

# Transfert radiatif dans les gaz

---

<b>Introduction</b> . . . . .	<b>10</b>
<b>2.1 Introduction au transfert radiatif</b> . . . . .	<b>10</b>
2.1.1 Nature du rayonnement thermique . . . . .	10
2.1.2 Descriptions microscopique, mésoscopique et macroscopique	12
2.1.3 La luminance : descripteur mésoscopique du transfert radiatif	14
2.1.4 Grandeurs intégrées de la luminance . . . . .	17
<b>2.2 Équation du transfert radiatif en milieu participant</b> . . .	<b>18</b>
2.2.1 Transport de photons sans interaction avec le milieu . . .	19
2.2.2 Interactions rayonnement/matière en milieu participant .	21
2.2.3 Formulation locale de l'équation du transfert radiatif . . .	27
2.2.4 Formulation intégrale de l'équation du transfert radiatif .	27
<b>2.3 Coefficient d'absorption en milieu gazeux</b> . . . . .	<b>33</b>
2.3.1 Mécanismes d'absorption et d'émission du rayonnement .	33
2.3.2 Raie d'absorption isolée . . . . .	34
2.3.3 Des transitions énergétiques au spectre d'absorption . . .	40
<b>Résumé du chapitre</b> . . . . .	<b>46</b>

## Introduction

Ce premier chapitre a pour but de présenter les éléments de physique nécessaires à l'étude du transfert radiatif en milieu gazeux. Il n'a pas pour prétention d'être exhaustif, mais a été pensé de sorte à introduire l'ensemble des concepts et modèles utilisés dans la suite de ce manuscrit. Le lecteur à l'aise avec ces concepts pourra passer directement au [Chap. 3](#). Au contraire, le lecteur désireux d'approfondir ses connaissances relatives à la physique du rayonnement pourra s'orienter vers les ouvrages de référence [[Chandrasekhar, 1960](#), [Goody et Yung, 1996](#), [Siegel \*et al.\*, 2011](#), [Modest, 2013](#)].

Après un bref rappel de la nature et des représentations du rayonnement thermique, ce dernier sera introduit dans sa description mésoscopique. La luminance, grandeur de base et descripteur mésoscopique du transfert radiatif pourra ainsi être abordée. Enfin, les principales grandeurs intégrées de la luminance seront introduites.

La seconde section, quant à elle, traitera des interactions entre rayonnement et *milieu participant* ou *semi-transparent*. Cela permettra de formuler l'Équation différentielle du Transfert Radiatif (ETR), cas particulier des équations de transport (plus connues sous le terme d'équations de Boltzmann). La solution intégrale de l'équation du transfert radiatif sera enfin abordée, permettant ainsi de présenter les conditions et phénomènes se produisant aux limites du système d'intérêt.

Enfin, l'ultime section de ce chapitre concernera la dépendance spectrale du coefficient d'absorption, constituant probablement la principale difficulté de l'étude du rayonnement dans les gaz. Ce sera l'occasion d'aborder les mécanismes sous-jacents d'absorption et d'émission, les notions de transitions énergétiques, de raies et de spectres d'absorption.

Outre les quelques ouvrages cités ci-dessus, la rédaction de ce chapitre est en partie inspirée des cours dispensés en Master 2 Recherche "Dynamique des Fluides, Énergétique et Transferts" [[Fournier et El Hafi, 2010](#)] et à l'École thématique "Rayonnement thermique en milieu semi-transparent - 2014" [[Blanco \*et al.\*, 2014](#), [André \*et al.\*, 2014](#), [Boulet \*et al.\*, 2014](#)].

## 2.1 Introduction au transfert radiatif

### 2.1.1 Nature du rayonnement thermique

Deux représentations coexistent lorsqu'il s'agit de décrire le transfert radiatif : les approches dites *ondulatoire* et *corpusculaire*<sup>1</sup>.

L'approche ondulatoire repose sur la théorie électromagnétique développée à la fin du XIX<sup>ème</sup> siècle par J.K. Maxwell. Le rayonnement est alors considéré comme une variation des champs électromagnétiques et est représenté comme un ensemble d'ondes monochromatiques définies pour une fréquence  $\nu$ , une longueur d'onde  $\lambda$  ou

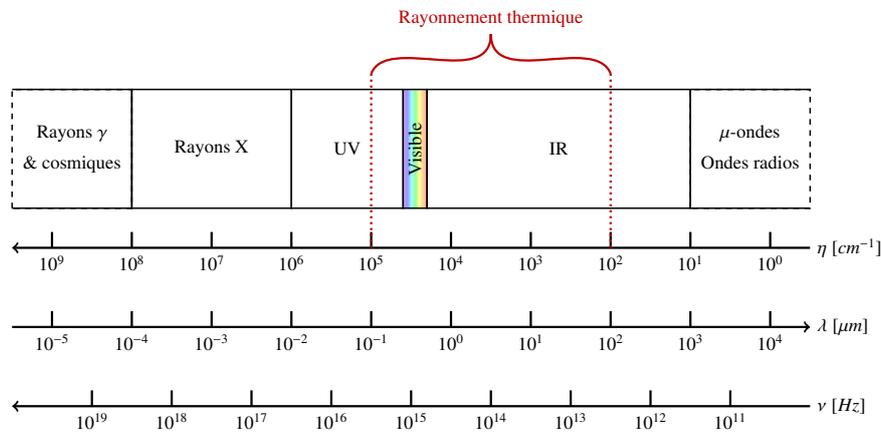
---

1. Cette dualité onde-corpuscule a été étendue à l'ensemble de la matière par L. de Broglie en 1924.

un nombre d'onde  $\eta$  donné. Ces différentes grandeurs sont liées par les relations :

$$\lambda = \frac{1}{\eta} = \frac{c}{\nu} \quad ; \quad \eta = \frac{1}{\lambda} = \frac{\nu}{c} \quad ; \quad \nu = \frac{c}{\lambda} = c\eta$$

où  $c$  est la vitesse du rayonnement dans le milieu considéré ( $c = c_0 = 299\,792\,458\text{ m/s}$  dans le vide et  $c = \frac{c_0}{n}$  dans les milieux d'indice de réfraction  $n$ ). Même si ces trois grandeurs peuvent être utilisées indifféremment, nous nous efforcerons dans ce manuscrit de privilégier la notion de nombre d'onde, qui est historiquement la plus usitée en spectroscopie moléculaire<sup>2</sup>. Au cours des découvertes, ces ondes monochromatiques ont été regroupées selon leur fréquence en plusieurs plages spectrales présentées à la Fig. 2.1.



**FIGURE 2.1** – Spectre électromagnétique. Les différentes plages spectrales sont schématisées en fonction du nombre d'onde  $\eta$ , de la longueur d'onde  $\lambda$  et de la fréquence  $\nu$ . Elles s'étendent des rayons cosmiques (les plus énergétiques) aux ondes radioélectriques (les moins énergétiques). Le rayonnement thermique s'étend approximativement sur la plage  $[10^2, 10^5] \text{cm}^{-1}$  et comprend une partie des ultraviolets, la totalité du rayonnement visible et le proche et moyen infrarouge.

La seconde approche dite corpusculaire, formalisée par M. Planck et A. Einstein au début du XX<sup>ème</sup> siècle, est à l'origine des principes de la mécanique quantique. Elle consiste à associer à toute onde électromagnétique monochromatique un corpuscule : le *photon*, de masse nulle et d'énergie  $E$  donnée par :

$$E = h\nu = \frac{hc}{\lambda} = hc\eta \quad (2.1)$$

où  $h = 6.62606957 \times 10^{-34} \text{J.s}$  est la *constante de Planck*.

Les représentations corpusculaires et ondulatoires sont complémentaires. Aucune d'entre elles ne permet de décrire l'ensemble des phénomènes liés à la physique du rayonnement. Aussi, selon les objets d'étude et les hypothèses posées, l'une ou l'autre sera privilégiée (par exemple, l'approche ondulatoire sera la plus appropriée pour l'étude des phénomènes de diffusion, alors que l'approche corpusculaire permettra

2. Il est fréquent de trouver dans la littérature les nombres d'onde écrits  $\nu$ .

d'expliquer l'effet photoélectrique). Nous nous concentrerons ici presque essentiellement sur l'approche corpusculaire du rayonnement qui, nous allons le voir, permettra une description mésoscopique et statistique du rayonnement, le plaçant dans des considérations propres à la physique du transport.

Comme illustré dans la Fig. 2.1, le rayonnement électromagnétique s'étend des rayons cosmiques aux ondes radios. Tout au long de ce manuscrit nous ne nous concentrerons que sur le rayonnement thermique couvrant le domaine des nombres d'onde allant approximativement de  $10^2$  à  $10^5 \text{ cm}^{-1}$  (une partie des ultraviolets, l'ensemble du visible et le proche et moyen infrarouge). Le rayonnement thermique est, au même titre que la conduction/diffusion, un mode de transfert de chaleur. Il présente cependant deux principales spécificités vis-à-vis de ses homologues :

- de par sa nature électromagnétique, le transfert d'énergie ne nécessite pas de milieu physique pour avoir lieu : deux surfaces placées dans le vide peuvent ainsi échanger de l'énergie.
- alors que les échanges thermiques conductifs/diffusifs sont fonction d'un gradient de température, les échanges par transfert radiatif dépendent d'une différence de températures élevées à la puissance 4, devenant ainsi prépondérants pour de fortes températures. Cela souligne en particulier l'importance de la modélisation du rayonnement dans des applications liées à la combustion.

## 2.1.2 Descriptions microscopique, mésoscopique et macroscopique

Considérer le rayonnement selon une approche corpusculaire consiste à percevoir ce transfert d'énergie comme ayant pour vecteur un très grand nombre de quanta : les *photons*. Lorsqu'il s'agit d'étudier un si grand nombre de particules, plusieurs descriptions (ou modélisations) sont susceptibles d'être employées : les *descriptions microscopique, macroscopique et mésoscopique* [Piaud, 2007, Lachowicz, 2011, Dauchet, 2012]. Ces trois descriptions se différencient essentiellement par le choix des grandeurs descriptives du modèle. Il s'agit ici bien de descriptions et non d'échelles : passer d'une description microscopique à une description macroscopique ne signifie pas nécessairement considérer le système à une échelle plus globale. Ces trois types de descriptions tirent leur origine de la physique du transport corpusculaire. Aussi, elles seront ici présentées dans leur acception originelle. Leur extension au transfert radiatif sera ensuite discutée.

**Description microscopique** La description microscopique consiste à associer à chaque corpuscule, de façon déterministe, une position et une vitesse, pour un instant  $t$  donné. En considérant un champ de  $N$  particules dans une configuration tridimensionnelle, cela impliquerait donc, au moins  $6 \times N$  descripteurs ( $N$  jeux de deux vecteurs de dimension 3 : un pour la position et un pour la direction ayant tous pour seule variable le temps  $t$ ). Même si cette description semble idéale, la quantité d'information qu'elle requiert est très difficilement manipulable<sup>3</sup> et surtout

3. Afin de donner un ordre de grandeur, une simple surface de  $1\text{m}^2$  portée à  $300\text{K}$  peut émettre jusqu'à  $4.1 \times 10^{22}$  photons en une seconde, soit une quantité de  $2.5 \times 10^{23}$  variables décrivant

difficilement conceptualisable, d'autant plus si le transport est non-linéaire (si les particules interagissent entre-elles, *ex* : cinétique des gaz).

**Description mésoscopique** Alors que la description microscopique repose sur une approche discrète du modèle (chaque molécule est considérée en tant que telle), la description mésoscopique s'appuie sur des concepts de continuité. Le descripteur du système est désormais une fonction de distribution  $f(\mathbf{x}, \mathbf{v}, t)$  définie sur l'*espace des phases* (constitué de l'espace géométrique  $\mathcal{D}_{\mathbf{x}}$  et de l'espace des vitesses  $\mathcal{D}_{\mathbf{v}}$ ). Les positions  $\mathbf{x}$  et les vitesses  $\mathbf{v}$  deviennent alors, au même titre que le temps  $t$  des variables indépendantes. Cette approche est propre à la physique du transport corpusculaire et pose les concepts nécessaires à une approche de type statistique grâce la notion de distribution qui s'interprète comme la somme des densités de probabilité de présence de chaque particule dans l'espace des phases  $\{\mathcal{D}_{\mathbf{x}}, \mathcal{D}_{\mathbf{v}}\}$ . Elle est pertinente dans les cas où un grand nombre d'événements se répète, soit parce que le nombre de particules considérées est très grand soit parce que les particules subissent de très nombreuses interactions.

**Description macroscopique** Enfin, la description macroscopique repose également sur l'idée de distribution. Le descripteur  $F(\mathbf{x}, t)$  est toujours une fonction de distribution, mais est désormais défini uniquement sur l'espace géométrique  $\mathcal{D}_{\mathbf{x}}$ . Ce passage se traduit par une intégration sur le domaine des vitesses du descripteur mésoscopique et est souvent associé à une hypothèse d'isotropie. Une telle description se traduit donc par une perte conséquente de l'information relative aux vitesses des particules et devient ainsi plus difficilement applicable à des problèmes hors-équilibre. Toutefois, du fait de l'allègement du nombre de variables indépendantes (seulement  $\mathbf{x}$  et  $t$ ), cette description est peut-être la plus aisée à approcher. De surcroît, les approximations ou hypothèses associées à cette description (*ex* : l'approximation de diffusion) font le plus souvent appel à des images physiques courantes et intuitives (les température, masse volumique ou encore vitesse moyenne d'un fluide sont autant de grandeurs macroscopiques couramment manipulées). Cela explique notamment le fait que cette description et ses grandeurs associées sont souvent privilégiées dans les sciences pour l'ingénieur, du fait de la complexité des phénomènes en présence (en particulier lorsqu'il s'agit de phénomènes couplés). Plusieurs descripteurs macroscopiques du transfert radiatif seront présentés à la [Sec. 2.1.4](#).

L'étude du rayonnement reposera essentiellement ici sur des considérations mésoscopiques. Une telle description présente en effet un double avantage :

- elle permet une description des phénomènes à l'échelle du photon (qui feront l'objet de la [Sec. 2.2.2](#)). En effet, les informations relatives à la position et à la vitesse des particules à un instant donné sont contenues dans l'idée de distribution et il sera possible d'attribuer de façon statistique une vitesse et une position aux différents corpuscules d'intérêt.

---

le modèle. En imaginant que l'on parvienne idéalement à stocker chacune de ces variables dans un octet, il faudrait un espace disque de 250 milliards de téraoctets pour simplement contenir l'information des photons émis par la surface en une seconde.

- elle offre, par sa nature statistique, la capacité d'analyse des modélisations macroscopiques pour l'étude et la prise en compte de phénomènes collectifs, tout en conservant l'information relative aux distributions de vitesses.

Néanmoins, dès que l'occasion se présentera, nous nous appuyerons sur les deux autres descriptions qui permettront d'apporter d'autres images physiques, souvent plus manipulables ou intuitives.

### 2.1.3 La luminance : descripteur mésoscopique du transfert radiatif

La *luminance monochromatique*<sup>4</sup>  $L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)$  constitue la grandeur de base du transfert radiatif. D'un point de vue énergétique, il s'agit d'une puissance par unité de surface perpendiculaire à la direction  $\mathbf{u}$  considérée, par unité d'angle solide autour de la direction  $\mathbf{u}$  (*cf.* note ci-dessous), et par unité de nombre d'onde (ou de longueur d'onde, ou de fréquence). Elle s'exprime en  $Wm^{-2}sr^{-1}cm$ .

#### NOTE : Angle solide

L'angle solide est une généralisation à la troisième dimension de l'angle plan. Alors que l'angle plan (exprimé en radian) est égal au rapport de la longueur d'un arc de cercle sur son rayon, l'angle solide  $\Omega$  est défini comme le rapport d'une surface partielle de sphère  $S$  sur le carré de son rayon  $R$  :  $\Omega = S/R^2$ . Son unité, bien qu'adimensionnelle, est le stéradian noté *sr*. L'angle solide associé à une sphère est alors égal à  $4\pi$  et celui associé à un hémisphère à  $2\pi$ . L'angle solide élémentaire  $d\Omega$  (voir Fig. 2.2) correspond à la différentielle de la direction  $\mathbf{u}$  qui le porte et est donné par :

$$d\Omega = d\mathbf{u} = \frac{dS}{R^2} = \frac{R^2 d\theta \sin\theta d\phi}{R^2} = d\theta \sin\theta d\phi \quad (2.2)$$

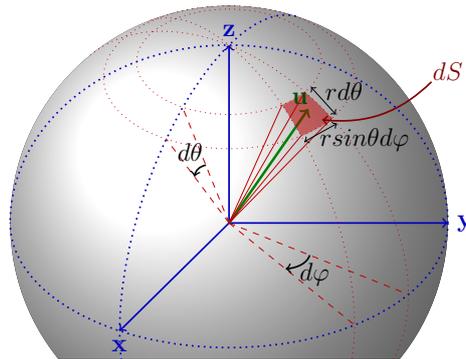


FIGURE 2.2 – L'angle solide élémentaire est donné par  $d\Omega = d\theta \sin\theta d\phi$

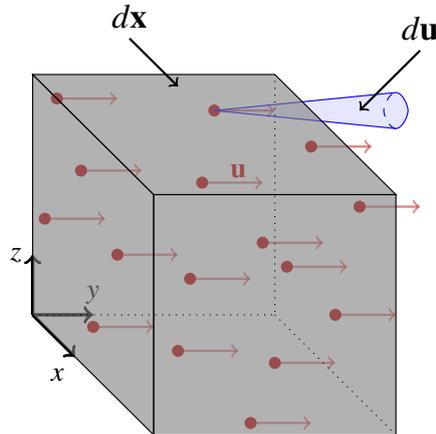
4. Il est fréquent de rencontrer dans la littérature internationale la luminance notée  $I_\eta$  (pour specific intensity).

La luminance monochromatique est en fait le *descripteur mésoscopique* du transfert radiatif. Elle est assimilable à la distribution  $f(\mathbf{x}, \mathbf{v}, t)$  à trois subtilités près :

- On peut généralement considérer que la norme de la vitesse des photons est localement constante. Il est donc possible de raisonner en directions  $\mathbf{u} \equiv [\theta, \phi]$  plutôt qu'en vitesses  $\mathbf{v} \equiv [v_x, v_y, v_z]$ , passant donc de l'espace des vitesses  $\mathcal{D}_{\mathbf{v}}$  à l'espace des directions  $\mathcal{D}_{\mathbf{u}}$ .
- À l'espace des positions  $\mathcal{D}_{\mathbf{x}}$  et des directions  $\mathcal{D}_{\mathbf{u}}$  se rajoute une dimension supplémentaire : celle des nombres d'onde  $\mathcal{D}_{\eta}$ , des longueurs d'onde  $\mathcal{D}_{\lambda}$  ou des fréquences  $\mathcal{D}_{\nu}$ . On a donc, pour une configuration tridimensionnelle, sept variables (trois pour la position, deux pour la direction, une pour le nombre d'onde et une pour le temps).
- Plus qu'une distribution de particules qui serait alors, aux vues des deux considérations précédentes, définie comme  $f_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)$ <sup>5</sup>, la notion de luminance inclut l'énergie et la vitesse des photons. Elle est définie comme :

$$L_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) = hc\eta c f_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) \quad (2.3)$$

Il est important de bien saisir la notion de luminance et donc l'idée de distribution sur l'espace  $\mathcal{D} = \{\mathcal{D}_{\mathbf{x}}, \mathcal{D}_{\mathbf{u}}, \mathcal{D}_{\eta}\}$ . La distribution  $f_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)$  est une extension de la densité à l'espace des phases. Elle correspond à la somme des densités de probabilité de présence de tous les photons en un point  $(\mathbf{x}, \mathbf{u}, \eta, t)$  dans l'espace  $\mathcal{D}$ . Une manière assez intuitive d'appréhender le passage de distribution à luminance consiste à considérer un volume  $d\mathbf{x}$ , un angle solide  $d\mathbf{u}$  et un intervalle spectral  $d\eta$  élémentaires (en d'autres termes, un sous espace infinitésimal  $d\mathcal{D}$  de  $\mathcal{D}$ ), voir Fig. 2.3. Le nombre



**FIGURE 2.3** – La distribution de photons en un point  $(\mathbf{x}, \mathbf{u}, \eta, t)$  de l'espace des phases correspond à la limite du nombre de photons situés à un instant  $t$  en  $\mathbf{x} \in d\mathbf{x}$ , ayant une direction  $\mathbf{u} \in d\mathbf{u}$  et un nombre d'onde  $\eta \in d\eta$  pour  $d\mathbf{x}$ ,  $d\mathbf{u}$  et  $d\eta$  tendant vers 0.

de photons  $dN_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)$  à un instant  $t$  dans  $d\mathbf{x}$ , ayant une direction de propagation

5. Par convention le nombre d'onde  $\eta$  (ou longueur d'onde  $\lambda$  ou fréquence  $\nu$ ) est indiqué, dans la mesure où, comme nous allons le voir, aucun opérateur de l'équation du transfert radiatif ne fait appel au nombre d'onde (sous l'hypothèse de diffusion élastique).

comprise dans  $d\mathbf{u}$  et un nombre d'onde  $\eta$  compris dans  $d\eta$  est alors donnée par la relation

$$dN_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) = f_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) d\mathbf{x} d\mathbf{u} d\eta \quad (2.4)$$

faisant intervenir la distribution  $f_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)$  (qui s'exprime en  $m^{-3}sr^{-1}cm$ ). C'est probablement le caractère discret du nombre de photons qui rend ce passage le plus délicat et qui ne permet rien d'autre que d'accepter la distribution comme une densité de probabilité de présence des photons. Multiplier cette distribution par l'énergie et la vitesse des photons considérés, équivaut à étudier la puissance  $dP_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)$  associée aux photons de directions comprises dans  $d\mathbf{u}$ , de nombres d'onde compris dans  $d\eta$  passant par un élément de surface  $dS_\perp$  normal à  $\mathbf{u}$  :

$$\begin{aligned} dP_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, \eta, t) &= f_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) hc\eta c dS_\perp d\mathbf{u} d\eta \\ &= L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) dS_\perp d\mathbf{u} d\eta \end{aligned} \quad (2.5)$$

et permet ainsi de passer à une expression fonction de la luminance (qui est alors bien homogène à des  $Wm^{-2}sr^{-1}cm$ ), voir Fig. 2.4a. En raisonnant en énergie plutôt qu'en puissance, cela revient à observer une quantité d'énergie monochromatique  $dQ_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)$  qui traverse pendant un intervalle de temps  $dt$  la surface  $dS_\perp$  dans la direction  $\mathbf{u}$  et donc considérer l'énergie associée aux photons de directions comprises dans  $d\mathbf{u}$ , de nombres d'onde compris dans  $d\eta$  se propageant dans le volume élémentaire  $dS_\perp cdt$  (voir Fig. 2.4b. On a alors :

$$\begin{aligned} dQ_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, \eta, t) &= f_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) hc\eta dS_\perp cdt d\mathbf{u} d\eta \\ &= L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) dS_\perp dt d\mathbf{u} d\eta \end{aligned} \quad (2.6)$$

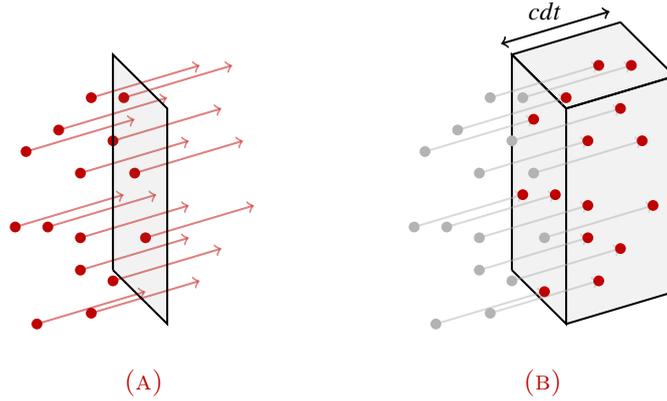


FIGURE 2.4 – La luminance peut être définie comme soit :

- la limite de la puissance associée aux photons passant par  $dS_\perp \ni \mathbf{x}$ , de direction  $\mathbf{u} \in d\mathbf{u}$  et de nombre d'onde  $\eta \in d\eta$  pour  $dS_\perp$ ,  $d\mathbf{u}$ ,  $d\eta$  tendant vers zéro (Fig. (A))
- la limite de l'énergie associée aux photons se propageant dans le volume élémentaire  $dS_\perp cdt$ , de direction  $\mathbf{u} \in d\mathbf{u}$  et de nombre d'onde  $\eta \in d\eta$  pour  $dS_\perp$ ,  $dt$ ,  $d\mathbf{u}$ ,  $d\eta$  tendant vers zéro (Fig. (B)).

Jusqu'à présent, seule la *luminance monochromatique*  $L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)$  a été présentée, soulignant le fait que l'espace des nombres d'onde est une dimension à part entière de l'espace sur lequel est défini le descripteur mésoscopique. Cependant, il est

souvent intéressant d'étudier la luminance dite *totale*  $L(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)$  c'est-à-dire intégrée spectralement sur un intervalle donné  $[\eta_{\min}, \eta_{\max}]$ . La luminance totale s'exprime alors en  $Wm^{-2}sr^{-1}$  et est donnée par :

$$L(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) = \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} L_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) d\eta \quad (2.7)$$

Dans les applications présentées dans ce manuscrit, l'intervalle spectral d'intégration  $[\eta_{\min}, \eta_{\max}]$  sera généralement choisi de sorte à couvrir le domaine fréquentiel du rayonnement thermique.

### 2.1.4 Grandeurs intégrées de la luminance : passage à une description macroscopique

La luminance étant désormais décrite dans son acception mésoscopique, il est possible de définir d'autres grandeurs énergétiques, celles-ci macroscopiques. Elles seront ici uniquement exprimées de façon monochromatique. Mais, tout comme pour la luminance, quelle que soit la grandeur considérée, le passage de son expression *monochromatique*  $A_{\eta}$  à son expression dite *totale*  $A$  se fera par intégration spectrale sur l'intervalle d'intérêt  $[\eta_{\min}, \eta_{\max}]$  :

$$A = \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} A_{\eta} d\eta \quad (2.8)$$

L'*irradiance* (ou *rayonnement incident*) est la première grandeur macroscopique, elle correspond au moment d'ordre 0 de la distribution angulaire des luminances. En d'autres termes, elle est définie comme l'intégrale sur l'espace des directions  $\mathcal{D}_{\mathbf{u}}$  ( $\mathcal{D}_{\mathbf{u}} = 4\pi sr$  pour un milieu participant) de la luminance et s'exprime en  $Wm^{-2}cm$ .

$$G_{\eta}(\mathbf{x}, t) = \int_{4\pi} L_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) d\mathbf{u} \quad (2.9)$$

Le *vecteur densité surfacique de flux* correspond quant à lui au moment d'ordre 1 de la distribution angulaire des luminances. C'est une grandeur vectorielle qui s'exprime également en  $W.m^{-2}.cm$  et qui est donnée par :

$$\mathbf{q}_{R,\eta}(\mathbf{x}, t) = \int_{4\pi} L_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) \mathbf{u} d\mathbf{u} \quad (2.10)$$

Il est très fréquent de rencontrer ce descripteur en mécanique des fluides et en thermique. Sa seule connaissance au point  $\mathbf{x}$  permet de remonter à la densité de flux  $\varphi_{\eta}(\mathbf{x}, t)$  relative à n'importe quelle surface contenant  $\mathbf{x}$  par la relation

$$\varphi_{\eta}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{q}_{R,\eta}(\mathbf{x}, t) \cdot \mathbf{n}(\mathbf{x}) \quad (2.11)$$

où  $\mathbf{n}(\mathbf{x})$  est la normale de la surface considérée en  $\mathbf{x}$ .

Le vecteur densité surfacique de flux permet également d'exprimer, par sa diver-

gence, le *terme source radiatif* (ou *bilan radiatif local*) :

$$S_{r,\eta}(\mathbf{x}, t) = -\operatorname{div}(\mathbf{q}_{R,\eta}(\mathbf{x}, t)) \quad (2.12)$$

Aux frontières, l'espace des directions se limite à l'hémisphère sortant (d'angle solide égal à  $2\pi$  sr). On parlera alors plutôt d'*émittance*  $M_\eta(\mathbf{x}, t)$  (ou de *densité de flux rayonné*) et d'*éclairage*  $H_\eta(\mathbf{x}, t)$  pour des rayons respectivement dirigés vers l'extérieur et vers la surface :

$$M_\eta(\mathbf{x}, t) = \int_{\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} > 0} L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) \mathbf{u} \cdot \mathbf{n}(\mathbf{x}) \, d\mathbf{u} \quad (2.13)$$

et

$$H_\eta(\mathbf{x}, t) = \int_{\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} < 0} L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) \mathbf{u} \cdot \mathbf{n}(\mathbf{x}) \, d\mathbf{u} \quad (2.14)$$

où  $\mathbf{n}(\mathbf{x})$  est la normale en  $\mathbf{x}$  à la surface.

Même si nous allons désormais nous concentrer essentiellement sur une approche mésoscopique, ces grandeurs macroscopiques ainsi que les images associées à la description microscopique du rayonnement mettent en relief l'intérêt de pouvoir passer d'une description à l'autre. Le **Tab. 2.1** dresse un bref résumé de ces trois types de modélisation appliqués à l'étude du transfert radiatif.

<i>Description</i>	<i>Descripteur(s)</i>	<i>Variable(s)</i>	<i>Type de descripteur</i>
Microscopique	$\{\mathbf{x}, \mathbf{u}, \eta\}$	$t$	déterministe et discret
Mésoscopique	$L_\eta$	$\mathbf{x}, \mathbf{u}, \eta, t$	statistique et continu
Macroscopique	$G_\eta, \mathbf{q}_{R,\eta}, \text{etc.}$	$\mathbf{x}, \eta, t$	statistique et continu

**TABLE 2.1** – Résumé succinct des propriétés des descriptions microscopique, mésoscopique et macroscopique appliquées à l'étude du transfert radiatif. Les descripteurs, variables et types de descripteurs sont décrits pour chacune d'elles.

## 2.2 Équation du transfert radiatif en milieu participant

Définir la luminance monochromatique comme une distribution de photons (à une constante  $hc\eta c$  près) permet de placer plus généralement le transfert radiatif dans une approche propre à l'étude du *transport corpusculaire*. Une telle modélisation repose alors sur un formalisme de type *équations cinétiques* ou *équations de Boltzmann* faisant appel aux concepts relatifs à la physique statistique.

Aussi, l'objet de cette section est de présenter un cas particulier des équations cinétiques : l'équation du transfert radiatif en milieu participant (ETR) sous sa forme locale et intégrale. Les différentes interactions entre milieu participant et rayonnement, nécessaires à l'établissement de l'ETR, seront ainsi abordées.

### 2.2.1 Transport de photons sans interaction avec le milieu

L'équation du transfert radiatif est un cas particulier des équations de transport ou cinétiques. Cette famille d'équations décrivant le transport de corpuscules est fréquemment qualifiée d'*équations de Boltzmann* [Cercignani, 1988, Piaud, 2007], en référence aux travaux de L. Boltzmann (1872) qui ont porté sur l'étude et la description de la cinétique des gaz raréfiés en hors équilibre.

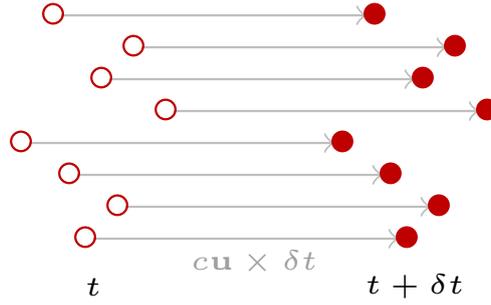
L'établissement d'une équation de transport requiert cependant de poser certaines hypothèses :

- Chaque photon doit pouvoir être décrit par une position et une vitesse propres. Cette hypothèse, plaçant le photon dans une approche semi-classique, impose que les échelles d'intérêt, auxquelles se produisent les phénomènes de transfert radiatif, doivent être supérieures à celles de la longueur d'onde du rayonnement considéré.
- Les positions probables d'interaction (autrement appelés absorbeurs et diffuseurs) sont réparties de façon aléatoire, indépendante et continue dans l'espace.
- Les événements d'interaction avec le milieu, ou collisions, sont supposés quasi-instantanés et quasi-ponctuels devant les échelles d'intérêt.

À ces hypothèses, propres à l'établissement des équations de transport, nous ajouterons ici d'autres hypothèses relatives uniquement au transfert radiatif :

- Les photons se déplacent en ligne droite et à vitesse constante tant qu'ils n'interagissent pas avec le milieu. Sous cette hypothèse, l'indice de réfraction est alors supposé uniforme. La norme du vecteur vitesse est donc constante, ce qui explique le passage à une description selon les directions.
- Une approximation d'équilibre thermodynamique local (ETL) est admise. Cette hypothèse consiste à considérer que l'état microscopique du système est en tout point proche d'un état d'équilibre thermodynamique dont les variables d'état seraient celles observées localement. Cette hypothèse implique en particulier que l'émission locale de photons est identique à celle qui serait rencontrée dans un milieu à l'équilibre thermodynamique soumis aux mêmes conditions que le point considéré (*cf.* [Sec. 2.2.2.2](#)). Bien qu'adaptée pour les problèmes présentés dans ce manuscrit, l'hypothèse d'équilibre thermodynamique ne peut être faite lors de l'étude du rayonnement dans des configurations à très faibles pressions ou dans des systèmes chimiluminescents.
- Les photons n'interagissent pas entre-eux, ils ne peuvent pas être émis, absorbés ou diffusés par d'autres photons. La physique du transport photonique est alors qualifiée de linéaire.

Supposons dans un premier temps, pour établir l'équation du transfert radiatif, que le rayonnement n'interagit pas avec le milieu (le milieu est alors considéré comme *transparent*). Sans absorption ni diffusion, les photons se propagent en ligne droite (voir [Fig. 2.5](#)). L'ensemble des photons de nombre d'onde  $\eta$  situés en  $\mathbf{x}$  dans la direction  $\mathbf{u}$  à l'instant  $t$  ou leur équivalent sous forme de luminance, translatent donc



**FIGURE 2.5** – Sans interaction avec le milieu les photons se propagent en lignes droites. Les photons situés en  $\mathbf{x}$  à l’instant  $t$  dans la direction  $\mathbf{u}$  se retrouvent à l’instant  $t + \delta t$  en  $\mathbf{x} + c\mathbf{u}\delta t$  dans la direction  $\mathbf{u}$ .

pendant un court intervalle de temps  $\delta t$  vers la position  $\mathbf{x} + c\mathbf{u}\delta t$  sans changement de direction. Avec les hypothèses considérées, le théorème de Liouville énonce que le volume de l’espace des phases est constant le long des trajectoires du système. On peut donc écrire :

$$L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) = L_\eta(\mathbf{x} + c\mathbf{u}\delta t, \mathbf{u}, t + \delta t) \quad (2.15)$$

Il est possible de faire un développement limité au premier ordre autour de  $\mathbf{x}$  et  $t$  du terme de droite en supposant  $\delta t$  très petit :

$$L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) = L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) + \delta t \left[ \frac{\partial L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)}{\partial t} + c\mathbf{u} \cdot \nabla L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) \right] \quad (2.16)$$

Il vient alors

$$\frac{1}{c} \frac{\partial L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) = 0 \quad (2.17)$$

qui n’est rien d’autre qu’une expression de la conservation de la luminance. Le premier terme  $\frac{1}{c} \partial_t L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)$  de l’Eq. 2.17 caractérise la variation temporelle de la luminance. Le second  $\mathbf{u} \cdot \nabla L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t)$ , appelé terme de transport pur, caractérise la variation de la luminance due au déplacement des photons.

Intégré sur l’espace des directions ( $4\pi$ ) et sur les nombres d’onde, on obtient une équation macroscopique de conservation d’énergie :

$$\frac{1}{c} \frac{\partial G(\mathbf{x}, t)}{\partial t} = -\text{div}(\mathbf{q}_R(\mathbf{x}, t)) \quad (2.18)$$

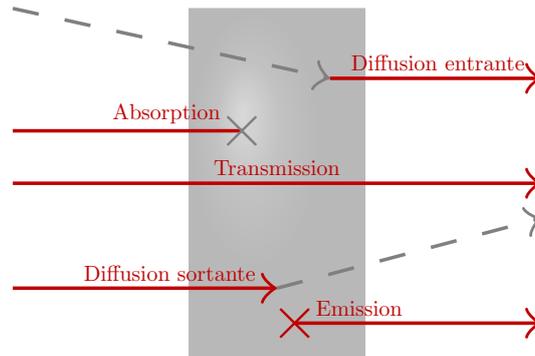
Le transfert radiatif étant généralement beaucoup plus rapide que les autres phénomènes observés, il est courant de le considérer en régime stationnaire, menant alors à :

$$\mathbf{u} \cdot \nabla L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}, t) = 0 \quad (2.19)$$

Cette hypothèse de stationnarité du rayonnement sera conservée dans la suite de ce manuscrit.

## 2.2.2 Interactions rayonnement/matière en milieu participant

Dès lors que l'on suppose le milieu *participant* ou *semi-transparent*, il convient de prendre en compte les différents phénomènes d'interaction qui vont entrer en jeu dans la description du transport de photons. En effet, le milieu participant sera susceptible d'émettre, d'absorber et de diffuser des photons (voir Fig. 2.6). Ces trois



**FIGURE 2.6** – Interactions entre rayonnement et milieu participant. En présence d'un milieu participant, le rayonnement peut être transmis (pas d'interaction), absorbé, émis ou diffusé par le milieu. On distingue deux types de diffusion, la diffusion entrante et sortante (selon que le rayonnement "entre" ou "sort" d'un volume élémentaire de l'espace des phases.)

types d'interaction et leurs grandeurs associées font l'objet de cette sous-section dans laquelle le rayonnement est supposé stationnaire.

### 2.2.2.1 Absorption du rayonnement par un milieu participant

De manière spontanée, la matière absorbe du rayonnement (le mécanisme moléculaire quantique associé à cette absorption sera présenté plus en détail à la Sec. 2.3). La variation de luminance, due à ce phénomène, le long d'un élément différentiel  $d\mathbf{x}$  est donnée par :

$$\mathcal{P}_{a,\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = \left. \frac{dL_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u})}{d\mathbf{x}} \right|_{\text{abs}} = k_{a,\eta}(\mathbf{x}, t)L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) \quad (2.20)$$

où  $k_{a,\eta}(\mathbf{x}, t)$  est appelé *coefficient d'absorption*.

Le coefficient d'absorption caractérise le milieu et non le rayonnement. Homogène à l'inverse d'une distance ( $m^{-1}$ ), il est défini comme l'inverse du libre parcours moyen d'absorption (c'est-à-dire l'inverse de la distance moyenne que parcourent les photons avant d'être absorbés) et correspond donc à une fréquence spatiale d'absorption. Plus il est important, plus le milieu participant sera absorbant. Sa valeur dépend de la température  $T(\mathbf{x})$ , de la pression  $P(\mathbf{x})$  et des fractions molaires  $\chi_m(\mathbf{x})$  des espèces en présence au point  $\mathbf{x}$ , à l'instant  $t$  et au nombre d'onde  $\eta$  d'intérêt. L'isotropie du coefficient d'absorption est généralement admise.

Il est courant de décomposer le coefficient d'absorption comme le produit d'une densité volumique  $C_m(\mathbf{x})$  d'absorbateurs (ici des molécules) et d'une section efficace

d'absorption  $\sigma_\eta(\mathbf{x})$ <sup>6</sup> :

$$k_{a,\eta}(\mathbf{x}) = C_m(\mathbf{x})\sigma_\eta(\mathbf{x}). \quad (2.21)$$

### 2.2.2.2 Émission de rayonnement thermique par le milieu participant

Tout corps à une température supérieure à  $0K$  émet également de façon spontanée du rayonnement thermique. Pour présenter ce phénomène, il convient d'introduire la notion de luminance d'équilibre  $L_\eta^{eq}(\mathbf{x})$ <sup>7</sup>. Sa définition s'accompagne généralement de l'idée de corps noir qui constitue un corps idéal absorbant l'intégralité du rayonnement lui parvenant. A l'équilibre, le corps noir émettra autant d'énergie qu'il en absorbe. Il peut être imaginé comme une cavité close et isotherme. En tout point de cette enceinte, la luminance est alors uniforme et isotrope. Cette luminance monochromatique, dite d'équilibre ou de corps noir, dépend uniquement de la température de la cavité et du nombre d'onde (voir Fig. 2.7). Son expression est donnée par la *loi de Planck* :

$$L_\eta^{eq}(\mathbf{x}) = 2hc^2\eta^3 \frac{1}{\exp\left(\frac{hc\eta}{k_B T(\mathbf{x})}\right) - 1} \quad (2.22)$$

où  $k_B = 1.38065 \times 10^{-23} J.K^{-1}$  est la *constante de Boltzmann*.

La luminance d'équilibre, comme toute luminance, voit sa définition varier selon qu'elle est exprimée en fréquence, nombre d'onde ou longueur d'onde :  $L_\eta^{eq}(\mathbf{x}) \neq L_{\nu=c\eta}^{eq}(\mathbf{x}) \neq L_{\lambda=1/\eta}^{eq}(\mathbf{x})$ . Ce n'est qu'une fois intégrée que l'équivalence est vérifiée :

$$L_\eta^{eq}(\mathbf{x})d\eta = L_{\nu=c\eta}^{eq}(\mathbf{x})d\nu = L_{\lambda=1/\eta}^{eq}(\mathbf{x})d\lambda \quad (2.23)$$

Les lois de Planck définies selon les fréquences et longueurs d'onde sont alors respectivement données par :

$$L_\nu^{eq}(\mathbf{x}) = \frac{2h\nu^3}{c^2} \frac{1}{\exp\left(\frac{h\nu}{k_B T(\mathbf{x})}\right) - 1} \quad (2.24)$$

et

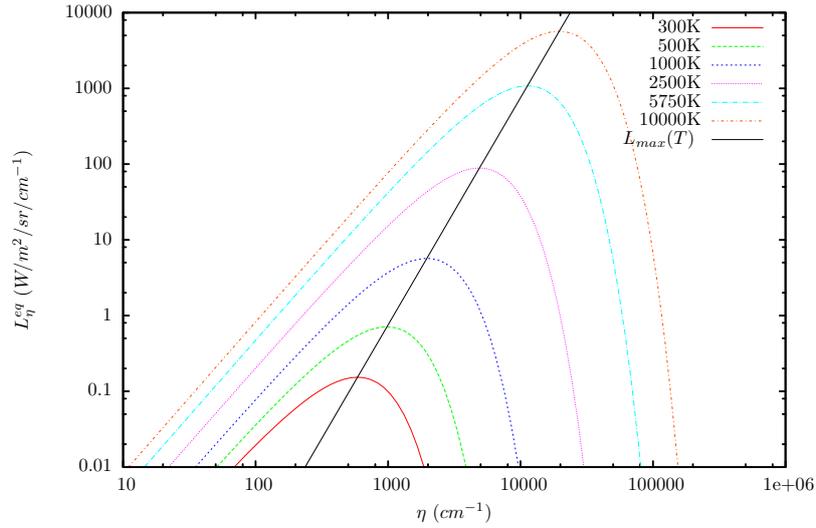
$$L_\lambda^{eq}(\mathbf{x}) = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{\exp\left(\frac{hc}{k_B \lambda T(\mathbf{x})}\right) - 1} \quad (2.25)$$

#### NOTE : Loi de Stefan Boltzmann et loi du déplacement de Wien

Il peut être intéressant d'intégrer et de dériver la loi de Planck, pour notamment obtenir la luminance d'équilibre totale et la luminance d'équilibre maximale (et son nombre d'onde associé) pour une température donnée.

6. La section efficace n'a pas de lien avec la taille réelle des absorbeurs, elle représente une surface virtuelle susceptible d'intercepter le rayonnement.

7. Il est fréquent de trouver dans la littérature d'autres notations de cette luminance d'équilibre :  $L_\eta^0(\mathbf{x})$ ,  $I_{b,\eta}(\mathbf{x})$  ou encore  $B_\eta(\mathbf{x})$ .



**FIGURE 2.7** – Luminance d'équilibre définie en nombre d'onde pour différentes températures. La loi du déplacement de Wien (trait plein noir) est également présentée.

**Loi de Stefan-Boltzmann** La *loi de Stefan-Boltzmann* exprime la luminance totale d'équilibre intégrée sur l'intégralité du spectre ( $[0, +\infty[$ ) :

$$L^{eq}(\mathbf{x}) = \int_0^{+\infty} L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}) d\eta = \frac{1}{\pi} \sigma T(\mathbf{x})^4 \quad (2.26)$$

où  $\sigma = 5.670373 \times 10^{-8}$  est dite la *constante de Stefan-Boltzmann*. On remarque alors que la luminance totale d'équilibre est bien proportionnelle à la température élevée à la puissance 4.

**Loi du déplacement de Wien** La *loi du déplacement de Wien* exprime le nombre d'onde, la fréquence ou la longueur d'onde pour laquelle, à une température donnée, la luminance d'équilibre est maximale. Ces nombres d'onde, longueurs d'onde et fréquences sont alors donnés par les relations suivantes.

$$\eta(L_{\eta, \max}^{eq}(T)) = T \times 1.961 \text{ cm}^{-1} \quad (2.27)$$

$$\nu(L_{\nu, \max}^{eq}(T)) = T \times 5.879 \times 10^{10} \text{ Hz} \quad (2.28)$$

$$\lambda(L_{\lambda, \max}^{eq}(T)) = \frac{1}{T} \times 2898 \mu\text{m} \quad (2.29)$$

La loi du déplacement de Wien est illustrée par la courbe noire de la **Fig. 2.7**.

Dès qu'il s'agit d'étudier les milieux participants, il est nécessaire d'introduire, en plus de la luminance d'équilibre, la notion de coefficient d'émission  $k_{e,\eta}(\mathbf{x})$  qui va permettre d'exprimer la variation de luminance associée à l'émission le long d'un

élément  $d\mathbf{x}$  :

$$\mathcal{S}_{e,\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = \left. \frac{dL_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u})}{d\mathbf{x}} \right|_{\text{emiss}} = k_{e,\eta}(\mathbf{x})L_\eta^{eq}(\mathbf{x}) \quad (2.30)$$

$\mathcal{S}_{e,\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u})$  est donc égale au produit de la luminance d'équilibre (dépendant de la seule température au point  $\mathbf{x}$ ) et du coefficient d'émission.  $\mathcal{S}_{e,\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u})$  correspond alors à un taux spatial d'émission.

Sous l'hypothèse d'équilibre thermodynamique local, si l'on ne considère que l'absorption et l'émission, la condition

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_{e,\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) &= \mathcal{P}_{a,\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) \\ \Leftrightarrow k_{e,\eta}(\mathbf{x})L_\eta^{eq}(\mathbf{x}) &= k_{a,\eta}(\mathbf{x})L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) \end{aligned} \quad (2.31)$$

se doit d'être vérifiée. Or, puisqu'à l'équilibre thermique (*cf.* corps noir), la luminance est par définition la luminance d'équilibre :  $L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = L_\eta^{eq}(\mathbf{x})$ , les coefficients d'émission et d'absorption sont donc deux grandeurs équivalentes. On oubliera donc la notion de coefficient d'émission au profit de celle de coefficient d'absorption. Cette équivalence est connue comme la *loi du rayonnement de Kirchhoff* en hommage à G.R. Kirchhoff qui l'a formulée en 1859.

### 2.2.2.3 Diffusion du rayonnement par un milieu participant

Enfin, le dernier type d'interaction entre rayonnement et matière est la *diffusion*<sup>8</sup> [Kerker, 1969, Sheng, 2006, Boulet *et al.*, 2014]. Celle-ci entraîne un changement de direction du photon incident. Plusieurs hypothèses seront admises dans ce manuscrit concernant la diffusion :

- La polarisation du rayonnement n'est pas prise en compte.
- Les diffusions sont supposées élastiques : l'énergie (ou le nombre d'onde) du photon reste conservée pendant sa diffusion.
- La diffusion est supposée indépendante : les diffuseurs sont suffisamment éloignés pour considérer que la diffusion provoquée par une particule n'influe pas sur les diffusions d'autres particules.

Deux éléments caractéristiques du milieu diffusant sont nécessaires pour modéliser la diffusion du rayonnement : le *coefficient de diffusion*  $k_{d,\eta}(\mathbf{x})$  et la *fonction de phase*  $\phi_\eta(\mathbf{u}'|\mathbf{u}, \mathbf{x})$ .

**Le coefficient de diffusion**  $k_{d,\eta}(\mathbf{x})$  est l'analogue pour la diffusion du coefficient d'absorption. Il est défini comme l'inverse du libre parcours de diffusion (distance moyenne que parcourt un photon avant d'être diffusé) et correspond donc à une fréquence spatiale de diffusion, homogène à des  $m^{-1}$ . La somme du coefficient d'absorption et du coefficient de diffusion  $k_\eta(\mathbf{x}) = k_{a,\eta}(\mathbf{x}) + k_{d,\eta}(\mathbf{x})$  est appelé *coefficient d'extinction* et est défini comme l'inverse du libre parcours moyen d'extinction (distance moyenne avant qu'un photon ne soit absorbé ou diffusé). On peut également

8. On parle ici de diffusion, dans le sens de "scattering" et non de "diffusion" en anglais.

définir à partir de ces deux coefficients des grandeurs adimensionnelles : l'albédo de diffusion simple  $\omega_{d,\eta}(\mathbf{x})$  défini comme :

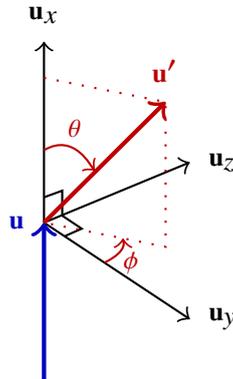
$$\omega_{d,\eta}(\mathbf{x}) = \frac{k_{d,\eta}(\mathbf{x})}{k_{\eta}(\mathbf{x})} = \frac{k_{d,\eta}(\mathbf{x})}{k_{a,\eta}(\mathbf{x}) + k_{d,\eta}(\mathbf{x})} \quad (2.32)$$

et l'albédo d'absorption  $\omega_{a,\eta}(\mathbf{x})$  :

$$\omega_{a,\eta}(\mathbf{x}) = 1 - \omega_{d,\eta}(\mathbf{x}) = \frac{k_{a,\eta}(\mathbf{x})}{k_{\eta}(\mathbf{x})} = \frac{k_{a,\eta}(\mathbf{x})}{k_{a,\eta}(\mathbf{x}) + k_{d,\eta}(\mathbf{x})} \quad (2.33)$$

Plus l'albédo de diffusion est proche de 1, plus la diffusion sera prédominante devant l'absorption.

**La fonction de phase**  $\phi_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}'|\mathbf{u})$  représente quant à elle, la probabilité qu'un photon de direction incidente  $\mathbf{u}$  diffuse dans une direction  $\mathbf{u}'$ . Il est souvent difficile de caractériser ces fonctions de phase, on peut alors se ramener alors à des modèles approchés. Au cours de ces travaux de thèse, nous nous limiterons aux milieux isotropes. Les fonctions de phase considérées ne sont alors dépendantes que de l'angle de déflexion  $\theta$  illustré par la [Fig. 2.8](#).



**FIGURE 2.8** – La fonction de phase associée à la diffusion d'un photon de direction incidente  $\mathbf{u}$  dans la direction  $\mathbf{u}'$  est décrite par le seul angle de déflexion  $\theta$  (la probabilité associée à l'angle  $\phi$  est uniforme).

Nous décrivons ici seulement les trois seuls modèles utilisés dans la suite de ce manuscrit :

- *La fonction de phase isotrope* (voir [Fig. 2.9a](#)) est définie de sorte que la probabilité associée à toutes les directions  $\mathbf{u}'$  quel que soit  $\mathbf{u}$  soit uniforme :

$$\phi_{\eta,\text{Isotrope}}(\mathbf{x}, \mathbf{u}'|\mathbf{u}) = \frac{1}{4\pi} \quad (2.34)$$

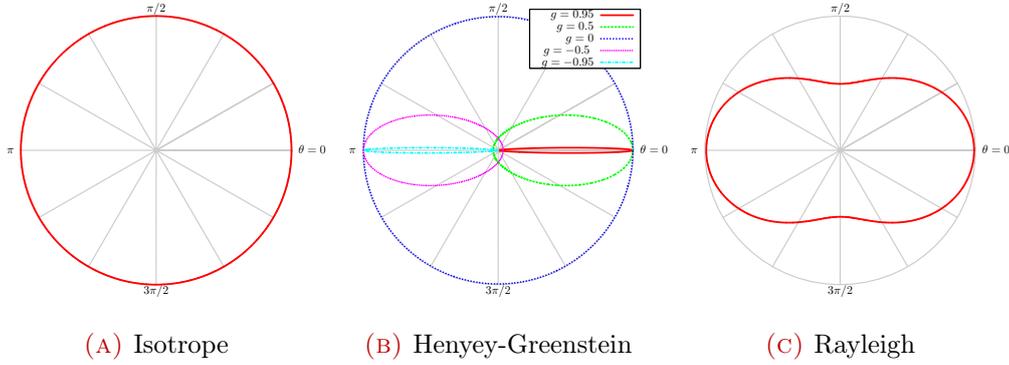
- *La fonction de phase d'Henye-Greenstein* (voir [Fig. 2.9b](#)) permet de rendre compte de diffusions fortement anisotropes. Elle est très utilisée du fait de sa

simplicité d'utilisation et de sa bonne représentativité pour de larges domaines d'applications. En effet, elle ne dépend que d'un seul paramètre  $g(\mathbf{x})$  appelé *facteur d'asymétrie* et s'exprime comme :

$$\phi_{\eta, \text{Henyey-Greenstein}}(\mathbf{x}, \mathbf{u}' | \mathbf{u}) = \frac{1}{4\pi} \frac{1 - g(\mathbf{x})^2}{(1 + g(\mathbf{x})^2 - 2g(\mathbf{x}) \cos(\theta))^{3/2}} \quad (2.35)$$

- La *fonction de phase de Rayleigh* (voir Fig. 2.9c) est un modèle approché fréquemment utilisé dans des configurations où le paramètre de taille des diffuseurs est très petit ( $2\pi a/\lambda \ll 1$  avec  $a$  une dimension caractéristique du diffuseur et  $\lambda$  la longueur d'onde du rayonnement). Son expression est donnée par :

$$\phi_{\eta, \text{Rayleigh}}(\mathbf{x}, \mathbf{u}' | \mathbf{u}) = \frac{3}{16\pi} (1 + \cos^2(\theta)) \quad (2.36)$$



**FIGURE 2.9** – Représentation des trois fonctions de phase utilisées dans ce manuscrit : en (A) la fonction de phase isotrope, en (B) la fonction d'Henyey-Greenstein pour différents paramètres d'asymétrie  $g$  et en (C) la fonction de phase de Rayleigh. Les échelles sont arbitraires.

Lorsque l'on se place en un point de l'espace des phases  $\mathcal{D}$  et plus précisément lorsque l'on s'attachera à un angle solide  $d\mathbf{u}$ , on distinguera deux types de diffusion (strictement équivalentes d'un point de vue physique) les diffusions entrantes et sortantes (respectivement "in-scattering" et "out-scattering" en anglais).

**Diffusion entrante** On parle de diffusion entrante lorsqu'un photon de direction incidente  $\mathbf{u}'$  diffuse et voit sa nouvelle direction comprise dans l'angle solide d'intérêt  $d\mathbf{u}$ . L'augmentation locale de luminance le long d'un élément  $d\mathbf{x}$  due à ce phénomène de diffusion entrante est alors donnée par :

$$\mathcal{S}_{d^+, \eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = \left. \frac{dL_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u})}{d\mathbf{x}} \right|_{\text{diff. entrante}} = k_{d, \eta}(\mathbf{x}) \int_{4\pi} \phi_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}' | \mathbf{u}) L_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}') d\mathbf{u}' \quad (2.37)$$

**Diffusion sortante** On parle de diffusion sortante lorsqu'un photon, dont la direction incidente est comprise dans l'angle solide d'intérêt  $d\mathbf{u}$ , diffuse dans une direction  $\mathbf{u}'$  non comprise cette fois dans l'angle solide d'intérêt. La diminution de

luminance le long d'un élément  $d\mathbf{x}$  associée à ce phénomène de diffusion entrante est alors donnée par :

$$\mathcal{P}_{d^-, \eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = \left. \frac{dL_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u})}{d\mathbf{x}} \right|_{\text{diff. sortante}} = k_{d, \eta}(\mathbf{x})L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) \quad (2.38)$$

La prise en compte rigoureuse de la diffusion est en pratique complexe et fait appel à des considérations ondulatoires (résolution des équations de Maxwell). Ne faisant pas l'objet des travaux présentés dans ce manuscrit, la diffusion sera uniquement prise en compte en toute généralité dans les méthodes numériques développées.

### 2.2.3 Formulation locale de l'équation du transfert radiatif

La prise en compte des termes sources et puits relatifs à l'absorption, l'émission et la diffusion du rayonnement (présentés à la [Sec. 2.2.2](#)) dans le modèle de transport de photons (voir [Eq. 2.19](#)) mène donc, au régime stationnaire, à l'équation du transfert radiatif suivante :

$$\mathbf{u} \cdot \nabla L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = \mathcal{P}_{a, \eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) + \mathcal{P}_{d^-, \eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) + \mathcal{S}_{e, \eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) + \mathcal{S}_{d^+, \eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) \quad (2.39)$$

La somme de ces termes sources (terme de gauche) est connue dans la physique du transport corpusculaire sous le nom de *terme collisionnel*, chacune des interactions possibles entre rayonnement et matière étant qualifiée de *collision*. Une fois ces termes collisionnels exprimés, on obtient :

$$\begin{aligned} \mathbf{u} \cdot \nabla L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = & -k_{a, \eta}(\mathbf{x})L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) - k_{d, \eta}(\mathbf{x})L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) + k_{a, \eta}(\mathbf{x})L_\eta^{eq}(\mathbf{x}) \\ & + k_{d, \eta}(\mathbf{x}) \int_{4\pi} \phi(\mathbf{u}|\mathbf{u}')L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}')d\mathbf{u}' \end{aligned} \quad (2.40)$$

Il est alors possible d'observer les effets de l'approximation d'équilibre thermodynamique local posée à la [Sec. 2.2.1](#). Cette hypothèse a en effet conduit à une expression du terme collisionnel telle qu'à l'équilibre thermodynamique l'équation du transfert radiatif soit validée. En effet, par définition, l'équilibre implique que le terme de transport pur soit nul :  $\mathbf{u} \cdot \nabla L_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = 0$ . La luminance d'équilibre étant isotrope, il en résulte :

$$0 = -k_{a, \eta}(\mathbf{x})L_\eta^{eq}(\mathbf{x}) - k_{d, \eta}(\mathbf{x})L_\eta^{eq}(\mathbf{x}) + k_{a, \eta}(\mathbf{x})L_\eta^{eq}(\mathbf{x}) + k_{d, \eta} \int_{4\pi} \phi(\mathbf{u}|\mathbf{u}')L_\eta^{eq}(\mathbf{x})d\mathbf{u}' \quad (2.41)$$

Cette égalité est bien validée puisque les termes d'absorption/d'émission, ainsi que les termes de diffusion s'annulent deux à deux.

### 2.2.4 Formulation intégrale de l'équation du transfert radiatif

Le transport de photon étant linéaire (les photons ne collisionnent pas entre eux), il est facilement possible, grâce au principe de superposition, de reformuler l'équation du transfert radiatif sous une forme intégrale. En effet, pour un jeu de conditions aux frontières donné, l'équation du transfert radiatif admet une unique

solution qui peut être exprimée sous forme intégrale. Ces solutions intégrales, leurs valeurs statistiques, ainsi que les images physiques qui leur sont associées seront plus longuement abordées au **Chap. 3**. Puisqu'il existe une infinité de configurations d'étude et donc de formulations intégrales, cette sous-section n'a pour objet que de présenter les éléments essentiels au passage de l'équation locale du transfert radiatif à son analogue intégral : l'atténuation exponentielle et l'émission de la luminance par un milieu participant. Les différentes conditions aux frontières seront dans un premier temps rappelées.

### 2.2.4.1 Conditions aux frontières

On distingue trois types d'interaction rayonnement/frontière : l'émission, l'absorption et la réflexion du rayonnement par la paroi.

Une paroi absorbant l'intégralité du rayonnement lui parvenant constitue un corps noir. La luminance émise par une telle paroi est donc une luminance d'équilibre : elle dépend, pour un nombre d'onde donné, uniquement de la température de la paroi. Cependant, une telle paroi n'est qu'une représentation idéale, toute paroi réelle réfléchit au moins partiellement le rayonnement lui parvenant. En un point  $\mathbf{x}_w$  de la paroi, la fraction réfléchie de rayonnement pour une direction et un nombre d'onde donnés est appelée *réflectivité* et est notée  $\rho_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u})$ . Cette réflectivité vérifie l'égalité

$$\rho_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) + \alpha_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = 1 \quad (2.42)$$

où  $\alpha_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u})$  est l'*absorptivité* de la paroi, qui correspond à la fraction de luminance absorbée par la paroi. Sous l'hypothèse d'équilibre thermodynamique local, cette absorptivité est égale à la *émissivité*  $\varepsilon_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u})$ , une grandeur définie comme le ratio entre la luminance monochromatique émise par la paroi en  $\mathbf{x}_w$  dans la direction  $\mathbf{u}$  et la luminance d'équilibre qu'aurait un corps noir à la même température que la paroi :

$$\varepsilon_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = \frac{L_\eta(\mathbf{x}_w, \mathbf{u})}{L_\eta^{eq}(T(\mathbf{x}_w))} = \alpha_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = 1 - \rho_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) \quad (2.43)$$

Concernant le type de réflexion, nous ne considérerons que deux cas extrêmes dans ce manuscrit : les réflexions dites *spéculaire* et *diffuse* :

- Une surface est dite diffuse si  $\alpha_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = \varepsilon_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = 1 - \rho_\eta(\mathbf{x}, \mathbf{u})$  ne dépendent pas de la direction. La distribution bi-directionnelle de réflexion notée  $\psi_\eta(\mathbf{x})$  est donc dans ce cas uniforme et égale à  $1/2\pi$  : la probabilité qu'un photon incident dans la direction  $\mathbf{u}$  soit réfléchi dans une direction  $\mathbf{u}'$  est identique quelle que soit  $\mathbf{u}'$  compris dans l'hémisphère extérieur de la paroi. Une telle paroi est qualifiée de *Lambertienne*, en référence à la loi de Lambert qui énonce ce principe.
- Le deuxième type de réflexion traitée est la réflexion spéculaire, cette réflexion répond à la loi de Descartes qui stipule que le rayonnement est réfléchi de façon symétrique par rapport à la normale de la surface en  $\mathbf{x}_w$ .

### 2.2.4.2 Atténuation exponentielle et absence de mémoire

L'équation locale du transfert radiatif associée à des conditions aux frontières, telles que présentées précédemment, admet donc une unique solution exprimable sous la forme d'une expression intégrale. On parle alors d'équation du transfert radiatif sous forme intégrale. Le passage le plus délicat de l'équation locale à son équivalente intégrale réside très certainement dans l'objet de ce paragraphe : l'atténuation du rayonnement le long d'un chemin optique.

Concentrons-nous d'abord sur la probabilité qu'un photon de nombre d'onde  $\eta$  émis en  $x_0$  d'être transmis sur une distance  $l$  dans un milieu participant homogène et non diffusant sans avoir été absorbé. Cette probabilité, notée  $\mathcal{T}_\eta(l)$ , porte le nom de *transmissivité*. En ayant posé l'hypothèse de distribution aléatoire des absorbeurs, il est possible d'écrire cette probabilité comme le produit de la probabilité qu'aurait un photon d'être transmis sur une distance  $l_1$  et de celle d'être transmis sur une distance  $l_2$  telles que  $l_1 + l_2 = l$  :

$$\mathcal{T}_\eta(l) = \mathcal{T}_\eta(l_1) \times \mathcal{T}_\eta(l_2) \quad (2.44)$$

En d'autres termes, cela signifie que sous cette hypothèse, la probabilité qu'un photon a de parcourir une certaine distance sans avoir été absorbé ne dépend pas de son histoire ou de la distance qu'il a déjà parcourue. Cette propriété, courante en physique (*ex* : désintégration nucléaire, décharge électrique d'un condensateur, *etc.*) est qualifiée d'*absence de mémoire*. L'unique expression de la transmissivité validant l'Eq. 2.44 est alors :

$$\mathcal{T}_\eta(l) = \exp\left(-\frac{l}{\beta}\right) \quad (2.45)$$

où  $\beta$  est une valeur strictement positive caractérisant le libre parcours moyen d'absorption. Or dans la Sec. 2.2.2.1, nous avons défini le coefficient d'absorption comme l'inverse du libre parcours moyen. Il vient alors :

$$\mathcal{T}_\eta(l) = \exp(-k_{a,\eta}l) \quad (2.46)$$

Cette loi caractérise donc l'extinction ou l'atténuation exponentiellement du rayonnement due à l'absorption. Elle est connue sous le nom de *loi de Beer-Lambert* et peut être étendue à un milieu hétérogène par :

$$\mathcal{T}_\eta(x_a, x_b) = \exp\left(-\int_{x_a}^{x_b} k_{a,\eta}(x')dx'\right) = \exp(-\tau_\eta(x_a, x_b)) \quad (2.47)$$

où  $\mathcal{T}_\eta(x_a, x_b)$  correspond à la probabilité qu'un photon soit transmis entre  $x_a$  et  $x_b$  et où  $\tau_\eta(x_a, x_b) = \int_{x_a}^{x_b} k_{a,\eta}x'dx'$  est appelée *épaisseur optique*. Cette grandeur adimensionnelle donne une information sur le caractère absorbant d'un milieu le long d'un chemin optique (ici  $[x_a, x_b]$ ). Pour  $\tau_\eta(x_a, x_b) \ll 1$  le milieu est dit *mince* : l'essentiel du rayonnement sera transmis le long de  $[x_a, x_b]$ . Au contraire pour  $\tau_\eta(x_a, x_b) > 5$ , le milieu est qualifié d'*épais*, une très faible proportion du

rayonnement sera transmis, l'essentiel étant absorbé.

Si l'on suppose à nouveau que le milieu est homogène, il est possible de poursuivre ce raisonnement sous un aspect différentiel. Considérons désormais la probabilité  $p_{\mathcal{L}}(l)dl$  qu'un photon soit absorbé après avoir parcouru une distance élémentaire  $dl$ . La grandeur  $p_{\mathcal{L}}(l)dl$  correspond alors à la probabilité qu'un photon parcoure une distance supérieure à  $l$  mais inférieure à  $l + dl$ . On peut donc écrire :

$$p_{\mathcal{L}}(l)dl = \mathcal{T}_{\eta}(l) - \mathcal{T}_{\eta}(l + dl) \quad (2.48)$$

Sous un formalisme différentiel, il vient à partir de l'Eq. 2.46 et de l'Eq. 2.48 :

$$p_{\mathcal{L}}(l) = -\frac{d\mathcal{T}_{\eta}(l)}{dl} = k_{a,\eta} \exp(-k_{a,\eta}l) \quad (2.49)$$

où  $p_{\mathcal{L}}(l)$  correspond alors à la densité de probabilité des libres parcours d'absorption  $l$  et peut être également définie pour un milieu hétérogène par :

$$p_{\mathcal{L}}(l) = k_{a,\eta}(x_a + l) \exp\left(-\int_0^l k_{a,\eta}(x_a + l')dl'\right) \quad (2.50)$$

où  $p_{\mathcal{L}}(l)$  est la fonction densité de probabilité des libres parcours  $l$  pour des photons ayant été émis en  $x_a$ . Cette densité de probabilité est normalisée sur  $[0, +\infty[$ . En effet, la probabilité qu'un photon soit absorbé par un milieu absorbant sur un chemin infini est bien égale à un.

**NOTE : Perte de l'absence de mémoire lors de l'intégration spectrale**

L'absence de mémoire et l'atténuation exponentielle associée ne sont valables que pour des grandeurs monochromatiques. Dès lors que l'on intègre les grandeurs d'intérêt sur une plage de nombres d'onde, ces comportements exponentiels ne sont plus respectés. Une façon de s'en convaincre consiste à considérer la transmissivité globale  $\mathcal{T}_{\eta}(l)$  de deux couches homogènes : l'une d'épaisseur  $l_1$  et de coefficient d'absorption  $k_{a,\eta,1}$ , l'autre de dimension  $l_2$  et de coefficient d'absorption  $k_{a,\eta,2}$  telles que  $l = l_1 + l_2$ .

Comme nous venons de le voir, il est possible d'écrire de façon monochromatique :

$$\begin{aligned} \mathcal{T}_{\eta}(l) &= \exp(-k_{a,\eta,1}l_1 - k_{a,\eta,2}l_2) \\ &= \exp(-k_{a,\eta,1}l_1) \times \exp(-k_{a,\eta,2}l_2) \\ &= \mathcal{T}_{\eta}(l_1) \times \mathcal{T}_{\eta}(l_2) \end{aligned} \quad (2.51)$$

Mais dès que l'on souhaite intégrer spectralement cette transmissivité sur  $\Delta\eta$ , il vient :

$$\mathcal{T}(l) = \int_{\Delta\eta} \mathcal{T}_{\eta}(l)d\eta = \int_{\Delta\eta} \mathcal{T}_{\eta}(l_1) \times \mathcal{T}_{\eta}(l_2)d\eta \neq \mathcal{T}(l_1) \times \mathcal{T}(l_2) \quad (2.52)$$

La transmissivité globale  $\mathcal{T}(l)$  intégrée spectralement est bien différente du produit des transmissivités intégrées  $\mathcal{T}(l_1)$  et  $\mathcal{T}(l_2)$ , l'atténuation exponentielle n'est plus applicable. L'intégration spectrale crée donc un phénomène de type mémoire : alors que la distribution aléatoire des absorbeurs assurait une absence de mémoire, la distribution spectrale des photons contient, elle, de l'information relative à la distance qu'ils ont déjà parcourue.

**Transmission de rayonnement par une colonne de milieu participant** Il devient alors possible d'utiliser ces notions de transmissivité et de densité de probabilité de libre parcours pour exprimer la luminance transmise par une colonne. On souhaite étudier la luminance en  $x_b$  dans la direction sortante résultant d'une émission en  $x_a$  (où est placée une paroi noire) et atténuée entre  $x_a$  et  $x_b$  par un milieu non-émettant (de température nulle) et non-diffusant. À partir de la définition de la transmissivité il vient :

$$\begin{aligned} L_\eta^+(x_b) &= L_\eta^{eq}(x_a) \mathcal{T}_\eta(x_a, x_b) \\ &= L_\eta^{eq}(x_a) \exp\left(-\int_{x_a}^{x_b} k_{a,\eta} x' dx'\right) \end{aligned} \quad (2.53)$$

Cette équation s'interprète assez facilement : seule une fraction  $\mathcal{T}_\eta(x_a, x_b)$  de la luminance  $L_\eta^{eq}(x_a)$  émise en  $x_a$  est transmise jusqu'en  $x_b$ . On constate également que cette expression intégrale est bien solution de l'équation locale du transfert radiatif pour la configuration considérée (pas de diffusion ni d'émission du milieu et paroi noire en  $x_a$ ). De la même manière, il est possible d'exprimer  $L_\eta^+(x_b)$  en faisant appel à la distribution des libres parcours :

$$L_\eta^+(x_b) = \int_0^{+\infty} p_{\mathcal{L}}(l) \mathcal{H}(l - (x_b - x_a)) L_\eta^{eq}(x_a) dl \quad (2.54)$$

où la fonction de Heaviside  $\mathcal{H}(l - (x_b - x_a))$  vaut 1 si  $l > x_b - x_a$  et 0 sinon. Ici, les images associées à cette expression sont légèrement différentes : la luminance  $L_\eta^+(x_b)$  est définie comme la fraction des photons (à une constante  $hc\eta c$  près) émis par la paroi en  $x_a$  ayant eu un libre parcours supérieur à  $l$  et donc ayant bien été transmis par la colonne.

**Émission de rayonnement par une colonne de milieu participant** Maintenant, si l'on considère que le milieu émet en plus d'absorber et que la paroi n'émet plus, il est possible d'exprimer la luminance en  $x_b$  dans la direction sortante résultant d'une émission de rayonnement par le milieu défini sur  $[x_a, x_b]$  atténuée exponentiellement jusqu'en  $x_b$ . Les hypothèses d'équilibre thermodynamique local et de stationnarité imposent que la fraction de rayonnement absorbée le long d'un chemin optique est égale à celle émise par ce même milieu. On peut alors définir l'absorptivité  $\mathcal{A}_\eta(x_a, x_b)$  du milieu, qui représente la probabilité qu'un photon soit absorbé sur une distance  $[x_a, x_b]$  donnée. Celle-ci correspond à la probabilité complémentaire de la

transmissivité :

$$\mathcal{A}_\eta(x_a, x_b) = 1 - \mathcal{T}_\eta(x_a, x_b) \quad (2.55)$$

En effet, sur une distance donnée, en l'absence de diffusion, soit le photon est absorbé, soit il est transmis.

En supposant le milieu isotherme de luminance d'équilibre  $L_\eta^{eq}$ , la luminance  $L_\eta^+(x_b)$  est alors donnée par

$$L_\eta^+(x_b) = L_\eta^{eq} (1 - \mathcal{T}_\eta(x_a, x_b)) \quad (2.56)$$

La luminance  $L_\eta^+(x_b)$  correspond alors la luminance d'équilibre du milieu pondérée de la fraction émise sur  $[x_a, x_b]$ .

En faisant appel à la densité de probabilité des libres parcours, on peut également écrire pour un milieu anisotherme :

$$L_\eta^+(x_b) = \int_{x_a}^{x_b} k_{a,\eta}(x) \exp\left(-\int_x^{x_b} k_{a,\eta}(x') dx'\right) L_\eta^{eq}(x) \quad (2.57)$$

Dans ce cas, deux images physiques sont possibles pour interpréter cette expression de  $L_\eta^+(x_b)$  :

- soit on considère que sur chaque intervalle  $dx$  du milieu une luminance  $k_{a,\eta}(x)L_\eta^{eq}(x)dx$  est émise et que seule une fraction  $\exp\left(-\int_{x_a}^{x_b} k_{a,\eta}(x') dx'\right)$  est transmise jusqu'en  $x_b$ .
- soit que la luminance  $L_\eta^+(x_b)$  est définie comme l'intégrale sur  $[x_a, x_b]$  des luminances d'équilibres distribuées selon la densité de probabilité des libres parcours  $p_{\mathcal{L}}(l)$ .

### 2.2.4.3 Prise en compte de la diffusion

La prise en compte de la diffusion sera traitée plus en détail au [Chap. 3](#), cependant nous avons vu que la diffusion contribue de deux manières différentes à l'équation du transfert radiatif : la diffusion entrante et la diffusion sortante, respectivement à l'origine d'une augmentation et d'une diminution de la luminance en un point de l'espace des phases.

La disparition de luminance par diffusion est traitée de la même manière que l'atténuation du rayonnement par l'absorption. En effet, la loi de Beer-Lambert et l'absence de mémoire s'appliquent également à la diffusion, mis à part que la fréquence spatiale de disparition est donnée par le coefficient de diffusion et non par le coefficient d'absorption. Dans la pratique, on ne distinguera pas les atténuations par absorption et par diffusion. On raisonnera en termes de coefficients d'extinction. L'atténuation causée par ces deux phénomènes le long d'un chemin optique curviligne entre 0 et  $\varsigma$  est alors donnée par :

$$\mathcal{T}_\eta(\varsigma) = \exp\left(-\int_0^\varsigma k_{a,\eta}(\varsigma') + k_{d,\eta}(\varsigma') d\varsigma'\right) = \exp\left(-\int_0^\varsigma k_\eta(\varsigma') d\varsigma'\right) \quad (2.58)$$

L'apparition de rayonnement par diffusion, est quant à elle plus délicate à prendre en compte, en particulier lorsque les événements de diffusion sont multiples. Elle implique une récursivité du fait de la présence de la luminance dans l'intégrale directionnelle du terme source  $\mathcal{S}_{d,\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u})$  de l'équation locale du transfert radiatif. Cette récursivité sera présentée plus amplement à la [Sec. 3.4](#)). Cependant, l'apport par diffusion ne pose pas de problèmes intrinsèques majeurs (outre des problèmes de formalisme), il sera toujours possible d'alléger cette écriture récursive en raisonnant en abscisses curvilignes dans une vision de type *intégrales de chemins* [[Dauchet, 2012](#)].

## 2.3 Nature, dépendances et modèles du coefficient d'absorption en milieu gazeux

De par sa forte dépendance aux nombres d'onde, aux fractions molaires des espèces en présence et aux propriétés thermodynamiques du milieu, la prise en compte du coefficient d'absorption représente une des principales difficultés rencontrées lors de l'étude du rayonnement en milieu gazeux. Les notions d'émission et d'absorption par un milieu semi-transparent ont déjà été abordés dans le but de les placer dans une description mésoscopique. Toutefois, nous ne nous sommes pas encore intéressés aux phénomènes et mécanismes sous-jacents. Ces derniers, qui font appel à des concepts de mécanique quantique, feront l'objet de cette section (pour plus d'informations, le lecteur pourra se référer aux textes [[Tien, 1969](#), [Taine et Soufiani, 1999](#), [Heitler, 2010](#)]). La nature même du coefficient d'absorption et sa représentation sous forme de raies puis de spectres d'absorption seront ainsi abordées.

### 2.3.1 Mécanismes d'absorption et d'émission du rayonnement

L'approche corpusculaire du rayonnement a posé au début du XX<sup>ème</sup> siècle les fondements de la mécanique quantique. Cette dernière émet, entre-autres, le postulat que les états énergétiques  $E_i$  d'une molécule sont discrets (ou quantifiés). L'énergie d'une molécule est la résultante de plusieurs formes d'énergie. Dans le cas du rayonnement, seules certaines formes d'énergie importeront, on parlera d'états énergétiques électroniques, vibrationnels et rotationnels (ici classés du plus au moins énergétique). Spontanément, ou suite à une interaction avec son environnement, la molécule peut passer d'un état énergétique élevé  $E_u$  à un plus faible  $E_l$  et inversement : de  $E_l$  à  $E_u$ . On qualifie alors ces "sauts" quantifiés de *transitions énergétiques*. Dans le cas de l'étude du rayonnement dans les gaz, on distingue trois mécanismes menant à ces transitions : l'*émission spontanée*, l'*émission stimulée* (ou émission induite ou encore absorption négative) et l'*absorption* d'un photon par la matière. Ces trois interactions sont schématisées dans la [Fig. 2.10](#). Il est possible, grâce à la mécanique quantique, de définir les coefficients d'absorption et d'émission relatifs à ces interactions en faisant appel à des modèles cinétiques, basés sur des grandeurs connues sous le nom de *coefficients d'Einstein* [[Modest, 2013](#), [André et al., 2014](#)].

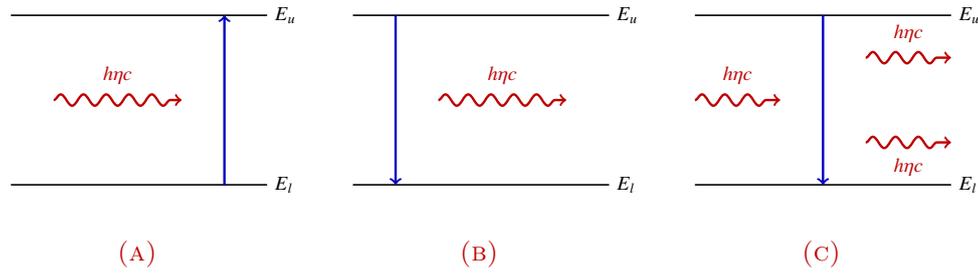


FIGURE 2.10 – Mécanismes d'interaction matière-rayonnement : (A) Absorption ; (B) Émission Spontanée ; (C) Émission Stimulée.

**Émission spontanée** On parle d'émission spontanée lorsqu'une molécule dans un état énergétique  $E_u$  émet un photon passant ainsi à un état énergétique inférieur  $E_l$ . Le nombre d'onde  $\eta$  du photon émis est directement conditionné par cette transition et répond à l'égalité

$$E_u - E_l = h\eta c \quad (2.59)$$

**Absorption** A l'opposé de l'émission spontanée : un photon d'énergie  $h\eta c$  peut être absorbé par une molécule d'énergie  $E_l$  si cette molécule possède un état énergétique  $E_u$  validant l'Eq. 2.59.

**Émission stimulée** Enfin, le dernier type d'interaction photon/molécule est appelé émission stimulée. On la rencontre lorsqu'un photon de nombre d'onde "compatible" aux états énergétiques d'une molécule va la faire passer d'un état énergétique  $E_u$  à un état  $E_l$  inférieur, émettant ainsi deux photons strictement identiques d'énergie  $h\eta c$ . Alors que l'absorption et l'émission spontanée sont isotropiques, l'émission stimulée voit ses deux photons émis dans la direction du photon incident (cette propriété est à l'origine du développement des lasers).

### 2.3.2 Raie d'absorption isolée

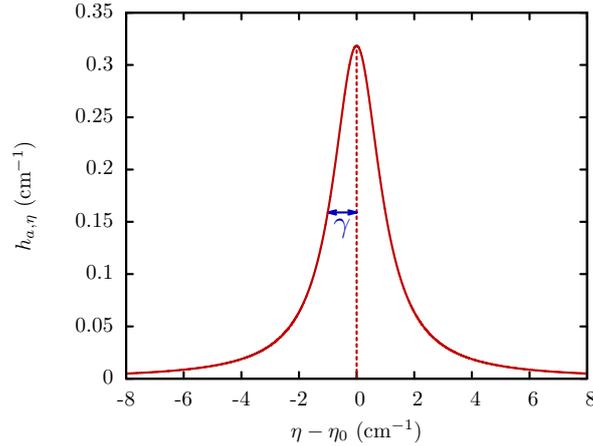
Toute absorption et émission de photons par la matière est donc conditionnée par les états énergétiques quantifiées de la molécule considérée. Si l'on souhaitait, pour une espèce  $m$  donnée et une transition énergétique  $\iota$  isolée, tracer la raie d'absorption associée à cette transition (c'est-à-dire représenter le coefficient d'absorption relatif à cette transition en fonction du nombre d'onde), il serait cohérent d'imaginer cette fonction comme un Dirac centré en le nombre d'onde  $\eta$  validant  $E_u - E_l = hc\eta$ . Mais en pratique, ce n'est pas le cas. Plusieurs facteurs sont à l'origine d'un élargissement sur l'échelle des nombres d'onde de ces prétendus "Diracs". Il est alors courant de décomposer le coefficient d'absorption<sup>9</sup> associé à la transition isolée  $\iota$  de la molécule  $m$  comme le produit d'une densité volumique d'absorbateurs  $C_m(\mathbf{x})$  et d'une section efficace  $\sigma_{\eta,\iota}(\mathbf{x})$  elle-même définie comme le produit d'une intensité de raie  $S_\iota(\mathbf{x})$  et

9. Tout au long de ce manuscrit, nous noterons le coefficient d'absorption associée à une raie  $\iota$  isolée  $h_{a,\eta,\iota}$  et le coefficient d'absorption global, résultant d'une multitude de transitions,  $k_{a,\eta}$ .

d'un profil de raie  $f_i(\eta) \equiv f_{i,m}(\eta, \mathbf{x})$  :

$$h_{a,\eta,i}(\mathbf{x}) = C_m(\mathbf{x}) \times S_i(\mathbf{x}) \times f_i(\eta) \quad (2.60)$$

où l'intensité de raie correspond à l'intégrale selon  $\eta$  de  $\sigma_{\eta,i}(\mathbf{x})$  sur  $[-\infty, +\infty]$  et le profil de raie est une fonction densité de probabilité normalisée sur  $[-\infty, +\infty]$  caractérisant l'élargissement de la raie.



**FIGURE 2.11** – Spectre d'absorption d'une raie isolée centrée en  $\eta_0$ . La transition est décrite par le produit de la densité volumique de l'espèce considérée, de son intensité et du profil de raie considéré dont le paramètre principal est la demi-largeur à mi-hauteur  $\gamma$ .

### 2.3.2.1 Élargissement des raies

On dénombre quatre principaux phénomènes à l'origine de l'élargissement des raies : les élargissements collisionnels, naturels, par effet Doppler et effet Stark [Goody et Yung, 1996, Caliot, 2006, Modest, 2013].

**Élargissement collisionnel** La principale cause d'élargissement des raies d'absorption est attribuée aux collisions inter-moléculaires qui causent une légère variation des états énergétiques des molécules entraînant ainsi une légère variation de l'énergie (et donc du nombre d'onde) d'émission du photon. Cet élargissement est d'autant plus prononcé que le nombre de collisions est important et donc croît avec la pression.

**Élargissement naturel** Une autre cause d'élargissement repose sur le principe d'indétermination (énoncé par W. Heisenberg en 1927), on parle d'élargissement naturel. Une des conséquences de ce principe est qu'il n'est pas possible de connaître sans incertitude à la fois le temps d'occupation naturel d'un état énergétique et l'énergie associée à cet état, influant ainsi sur le nombre d'onde du photon émis. Toutefois, cet élargissement est généralement négligeable face à l'élargissement collisionnel.

**Élargissement par effet Doppler** Chaque molécule ayant une vitesse propre, il convient également de prendre l'effet Doppler en compte. En effet, si une molécule de vitesse  $v_m$  (par rapport au référentiel de l'observateur) émet un photon, l'onde

électromagnétique associée à ce photon va atteindre l'observateur avec un nombre d'onde supérieur ou inférieur au nombre d'onde théorique  $\eta_0$  associé à la transition ayant conduit à l'émission. Ce nombre d'onde observé peut être supérieur ou inférieur à  $\eta_0$  selon que la molécule s'éloigne ou se rapproche de l'observateur. Un tel élargissement dépend de la vitesse des molécules et sera donc d'autant plus prononcé que la pression du milieu sera faible et que sa température sera élevée.

**Élargissement par effet Stark** Enfin, le dernier type d'élargissement (mentionné ici à titre purement indicatif) est causé par l'effet Stark. En présence de forts champs électriques, il devient largement prédominant face aux trois autres types d'élargissement. On le rencontre particulièrement dans les gaz ionisés.

### 2.3.2.2 Profils de raies

Ces différents types d'élargissement se caractérisent par deux principaux profils de raies symétriques, centrés autour du nombre d'onde  $\eta_0$  validant  $E_u - E_l = h\eta_0 c$ . Ces profils sont normalisés sur  $]-\infty, +\infty[$  et traduisent l'élargissement de la raie en fonction du nombre d'onde  $\eta$ .

**Profil de Lorentz** L'élargissement collisionnel et l'élargissement naturel se caractérisent par un profil de raie de type distribution de Cauchy, couramment appelé profil de Lorentz. Il s'exprime :

$$f_{i,L}(\eta) = \frac{\gamma_L}{\pi} \frac{1}{\gamma_L^2 + (\eta - \eta_0)^2} \quad (2.61)$$

où  $\gamma_L$  est appelée demi-largeur de raie du profil de Lorentz (voir Fig. 2.11).

**Profil de Doppler** L'élargissement par effet Doppler se caractérise quant à lui par un profil de raie de la forme d'une distribution gaussienne. Il s'exprime comme :

$$f_{i,D}(\eta) = \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \frac{1}{\gamma_D} \exp\left(-\ln(2) \frac{(\eta - \eta_0)^2}{\gamma_D^2}\right) \quad (2.62)$$

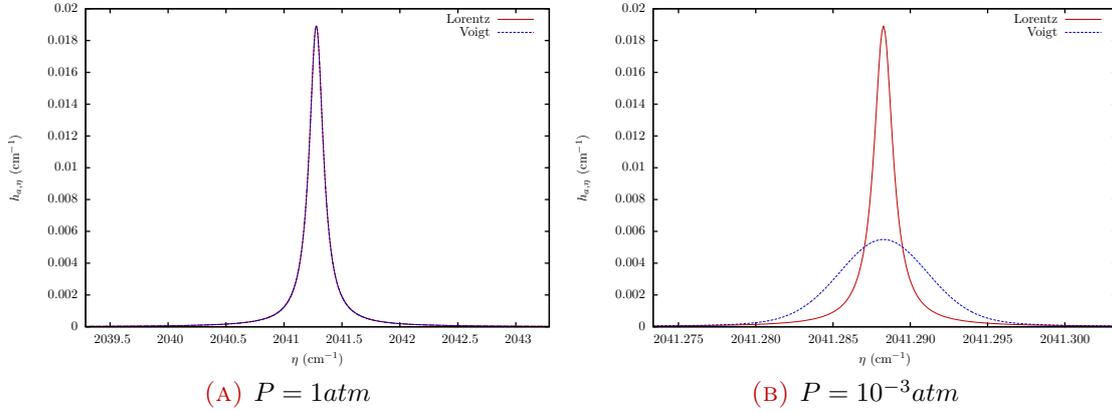
où  $\gamma_D$  est la demi-largeur de raie du profil de Doppler.

**Profil de Voigt** Il est cependant difficile de choisir entre le profil de Lorentz et celui de Doppler lorsque les collisions intermoléculaires et l'effet Doppler sont du même ordre de magnitude. Il est donc courant d'utiliser un troisième profil, appelé profil de Voigt, qui est défini comme le produit de convolution du profil de Lorentz et de celui de Doppler :

$$f_{i,V}(\eta - \eta_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} f_{i,L}(\eta - (\eta' - \eta_0)) f_{i,D}(\eta' - \eta_0) d\eta' \quad (2.63)$$

Pour des pressions atmosphériques ou supérieures, les profils de Lorentz et de Voigt sont quasiment identiques (voir Fig. 2.12a). Ce n'est que pour des pressions

très faibles qu'une différence entre ces deux profils sera constatée et pour lesquelles le profil de Voigt - plus fidèle à la physique - devra être privilégié (voir Fig. 2.12b).



**FIGURE 2.12** – Différence entre les profils de Lorentz et de Voigt pour la description d'une raie isolée. Pour une pression de  $P = 1 \text{ atm}$  les deux profils sont quasiment identiques (voir Fig. (A)). Au contraire pour une pression beaucoup plus faible de  $P = 10^{-3} \text{ atm}$  les deux profils se différencient très nettement à cause de l'effet Doppler qui devient dominant (voir Fig. (B)). La raie considérée est une raie de  $\text{CO}_2$  centrée en  $\eta_0 = 2041.288360 \text{ cm}^{-1}$  à une température de 300K. La fraction molaire de  $\text{CO}_2$  est de  $\chi_{\text{CO}_2} = 0.1$ .

**Correction de profils** Il est possible que les profils de Lorentz ou de Voigt ne soient pas suffisamment satisfaisants, en particulier lorsque les pressions rencontrées sont importantes. Des modifications de ces profils [Hartmann *et al.*, 2008, Eymet *et al.*, 2009, Eymet, 2011b, André *et al.*, 2014] sont alors appliquées.

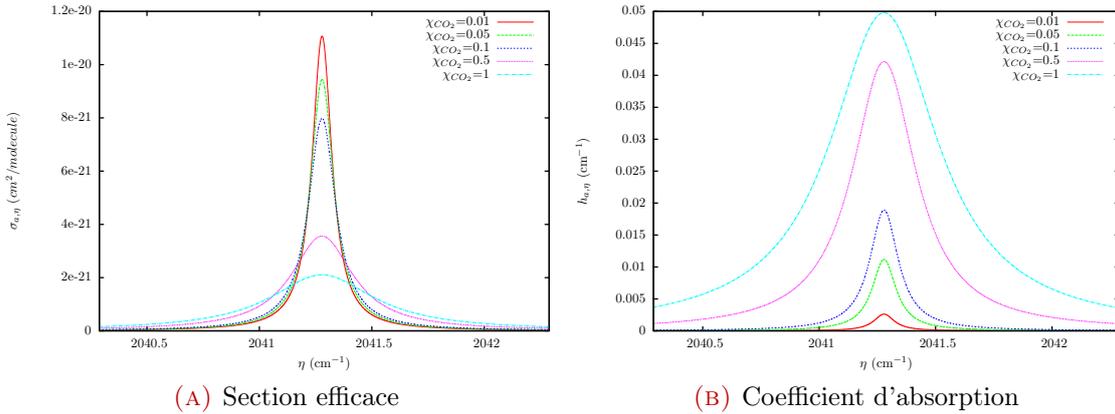
- La première d'entre-elles concerne les ailes de raie qui sont, lorsque la pression est importante, surestimées par les profils de raie usuels (de Lorentz ou de Voigt) [Burch *et al.*, 1969]. Des fonctions correctives sont alors appliquées, menant à un nouveau profil qualifié de *sub-Lorentzien* [Perrin et Hartmann, 1989, Tonkov *et al.*, 1996]. Ces surestimations des ailes de raie sont essentiellement constatées dans des bandes qualifiées de fenêtres spectrales, où les valeurs des coefficients d'absorption sont très faibles. Alors que leur impact est négligeable dans la plupart des applications de types sciences de l'ingénieur (combustion ...), il devient sensible dès lors que les épaisseurs optiques du milieu considéré deviennent importantes, en particulier pour des applications atmosphériques et astrophysiques [Bézarid *et al.*, 1990].
- Les fortes pressions mettent également en défaut les profils de raies usuels pour une seconde raison. En effet, ces pressions élevées engendrent, sur des temps caractéristiques très courts, de nouvelles espèces chimiques. Ces nouveaux éléments, ayant des transitions énergétiques propres, vont avoir tendance à élargir les profils de raies étudiés. On parlera alors d'*absorption induite par collisions*. Ce phénomène est en pratique corrigé par l'ajout d'un continuum correctif au spectre d'absorption [Moskalenko, 1979, Gruszka et Borysow, 1997].

Cependant la plage de validité de ces deux types de profils correctifs demeure généralement limitée : seules quelques bandes spectrales pour quelques espèces chimiques ont aujourd’hui été paramétrées.

### 2.3.2.3 Comportement des raies d’absorption en fonction des conditions thermodynamiques

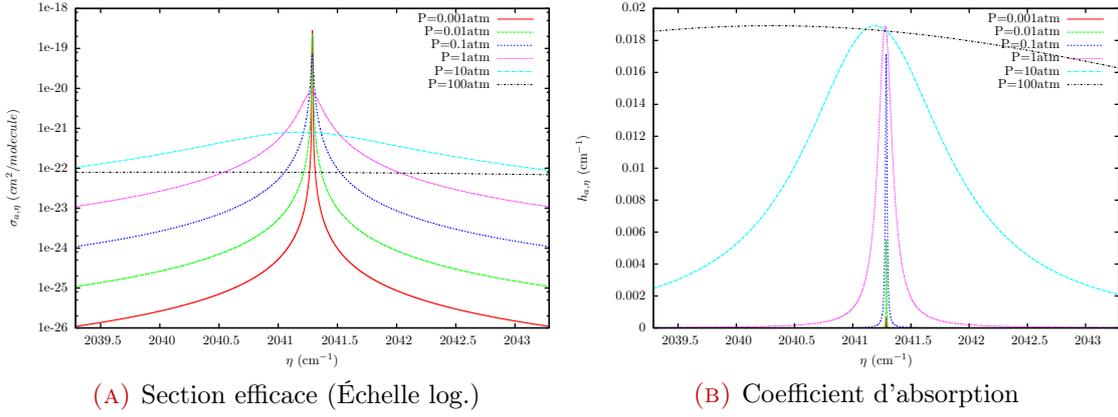
La pression  $P$ , la température  $T$  ainsi que la fraction molaire  $\chi_m$  de l’espèce considérée vont influencer sur le profil  $f_i(\eta)$  et l’intensité  $S_i$  de la raie et a fortiori sur sa section efficace  $\sigma_{a,i,\eta} = f_i(\eta)S_i$  et donc sur son coefficient d’absorption  $h_{a,i,\eta} = C_m\sigma_{a,i,\eta}$ .

**Effet de la fraction molaire.** La fraction molaire de l’espèce considérée influe sur la largeur de raie et donc sur la section efficace de la transition considérée (voir Fig. 2.13a). Une augmentation de cette fraction molaire peut conduire à un élargissement ou à un rétrécissement de la raie. Le coefficient d’absorption, défini comme le produit de la section efficace et de la densité volumique de l’espèce considérée (directement proportionnel à sa fraction molaire), à une tendance à augmenter avec la fraction molaire (voir Fig. 2.13b).



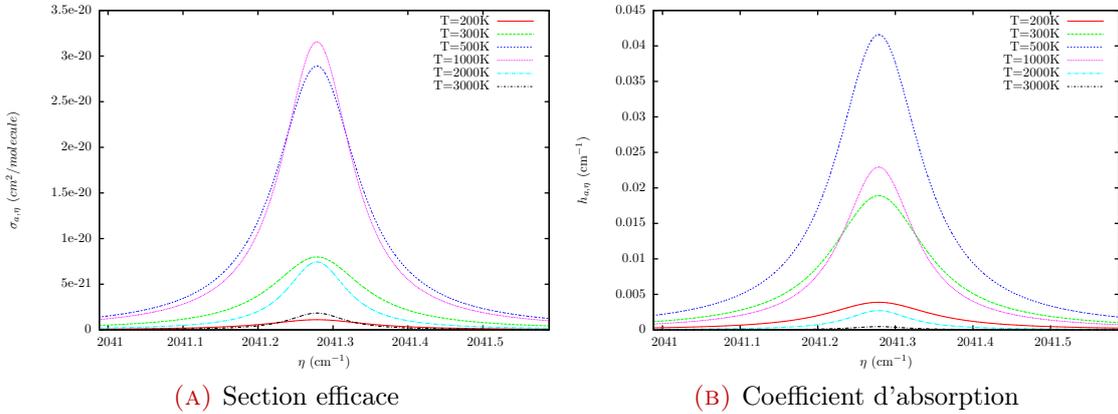
**FIGURE 2.13** – Effet de la fraction molaire sur la section efficace et le coefficient d’absorption d’une raie de  $\text{CO}_2$  isolée centrée en  $\eta_0 = 2041.288360\text{cm}^{-1}$  à une température de  $300\text{K}$  et une pression de  $1\text{atm}$ . Le profil de raie considéré est un profil de Voigt.

**Effet de la pression.** La pression joue quant à elle un rôle à la fois sur la densité volumique de l’espèce considérée, sur sa largeur et sa composante liée à l’effet Doppler (si l’on considère un profil de Voigt) et également sur le nombre d’onde de centre de raie. De façon générale, on constate qu’une augmentation de la pression a pour conséquence un aplatissement de la raie d’absorption et au contraire que de très faibles pressions engendrent des raies proches de Diracs (voir Fig. 2.14). En considérant un profil de Voigt, plus la pression est élevée, plus le coefficient d’absorption aura tendance à être important.



**FIGURE 2.14** – Effet de la pression sur la section efficace (donnée avec une échelle logarithmique) et le coefficient d'absorption d'une raie de  $\text{CO}_2$  isolée centrée en  $\eta_0 = 2041.288360\text{cm}^{-1}$  à une température de  $300\text{K}$ . La fraction molaire de  $\text{CO}_2$  est de  $\chi_{\text{CO}_2} = 0.1$  et le profil de raie considéré est un profil de Voigt.

**Effet de la température** Enfin, la température est l'élément à l'origine du plus grand nombre de sources de variation du coefficient d'absorption. Plus elle est importante, plus la densité volumique de l'espèce considérée est faible. La température influe également de façon complexe et non monotone sur l'intensité et la largeur de raie selon la transition considérée (voir Fig. 2.15). Il est fréquent de constater une augmentation substantielle du coefficient d'absorption de certaines raies avec la température, alors que pour les mêmes conditions, d'autres tendent à disparaître.



**FIGURE 2.15** – Effet de la température sur la section efficace et le coefficient d'absorption d'une raie de  $\text{CO}_2$  isolée centrée en  $\eta_0 = 2041.288360\text{cm}^{-1}$ . La fraction molaire de  $\text{CO}_2$  est fixée à  $\chi_{\text{CO}_2} = 0.1$ , la pression à  $1\text{atm}$  et le profil de raie considéré est un profil de Voigt.

## 2.3.3 Des transitions énergétiques au spectre d'absorption

### 2.3.3.1 De la raie au spectre

Jusqu'alors, nous nous sommes concentrés sur une raie isolée. Cependant lorsque l'on étudie un gaz, celui-ci est le plus souvent composé de plusieurs espèces qui doivent être prises en compte. De surcroît, chaque molécule de chaque espèce occupe un état énergétique donné. Cela se traduit par un nombre très conséquent de transitions qui, elles aussi doivent être considérées. Il est alors courant de considérer le coefficient d'absorption  $k_{a,\eta}(\mathbf{x})$  - pour un nombre d'onde, des conditions thermodynamiques et un mélange donnés - comme la somme des participations  $h_{a,i,\eta}(\mathbf{x}) = C_m(\mathbf{x})\sigma_{i,\eta}(\mathbf{x})$  de toutes les transitions  $N_i(m)$  de toutes les espèces  $N_m$  du mélange (voir Fig. 2.16) :

$$k_{a,\eta}(\mathbf{x}) = \sum_{m=1}^{N_m} \sum_{i=1}^{N_i(m)} h_{a,i,\eta}(\mathbf{x}) = \sum_{m=1}^{N_m} C_m(\mathbf{x}) \sum_{i=1}^{N_i(m)} \sigma_{i,\eta}(\mathbf{x}) \quad (2.64)$$

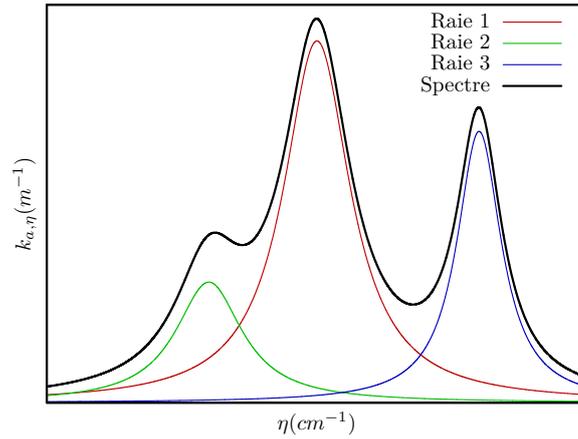


FIGURE 2.16 – Le spectre d'absorption est égal à la somme des participations de chaque raie en chaque nombre d'onde  $\eta$ .

La description du coefficient d'absorption comme la somme des participations de raies isolées constitue une hypothèse généralement raisonnable lorsqu'il s'agit de produire des spectres. Cette hypothèse sera d'ailleurs retenue tout au long de ce manuscrit. Cependant, en la posant, on omet en particulier de prendre en compte un effet appelé "Line Mixing" [Hartmann *et al.*, 2008]. En effet, des interactions entre deux transitions d'une même molécule peuvent avoir lieu par un transfert de population (on parle aussi d'échange d'intensité). C'est par exemple le cas lorsqu'un photon d'énergie  $hc\eta$  sensé conduire, lors de son absorption par une molécule, à une transition donnée, mène en fait, à cause d'une légère variation de l'état énergétique de la molécule (causée par des collisions moléculaires) à une autre transition très proche de la première.

### 2.3.3.2 Bases de données spectroscopiques

Lors de l'étude du rayonnement en milieu participant, il est nécessaire de pouvoir caractériser en tout point et pour tout nombre d'onde les propriétés optiques du milieu et en particulier le coefficient d'absorption. On fait alors généralement appel aux spectres d'absorption, définis pour un mélange (espèces en présence, fractions molaires respectives) et un jeu de conditions thermodynamiques (pression, température). Toutefois, mis à part pour quelques configurations académiques homogènes, il est généralement nécessaire de recourir à un grand nombre de spectres pour couvrir les hétérogénéités de propriétés du milieu. Une production expérimentale de ces spectres serait une tâche très lourde et complexe qui devrait être renouvelée à chaque changement de cas d'étude ou d'hypothèses relatives au calcul du spectre (profil, élargissements, troncatures, *etc.*). Aussi, une large communauté de spectroscopistes s'attache, depuis plusieurs décennies à produire, pour différentes espèces moléculaires, des bases de données dites *de transitions* ou *spectroscopiques* (les principales bases de données sont citées dans la [Tab. 2.2](#)). Originellement, ces bases de données spectroscopiques ont été développées pour des applications atmosphériques [[McClatchey et al., 1973](#)] (HITRAN, GEISA, CDS1000), et ont été étendues pour la gestion de configurations à hautes températures (CDS4000, Hitemp).

BDD + Version	Référence	Espèces	Gamme de T
CDS1000	[ <a href="#">Tashkun et al., 2003</a> ]	CO <sub>2</sub>	$\lesssim 1000K$
CDS4000	[ <a href="#">Tashkun et Perevalov, 2011</a> ]	CO <sub>2</sub>	$\lesssim 4000K$
Geisa 2011	[ <a href="#">Jacquinet-Husson et al., 2011</a> ]	50 molécules	Basses températures
Hitemp Hitemp 2010	[ <a href="#">Rothman et al., 2010</a> ]	CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O, CO, NO, OH	$\lesssim 1000K$ $\lesssim 3000K$
Hitran 2008 Hitran 2012	[ <a href="#">Rothman et al., 2009</a> ] [ <a href="#">Rothman et al., 2013</a> ]	42 molécules 47 molécules	Basses températures

**TABLE 2.2** – Principales bases données spectroscopiques fournies avec leur référence bibliographique et les espèces et gammes de températures d'application pour lesquelles elles sont établies.

Ces bases de données spectroscopiques recensent, pour un nombre conséquent de transitions énergétiques, quelques dizaines de paramètres<sup>10</sup>. Chaque jeu de paramètres permet alors de produire numériquement des raies d'absorption et ainsi des spectres [[Eymet, 2011b](#), [Eymet, 2013](#), [André et al., 2014](#)]. Outre certains paramètres quantiques ne rentrant pas directement en jeu dans la production de spectres, ces bases de données rassemblent pour chaque transition les paramètres suivants :

- $m$  : Indice de la molécule
- $i_{iso}$  : Indice de l'isotope
- $\eta_0^v$  : Nombre d'onde central de la transition dans le vide ( $cm^{-1}$ )
- $S$  : Intensité de raie pour la température de référence ( $cm^{-1}/(molecule\ cm^{-2})$ )
- $\gamma_{air}$  : Coefficient d'élargissement par collisions avec le reste du mélange (considéré comme de l'air) ( $cm^{-1}atm^{-1}$ )

10. L'ensemble des bases citées dans la [Tab. 2.2](#) ont adopté le même format de données, il est donc aisé dans des considérations informatiques de passer indifféremment de l'une à l'autre

- $\gamma_{self}$  : Coefficient d'élargissement par collisions avec des molécules de l'espèce considérée ( $cm^{-1}atm^{-1}$ )
- $E_{low}$  : Énergie du niveau bas de la transition ( $cm^{-1}$ )
- $n_{air}$  : Exposant de dépendance à la température de  $\gamma_{air}$  (-)
- $n_{self}$  : Exposant de dépendance à la température de  $\gamma_{self}$  (-) (uniquement dans CDSD4000)
- $\delta_P$  : Coefficient de décalage induit par la pression ( $cm^{-1}atm^{-1}$ ).

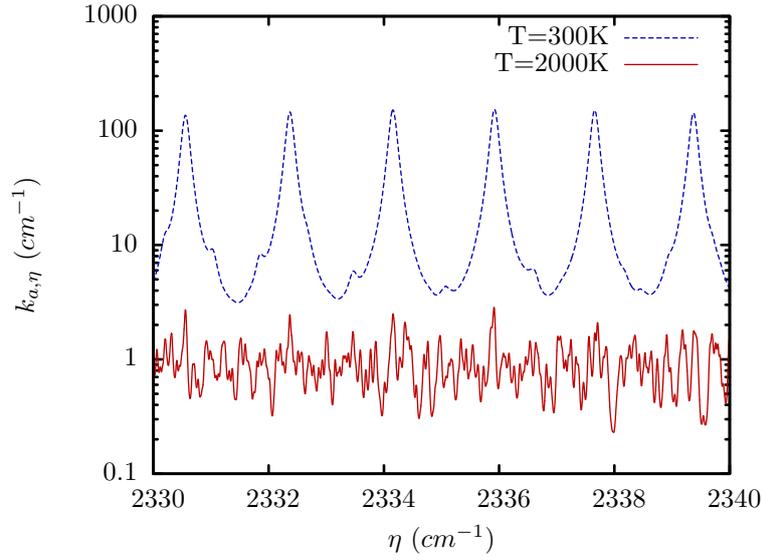
Toutefois, cette paramétrisation est très délicate. En effet, l'essentiel de ces paramètres est dépendant de la température, aussi chacune de ces bases de données est produite pour une température de référence  $T_{ref} = 296K$ , mis à part pour CDSD-1000 où  $T_{ref} = 1000K$ . De plus, la définition rigoureuse de la largeur d'une raie nécessite de connaître les fractions molaires de l'ensemble des espèces en présence pour quantifier les collisions inter-moléculaires conduisant à cet élargissement. Ne pouvant être représentatif de l'ensemble des mélanges gazeux, seules deux contributions à cet élargissement de raie sont fournies dans ces bases de données : celle due à l'espèce considérée (collisions entre molécules de la même espèce), et celle due aux collisions avec un mélange ayant la composition de l'air de l'atmosphère terrestre. Cela signifie donc que, dès lors que l'on s'éloignera de compositions proches de l'atmosphère terrestre, les spectres produits à partir de ces bases de données spectroscopiques seront plus ou moins biaisés.

Destinées originellement à l'étude de l'atmosphère terrestre, où les températures sont relativement faibles, ces bases de données ne recensaient que les paramètres des raies les plus intenses aux températures caractéristiques de leur objet d'application. Au cours du temps, avec des besoins croissants en termes de précision et de domaine d'application, ces bases de données n'ont cessé de s'enrichir, par l'introduction de raies de moins en moins intenses. Aujourd'hui les bases de données "basses températures" peuvent compter jusqu'à quelques millions de transitions pour une molécule unique.

Le besoin de bases de données pour décrire des applications "haute température" (notamment pour le domaine de la combustion) a également poussé la communauté de spectroscopistes à produire des bases de données encore plus importantes. En effet, comme présenté à la [Sec. 2.3.2.3](#), la température "active" un grand nombre de raies qui étaient jusqu'alors imperceptibles à faible température (voir [Fig. 2.17](#)). Ces nouvelles bases de données (CDSD, Hitemp) répertorient ainsi un nombre considérable de transitions susceptibles d'être sensibles à haute température (la base de données CDSD-4000 rassemble pour la seule molécule de  $CO_2$  les paramètres de plus de 600 millions de raies pour un volume de données approchant les 80Go).

### 2.3.3.3 Production de spectres d'absorption haute-résolution

À partir de l'[Eq. 2.64](#) et des paramètres contenus dans les bases de données spectroscopiques, il est alors possible de calculer le coefficient d'absorption pour un nombre d'onde, une température, une pression et une fraction molaire donnés (dans



**FIGURE 2.17** – Spectres d'absorption d'un mélange de gaz (5% de  $\text{CO}_2$  et 95% de  $\text{N}_2$ ) à pression atmosphérique pour deux températures différentes :  $T = 300\text{K}$  et  $T = 2000\text{K}$ . Le spectre à haute température présente un nombre beaucoup plus élevé de raies significatives.

la limite de validité de la base de données). Celui-ci s'exprime comme :

$$k_{a,\eta}(\mathbf{x}) = \sum_{m=1}^{N_m} C_m(\mathbf{x}) \sum_{i=1}^{N_i(m)} S_i(\mathbf{x}) f_i(\eta, \mathbf{x}) \quad (2.65)$$

L'intensité de la raie  $i$  est donnée par :

$$S_i(\mathbf{x}) = S(T_{ref}) \frac{Q(T_{ref})}{Q(T(\mathbf{x}))} \frac{\exp\left(-\frac{C_2 E_{low}}{T(\mathbf{x})}\right) \left(1 - \exp\left(-\frac{C_2 \eta_0}{T(\mathbf{x})}\right)\right)}{\exp\left(-\frac{C_2 E_{low}}{T_{ref}}\right) \left(1 - \exp\left(-\frac{C_2 \eta_0}{T_{ref}}\right)\right)} \quad (2.66)$$

où  $c_2 = 100hc_0/k_B \approx 1.4388\text{K.cm}$  et où  $Q(T)$  est la fonction de partition de l'isotope de l'espèce considérée à la température d'intérêt  $T$ . Ces fonctions de partitions peuvent être obtenues à partir de modèles quantiques analytiques de type oscillateurs harmoniques [André *et al.*, 2014], ou à partir de tabulations et d'un schéma d'interpolation. Au cours de ces travaux, nous utiliserons les tabulations publiées dans [Fischer *et al.*, 2003] (distribuées avec la base de données Hitran) en utilisant une interpolation Lagrangienne du troisième degré.

Concernant le profil de raie, les deux choix communs sont les profils de Lorentz ou de Voigt. Dans les deux cas le nombre d'onde de centre de raie est donné par

$$\eta_0 = \eta_0^v + \delta_P \times P \quad (2.67)$$

Pour un nombre d'onde  $\eta$  la valeur du profil de Lorentz est donnée par

$$f_{i,L}(\eta, \mathbf{x}) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma_{L,\eta}(\mathbf{x})}{\gamma_{L,\eta}(\mathbf{x})^2 + (\eta - \eta_0)^2} \quad (2.68)$$

où  $\gamma_{L,\eta}(\mathbf{x})$  est la demi-largeur à mi-hauteur du profil de Lorentz que l'on obtient à partir des paramètres contenus dans les bases spectroscopiques par :

$$\gamma_{L,\eta}(\mathbf{x}) = \left( \frac{T_{ref}}{T(\mathbf{x})} \right)^{n_{air}} [\gamma_{self} P_s + \gamma_{air} (P - P_s)] \quad (2.69)$$

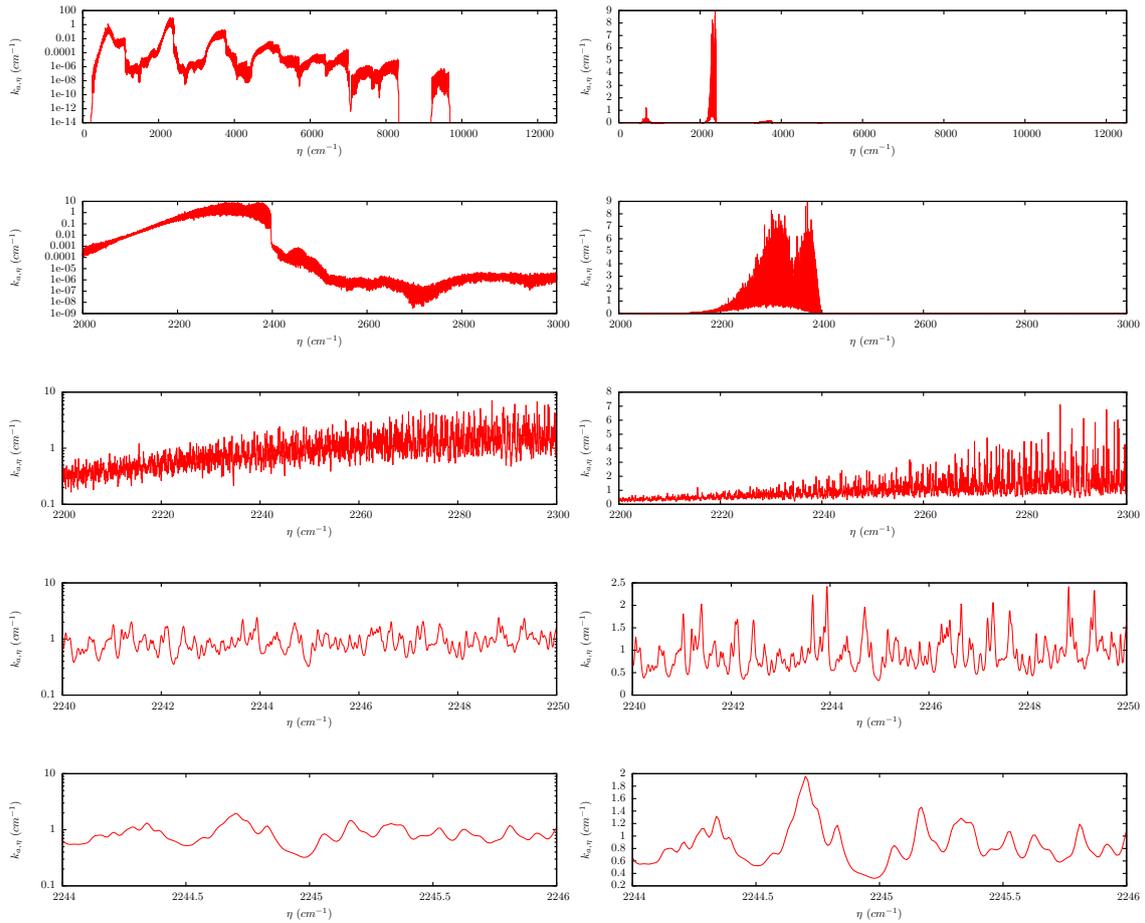
La valeur du profil de Voigt est, quant à elle, plus difficile à calculer d'un point de vue numérique car non analytique. En effet, il s'agit d'un produit de convolution d'un profil de Lorentz et d'un profil de Doppler. Nous avons fait ici le choix de recourir à l'algorithme d'Humlicek [Humlicek, 1982] qui présente l'avantage de maîtriser l'erreur numérique commise. Cette routine nécessite en plus de la demi-largeur du profil de Lorentz, la demi-largeur du profil de Doppler, donnée par :

$$\gamma_{D,\eta}(\mathbf{x}) = \frac{\eta_0}{c_0} \sqrt{\frac{2 \ln(2) k_B T(\mathbf{x})}{M}} \quad (2.70)$$

où  $M$  est la masse molaire de l'isotope considéré.

La production de spectres d'absorption à partir de bases de données spectroscopiques demeure tout de même une tâche fastidieuse. En effet, pour une résolution spectrale déterminée, l'ensemble des contributions de chaque transition  $S_i(\mathbf{x}) f_{\eta,i}(\mathbf{x})$  doit être calculé. En pratique pour des cas à pression atmosphérique, la résolution communément admise pour décrire correctement la variation spectrale du coefficient d'absorption est de  $10^{-2} cm^{-1}$  soit près de dix millions de points pour couvrir entièrement la gamme spectrale du rayonnement thermique (un exemple de spectre haute résolution est donné à la Fig. 2.18). Pour des pressions plus faibles, il est courant de descendre à une résolution inférieure à  $10^{-5} cm^{-1}$ . Une telle production de spectres et l'étude radiative qui s'y appuie sont connues sous le nom d'approche *raie par raie* (ou *LBL*, pour *line-by-line*) et fait office de solution de référence. Pour alléger ce coûteux processus, il est alors courant de recourir à plusieurs hypothèses simplificatrices :

- Sélectionner uniquement les raies les plus intenses dans les gammes de températures d'étude. Les seuils minimum d'intensité pour une température donnée sont généralement de l'ordre de  $3 \cdot 10^{-27} cm/molecule$  voire de  $3 \cdot 10^{-29} cm/molecule$  [Rothman *et al.*, 2013].
- La seconde méthode consiste à considérer que les raies n'apportent une contribution au coefficient d'absorption que pour des nombres d'onde proches de celui du centre de raie. Ainsi, les ailes de raie au-delà d'une certaine distance (généralement  $25 cm^{-1}$ ) sont tronquées :  $h_{a,|\eta-\eta_0|>0} = 0 cm^{-1}$ . Une telle approche peut alléger considérablement les temps de calcul puisque pour un nombre d'onde  $\eta$  d'intérêt, seules les raies centrées dans l'intervalle  $[\eta - 25, \eta + 25]$  sont prises en compte. Cette approche, connue sous le nom de *troncature de raie*,



**FIGURE 2.18** – Spectres d'absorption définis à haute résolution pour différents intervalles spectraux (à gauche les échelles sont logarithmiques et à droite linéaires). Le mélange gazeux considéré est composé de 50% de  $\text{CO}_2$  et de 50% de  $\text{N}_2$  à une température de 1500K et une pression de 1atm. Les calculs ont été réalisés à partir de la base de données *CDSD-4000* (628 064 550 transitions) avec une troncature d'aile de raie à  $25\text{cm}^{-1}$  et en considérant des profils de raie Lorentzien.

est en partie justifiée par le fait que les profils standards de raie (de Voigt et Lorentz) sont peu représentatifs au niveau des ailes de raie lointaines.

- Enfin, en plus d'être coûteux à produire, ces spectres présentent le désavantage d'être complexes à gérer lors de calculs radiatifs du fait de l'importante variation spectrale du coefficient d'absorption. Aussi, depuis près d'un siècle, un grand nombre de modèles dégradés de spectres (analytiques, statistiques...) ont été développés pour répondre à ce défaut. Ne faisant pas l'objet des travaux présentés dans ce manuscrit, ces modèles approchés ne seront pas détaillés. De plus amples informations concernant ces modèles peuvent être trouvés dans [Goody et Yung, 1996, Taine et Soufiani, 1999, Siegel *et al.*, 2011, Modest, 2013, André *et al.*, 2014].

Différents codes de calculs sont disponibles pour la production de tels spectres d'absorption, parmi lesquels on peut citer deux codes exécutables directement via une interface web "Information-calculating system Spectroscopy of Atmospheric Gases" [Semiletova, 2005] (<http://spectra.iao.ru/>) et "Hitran on the Web" [Rothman *et al.*, 2013] (<http://hitran.iao.ru/>) ou encore le code Kspectrum [Eymet, 2011b] (<http://meso-star.com/>) développé par V. Eymet qui présente l'avantage de pouvoir maîtriser les erreurs d'interpolation spectrale grâce à un maillage à pas adaptatif.

## Résumé du chapitre

Ce chapitre a eu pour but de rappeler des éléments essentiels de la physique du transfert radiatif en milieu gazeux qui vont être utilisés dans la suite du manuscrit. La luminance, grandeur de base du rayonnement a été présentée et placée dans sa description mésoscopique, permettant d'approcher le transfert radiatif dans des considérations statistiques propres à la physique du transport corpusculaire. Les différentes interactions entre rayonnement et gaz ont également été présentées et l'équation du transfert radiatif, cas particulier des équations de Boltzmann, a été établie sous ses formulations locale (ou différentielle) et intégrale. Enfin, une partie a été consacrée aux mécanismes d'absorption et d'émission de rayonnement par la matière, introduisant ainsi les notions de transitions moléculaires, de coefficients d'absorption et de spectres d'absorption. Un accent particulier a été mis sur les différentes dépendances du coefficient d'absorption (à la pression, température, composition chimique et au nombre d'onde) qui occuperont une place importante dans les chapitres qui vont suivre.