide, 1 Chemin de la porte des Loges, Les loges en Josas, BP 126, 78 354 Jouy-en-Josas

\*(auteur correspondant : marie.zarrouati@ecp.fr)

**Résumé** – Le but de cette étude est de caractériser les propriétés radiatives d'un milieu poreux fortement hétérogène et anisotrope. Une approche statistique a été adoptée afin de déterminer les fonctions de distribution cumulée d'extinction, d'absorption et de diffusion ainsi que les fonctions de phase de diffusion à partir de la morphologie du milieu et de ses caractéristiques locales. La caractérisation complète a permis de montrer qu'au voisinage des parois, la loi de Beer n'est pas vérifiée. Une expression simple de la fonction de phase a été numériquement démontrée.

## 1. Introduction

Les milieux poreux sont aujourd'hui utilisés dans de plus en plus d'applications industrielles nécessitant de grandes surfaces d'échange. En particulier, dans l'industrie chimique, certains procédés sont basés sur des réactions catalytiques où il est essentiel d'augmenter les surfaces actives. Ces procédés catalytiques requièrent de surcroît des températures élevées. On peut citer par exemple les procédés de reformage de méthane pour la production d'hydrogène conçus et opérés par Air Liquide : les gaz réactifs circulent au sein de réacteurs tubulaires dans lesquels un empilement de pastilles catalytiques peut être assimilé à un milieu poreux. Ces réacteurs sont situés dans une chambre de combustion permettant d'apporter aux gaz réactifs la chaleur requise pour provoquer les réactions chimiques.

Aux températures de fonctionnement de ces réacteurs (environ 800°C), le transfert radiatif est un mode de transfert thermique prédominant. La compréhension et la modélisation de ces transferts radiatifs sont indispensables pour l'optimisation des procédés et le design de nouveaux réacteurs. A l'échelle des pores, les mécanismes de transfert radiatif sont bien connus, mais il est impensable de résoudre de façon exacte le problème car le coût en calcul est trop important. Il est donc nécessaire de passer par une étape d'homogénéisation, c'est-à-dire d'assimiler le milieu poreux (constitué ici d'une phase fluide transparente et d'une phase solide opaque) à une phase continue semi-transparente. La grande difficulté de cette étape réside alors dans l'estimation des propriétés radiatives du milieu homogénéisé (afin de décrire l'extinction, la diffusion et l'absorption).

Par ailleurs, dans des réacteurs tubulaires catalytiques tels que ceux utilisés par Air Liquide, l'empilement des pastilles recouvertes de catalyseur est perturbé par la présence des parois des tubes. Au voisinage de ces parois sur une distance correspondant à quelques diamètres de pastilles, un fort gradient de porosité s'établit. De plus, la paroi affecte le caractère aléatoire de l'empilement : les pastilles s'ordonnent ce qui induit des oscillations amorties de la porosité. La complexité du milieu due aux effets de bord affecte très certainement les échanges radiatifs.

Diverses méthodes ont été adoptées pour déterminer les propriétés radiatives d'un milieu poreux [1]. Une approche répandue consiste à identifier les propriétés radiatives par comparaison de données de référence avec les prédictions données par un modèle de transfert radiatif donné. Les données de référence peuvent être des données expérimentales (transmittances ou réflectances [2-4]) ou des résultats de simulations numériques (par tracé de rayons ou Monte Carlo [5, 6]). Il existe plusieurs limites à ces méthodes [7] : tout d'abord, les paramètres ainsi déterminés dépendent du modèle de transfert radiatif choisi. De plus, lorsque les données de référence sont acquises expérimentalement, il faut ajouter une incertitude due à la mesure. Enfin, la définition de ces propriétés radiatives repose implicitement sur l'hypothèse de comportement beerien du milieu homogénéisé. Cette hypothèse est pourtant discutable.

En effet, dans cet empilement de pastilles, hétérogène et anisotrope, il n'est pas du tout évident que la loi de Beer-Lambert est vérifiée. Les propriétés radiatives classiques (coefficients d'extinction, d'absorption et de diffusion) n'ont alors plus de sens. Il faut alors recourir à des définitions plus générales pour caractériser le comportement radiatif du milieu avant de conclure quant au comportement beerien ou non de ce dernier. Cette démarche a été adoptée par Tancrez et al [8] qui ont proposé de déterminer des fonctions de distribution radiatives à partir de la morphologie du milieu poreux et des propriétés radiatives locales des phases le constituant. Par identification, on peut ensuite vérifier la validité de l'hypothèse beerienne et enfin déterminer les paramètres radiatifs effectifs de la phase homogénéisée. Cette méthode a depuis été appliquée à des milieux anisotropes [9, 10].

Dans le cas d'un milieu non beerien, les propriétés radiatives classiques ne peuvent être définies, et l'équation de transfert radiatif (ETR) sous sa forme habituelle devient caduque. Il faut alors adopter un point de vue plus général pour décrire le transfert radiatif à partir des fonctions de distribution cumulée d'extinction, de diffusion et d'absorption, ainsi que des fonctions de phase. Une équation de transfert généralisée (GRTE) a été introduite récemment par Taine et Iacona [7] et permet de quantifier le transfert radiatif à partir de ces fonctions de distribution radiatives sans avoir à invoquer l'hypothèse beerienne.

L'objectif de cette étude est donc double. Il s'agit tout d'abord de développer des méthodes permettant le calcul des puissances radiatives au sein d'un milieu non beerien. Cette étape repose sur une technique d'homogénéisation pour l'estimation des propriétés radiatives du milieu, puis sur la résolution de la GRTE. Dans un second temps, on cherchera à examiner l'impact des effets de bord sur l'équilibre radiatif au sein des réacteurs. Dans cet article, nous nous limiterons au calcul des propriétés radiatives d'un réacteur catalytique constitué d'un empilement désordonné de pastilles sphériques.

## **2. Partie théorique : homogénéisation statistique**

L'homogénéisation consiste à assimiler le milieu poreux, composé d'une phase transparente et d'une phase opaque, à une phase semi-transparente continue. Dans le milieu réel, la phase de propagation est transparente et les phénomènes radiatifs se produisent aux interfaces, où les rayons sont absorbés ou réfléchis. Après l'homogénéisation, la phase de propagation est semi-transparente et les rayons peuvent être diffusés ou absorbés en volume. La méthode d'homogénéisation utilisée ici est valide quelle que soit la complexité du milieu traité à condition que les lois de l'optique géométrique s'appliquent et que les propriétés radiatives locales et la morphologie du milieu soit connues avec une résolution suffisante.

## 2.1. Définition des fonctions de distribution radiatives

### 2.1.1. Fonction de distribution cumulée d'extinction

On définit la fonction de distribution cumulée d'extinction  $G_{ext}(s, s', \theta)$  par la probabilité qu'un photon émis au point M du milieu homogénéisé d'abscisse curviligne  $s$  dans la direction définie par l'angle  $\theta$  soit éteint avant d'arriver au point M' d'abscisse  $s'$ . En d'autres termes, il s'agit de la fonction de distribution cumulée des longueurs de tous les segments [MI] qui joignent un point M d'abscisse  $s$  de la phase transparente à un point I d'abscisse  $s'$  situé à l'interface phase transparente / phase opaque.  $\theta$  repère la direction de propagation du rayon de M à I (défini par rapport à l'axe horizontal  $x$ ). Le problème étant invariant par rotation autour de l'axe  $x$ , les fonctions de distribution sont invariantes par rapport à l'angle azimutal  $\phi$ .

Une expression de  $G_{ext}(s, s', \theta)$  est donc :

$$G_{ext}(s, s', \theta) = \frac{1}{V_f} \int_0^{s'-s} \int_{V_f} \delta[s'' - s_0(\mathbf{r}, \mathbf{u})] \cdot d\mathbf{r} \cdot ds'' \quad (1)$$

avec  $\delta$  la distribution de Dirac,  $s_0(\mathbf{r}, \mathbf{u}) = MI$ , et l'intégration portant sur la phase fluide de volume  $V_f$  [10]. Dans cette configuration phase opaque / phase transparente,  $G_{ext}(s, s', \theta)$  ne dépend que de la géométrie du milieu poreux et est donc indépendante de la longueur d'onde.

### 2.1.2. Fonctions de distribution cumulée d'absorption et de diffusion

On définit de même les fonctions de distribution cumulée d'absorption  $P_a(s, s', \theta)$  et de diffusion  $P_{sc}(s, s', \theta)$  par la probabilité qu'un photon émis au point M du milieu homogénéisé d'abscisse curviligne  $s$  dans la direction définie par l'angle  $\theta$  soit respectivement absorbé ou diffusé avant d'arriver au point M' d'abscisse  $s'$ .

On a par définition :

$$G_{ext}(s, s', \theta) = P_a(s, s', \theta) + P_{sc}(s, s', \theta) \quad (2)$$

Si on considère une loi de réflexion diffuse aux interfaces phase opaque / phase transparente avec  $\alpha$  l'absorptivité locale de l'interface (on la considère indépendante de la longueur d'onde), les fonctions de distribution cumulée  $P_a(s, s', \theta)$  et  $P_{sc}(s, s', \theta)$  sont directement proportionnelles à  $G_{ext}(s, s', \theta)$  [10]:

$$\begin{aligned} P_a(s, s', \theta) &= \alpha \cdot G_{ext}(s, s', \theta) \\ P_{sc}(s, s', \theta) &= (1 - \alpha) \cdot G_{ext}(s, s', \theta) \end{aligned} \quad (3) \text{ et } (4)$$

### 2.1.3. Fonction de phase de diffusion

On définit enfin la fonction de phase de diffusion comme étant la distribution des directions de diffusion  $\mathbf{u}'$  d'un rayon incident dans la direction  $\mathbf{u}$ . Elle est déterminée à partir des lois de diffusion des interfaces phase opaque / phase transparente. Comme on suppose une

loi de réflexion diffuse, la réflectivité bidirectionnelle ne dépend pas des directions d'incidence et de réflexion.

Elle s'exprime donc :

$$p(\mathbf{u} \rightarrow \mathbf{u}') \cdot d\Omega = 4\pi \cdot \frac{\int (-\mathbf{u} \cdot \mathbf{n}) \cdot d\mathbf{r} \cdot d\Omega}{\int \int_{4\pi} (-\mathbf{u} \cdot \mathbf{n}) \cdot d\mathbf{r} \cdot d\Omega} \quad (5)$$

L'intégrale commune au numérateur et au dénominateur porte sur la phase fluide, et  $\mathbf{n}$  représente la normale au point d'impact I de l'interface, orientée vers la phase fluide.

## 2.2. Cas beerien

Par définition, la fonction de distribution  $G_{\text{ext}}(s, s', \theta)$  est le complément à 1 de la transmittivité  $\tau(s, s', \theta)$ . Or dans un milieu beerien, la probabilité d'extinction d'un photon dans un intervalle  $[s, s+ds]$  est  $\beta \cdot ds$  où  $\beta$  représente le coefficient d'extinction.

La transmittivité d'une colonne homogène isotherme est alors

$$\tau(s, s', \theta) = \exp(-\beta \cdot s(\mathbf{u})) \quad (6)$$

Par conséquent :

$$g_{\text{ext}}^{\text{Be}}(s, s', \theta) = 1 - \exp(-\beta \cdot s(\mathbf{u})) \quad (7)$$

Si les fonctions de distribution cumulée d'extinction calculées dévient de cette expression, alors l'hypothèse beerienne n'est pas valide et on doit faire appel à la GRTE pour évaluer le flux radiatif au sein du milieu.

## 3. Méthodes numériques

### 3.1. Génération des empilements

Les empilements ont été générés avec le logiciel DigiPac (Structure Vision). Ce logiciel a été développé à l'université de Leeds (UK) à partir d'un algorithme d'empilement [11-15]. Ce dernier repose sur une marche aléatoire dans un espace voxelisé. L'objet voxelisé se déplace aléatoirement sur une grille 3D selon l'une des 26 directions possibles. Si le déplacement a une composante vers le haut, il est accepté avec une certaine probabilité de rebond fixée par l'utilisateur, ce qui permet aux objets de sédimenter tout en explorant l'espace. De plus, les collisions entre deux objets sont détectées et évitées. Cet algorithme a été testé sur des objets de formes très variées avec de bons résultats [15] et permet ainsi de générer des empilements complexes avec un temps de calcul raisonnable.

Le logiciel permet à l'utilisateur de fixer de nombreux paramètres tels que la probabilité de rebond, le débit entrant d'objets dans la grille, le point d'entrée, une condition de périodicité dans l'empilement, la forme et les tailles des objets empilés et du contenant, etc ... Un exemple d'empilement de billes de diamètre 20 mm dans une boîte de 600\*600\*600 mm<sup>3</sup> est présenté sur la figure 1. Par la suite, on ne considérera qu'une portion de cet empilement avec x compris entre 0 et 500 mm, y entre 100 et 500 mm, et z entre 100 et 500 mm afin de traiter

un milieu semi-infini selon  $x$  (une paroi en  $x = 0$ ) et infini selon  $y$  et  $z$  (pas d'impact des parois sur l'empilement).

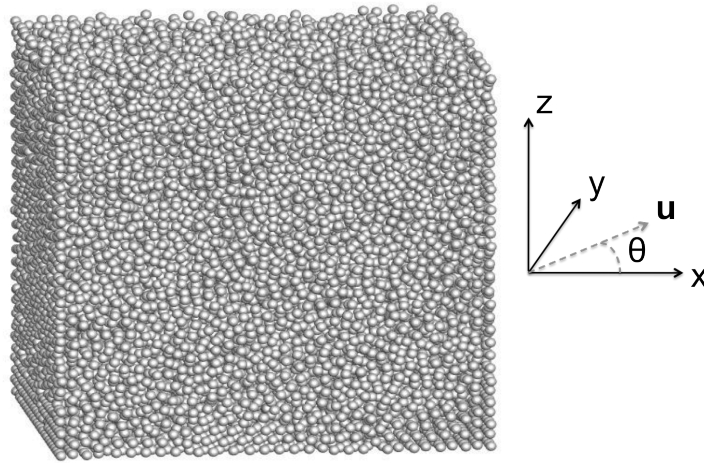


Figure 1 : Empilement généré par DigiPac avec des billes de 20 mm de diamètre dans une boîte de  $600*600*600 \text{ mm}^3$ . Le système d'axes et l'angle  $\theta$  sont aussi représentés.

### 3.2. Méthode de Monte Carlo

Les fonctions de distribution cumulée d'extinction et les fonctions de phase sont calculées par une méthode de Monte Carlo stochastique. Un photon est tiré à partir d'un point de la phase fluide et d'une direction aléatoire. Sa trajectoire est suivie jusqu'à ce qu'il rencontre un obstacle. La distance d'extinction (entre le point de départ et le point d'impact) est alors calculée. Puis une direction de réflexion, respectant la condition de non pénétration du rayon dans la phase solide, est tirée. Afin d'atteindre une précision suffisante, quelques millions de tirs sont nécessaires. Pour réduire le temps de calcul, une parallélisation des codes est donc indispensable (à l'aide des bibliothèques OpenMPI). Le calcul des fonctions de distribution cumulée d'extinction et des fonctions de phase s'ensuit aisément. Les fonctions sont normalisées en accord avec les équations (1) et (5). Les équations (3) et (4) permettent enfin de calculer les fonctions de distribution cumulée d'absorption et de diffusion.

## 4. Résultats des simulations numériques

### 4.1. Caractérisation morphologique

Le profil de porosité selon l'axe  $x$  a été calculé à partir de la description analytique de l'empilement généré par DigiPac (figure 2). La porosité varie fortement au voisinage de la paroi où on observe des oscillations. En effet, la présence de la paroi perturbe l'empilement qui perd son caractère aléatoire : les billes s'organisent afin d'être tangentes à la paroi et l'empilement reste organisé sur une distance correspondant à quelques diamètres de bille. Les deux premiers maxima sont donc situés respectivement à un et deux diamètres de bille de la paroi. Les oscillations sont ensuite amorties, et la porosité tend rapidement vers une valeur moyenne de 0,4. Ce résultat est en accord avec les corrélations empiriques de C. G. du Toit

[16], ces dernières ayant été introduites à partir de mesures expérimentales de profils de porosité. Cela permet par ailleurs de valider les empilements générés par DigiPac.

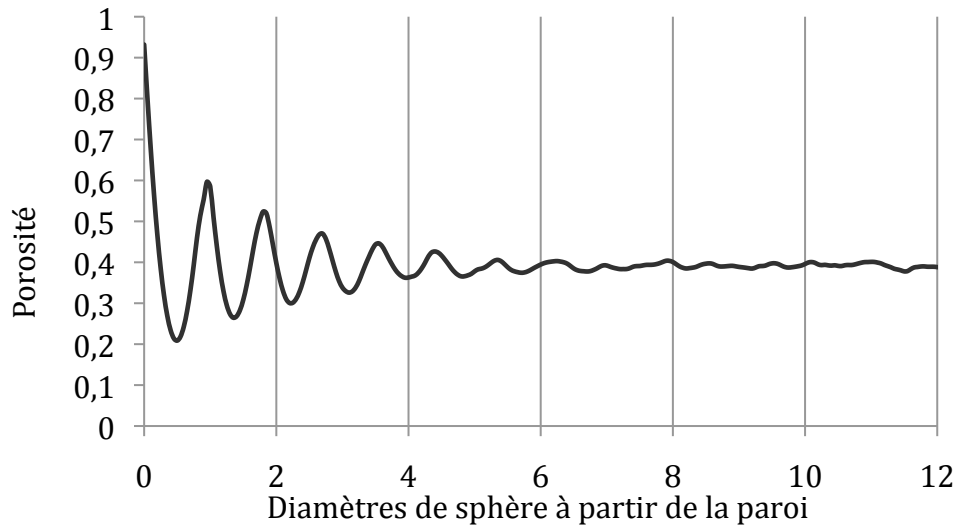


Figure 2 : Variation axiale de la porosité de l'empilement généré par le logiciel DigiPac.

## 4.2. Caractérisation radiative

### 4.2.1. Fonctions de distribution cumulée d'extinction

Les fonctions de distribution cumulée d'extinction  $G_{\text{ext}}(s, s', \theta)$  sont calculées par la méthode détaillée à la partie 3.2. A titre d'exemple, la fonction de distribution d'extinction pour  $x = 0$  (i.e. à la paroi) et  $\cos(\theta) = 0$  (i.e. dans le plan de la paroi) est représentée à la figure 3.

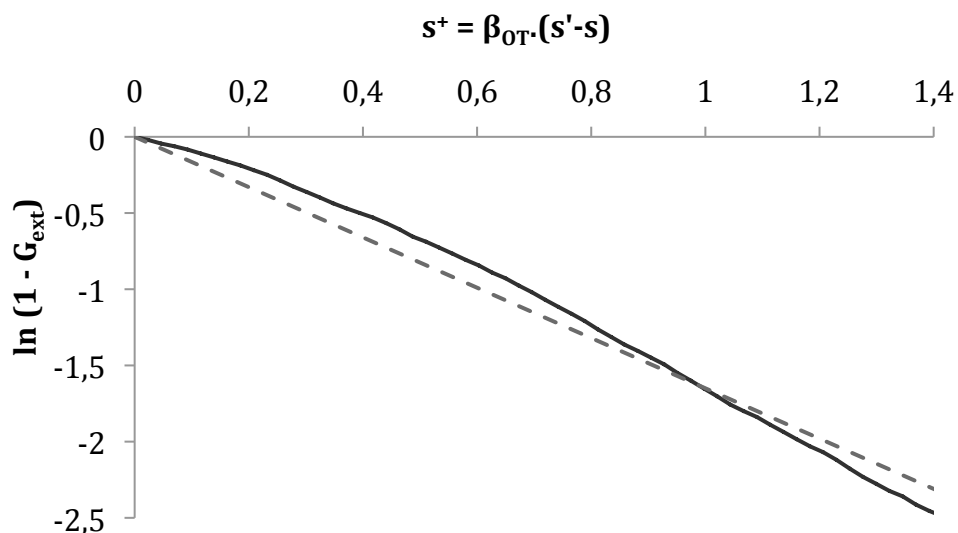


Figure 3 : Fonction de distribution cumulée d'extinction  $G_{\text{ext}}$  pour  $x = 0$  et  $\theta = 90^\circ$  en fonction de l'épaisseur optique  $s^+$ . En trait plein, la fonction de distribution calculée par simulation numérique ; en pointillé, la régression linéaire correspondant au cas beerien. L'épaisseur optique est calculée à partir de  $\beta_{\text{OT}}$ , le coefficient d'extinction à la limite optiquement mince [10].

Si l'hypothèse beerienne était vérifiée, alors la fonction  $\ln(1 - G_{\text{ext}})$  représentée en trait plein serait une droite d'après l'équation (7). On voit donc ici très clairement que le milieu proche de la paroi n'est pas beerien et que par conséquent la définition des coefficients radiatifs classiques n'est pas possible.

#### 4.2.2. Fonctions de phase

Les fonctions de phase de diffusion sont calculées comme expliqué dans les parties précédentes. On démontre numériquement que ces fonctions ne dépendent que de l'angle de diffusion (angle compris entre la direction incidente et la direction réfléchiée). La figure 4 représente une fonction de phase de diffusion loin de la paroi.

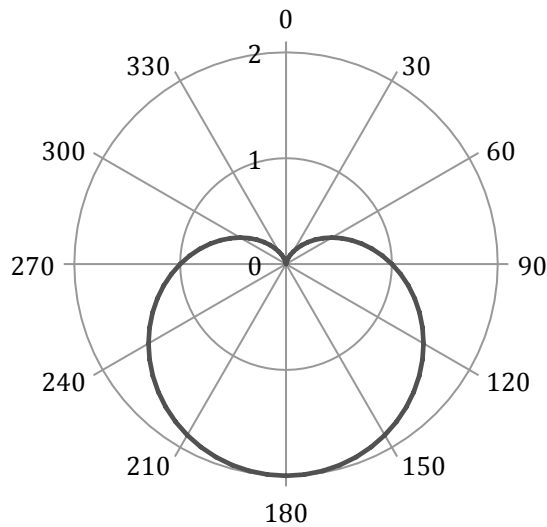


Figure 4 : fonction de phase de diffusion en fonction de l'angle de diffusion.

Ce résultat est en accord avec [8] où une expression simple avait été obtenue numériquement ; en revanche, il n'a jusqu'ici pas été démontré théoriquement à notre connaissance.

## 5. Conclusion

La caractérisation des propriétés radiatives d'un milieu poreux fortement hétérogène et anisotrope a été réalisée. Le caractère non beerien du milieu au voisinage de la paroi a été démontré, rendant ainsi impossible la définition de coefficients radiatifs classiques ainsi que l'utilisation d'un modèle de transfert reposant sur la RTE pour le calcul des flux radiatifs. Un modèle de transfert généralisé a été introduit par Taine et al [7, 17]. La prochaine étape de cette étude consistera donc à résoudre la GRTE par une méthode de Monte Carlo stochastique ; puis nous examinerons l'impact des parois sur les transferts radiatifs dans notre empilement d'étude.

## Références

- [1] D. Baillis, J.F. Sacadura, Thermal Radiation Properties of Dispersed Media: Theoretical Prediction and Experimental Characterization, *JQSRT*, 67 (2000) 327–363.
- [2] T. Hendricks, J. Howell, Absorption / Scattering Coefficients and Scattering Phase Function in Reticulated Porous Ceramics, *J. Heat Transfer*, 118 (1996) 79-87.
- [3] M. Loretz, R. Coquard, B. Baillis, E. Maire, Metallic foams: Radiative properties/comparison between different models, *JQSRT*, 109 (2008) 16-27.
- [4] D. Baillis, M. Arduini-Schuster, J.F. Sacadura, Identification of spectral radiative properties of polyurethane foam from hemispherical and bi-directional transmittance and reflectance measurements, *JQSRT*, 73 (2002) 297–306
- [5] C. Argento, D. Bouvard, A ray tracing method for evaluating the radiative heat transfer in porous media, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 15-39 (1996) 3175-3180.
- [6] Y. Yang, J. Howell, D. Klein, Radiative Heat Transfer Through a Randomly Packed Bed of Sphere by the Monte Carlo Method, *J. Heat Transfer*, 105 (1983) 325-332.
- [7] J. Taine, E. Iacona, Upscaling Statistical Methodology for Radiative Transfer in Porous Media: New Trends, *J. Heat Transfer*, 134 (2012) 031012
- [8] M. Tancrez, J. Taine, Direct Identification of absorption and scattering coefficients and phase function of a porous medium by a Monte Carlo technique, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 47 (2004) 373-383.
- [9] F. Bellet, E. Chalopin, F. Fichot, E. Iacona, J. Taine, RDFI determination of anisotropic and scattering dependent radiative conductivity tensors in porous media: Application to rod bundles, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 52 (2009) 1544-1551.
- [10] M. Chahlaoui, Modélisation du rayonnement thermique dans un cœur de réacteur nucléaire dégradé en présence de vapeur et de gouttes d'eau, Thèse de doctorat, Laboratoire EM2C, Ecole Centrale Paris (2011).
- [11] X. Jia, M. Gan, R. A. Williams, D. Rhodes, Validation of a digital packing algorithm in predicting powder packing densities, *Powder Technology*, 174 (2007) 10-13.
- [12] R. Caulkin, A. Ahmad, M. Fairweather, X. Jia, R. A. Williams, Digital predictions of complex cylinder packed columns, *Computers and Chemical Engineering*, 33 (2009) 10-21.
- [13] R. Caulkin, M. Fairweather, X. Jia, R. A. Williams, A Numerical Case Study of Packed Columns, 15<sup>th</sup> European Symposium on Computer Aided Process Engineering (2005).
- [14] R. Caulkin, M. Fairweather, X. Jia, A. Ahmad, R. A. Williams, Application of a digital packing algorithm to cylindrical pellet-packed beds, 18<sup>th</sup> European Symposium on Computer Aided Process Engineering (2008).
- [15] X. Jia, R. A. Williams, A packing algorithm for particles of arbitrary shapes, *Powder Technology*, 120 (2001) 175-186.
- [16] C. G. du Toit, Radial variation in porosity in annular packed beds, *Nuclear Engineering and Design*, 238 (2008) 3073-3079.
- [17] J. Taine, F. Bellet, V. Leroy, E. Iacona, Generalized radiative transfer equation for porous medium upscaling: Application to the radiative Fourier law, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 53 (2010) 4071-4081.