# Intégration spectrale par échantillonnage des transitions

Introduction		
5.1	Inté	gration spectrale d'observables radiatives en milieu
	gaze	eux
	5.1.1	Représentations usuelles du coefficient d'absorption 139
	5.1.2	Reformulation statistique du coefficient d'absorption 141
	5.1.3	Non-linéarité du terme d'extinction
5.2	Algo	orithmes à collisions nulles avec échantillonnage des
	$\operatorname{tran}$	$ m sitions \ldots 145$
	5.2.1	Représentation statistique du coefficient d'absorption dans
		l'équation du transfert radiatif
	5.2.2	Perspectives numériques et analytiques offertes par cette
		approche
	5.2.3	Gestion des coefficients négatifs de collision nulle 152
	5.2.4	Proposition d'améliorations algorithmiques 153
5.3	Mise	e en pratique dans un benchmark et choix des pa-
	ram	ètres libres $\ldots \ldots 154$
	5.3.1	Présentation des six configurations d'étude
	5.3.2	Approche par variance nulle afin d'orienter le choix des
		probabilités $\dots \dots \dots$
	5.3.3	Choix des paramètres libres
	5.3.4	Résultats obtenus pour les cas d'étude considérés 169
	5.3.5	Coefficients $h_{n,m,i,\eta}$ négatifs et événements rares
Résumé du chapitre		

## Introduction

Dans le chapitre précédent, les algorithmes à collisions nulles ont été introduits pour traiter la dépendance spatiale des propriétés du milieu. Il devient désormais possible, par l'ajout de collisions fictives, de se passer d'une discrétisation préalable des champs de propriétés, tout en assurant le caractère de calcul de référence des méthodes de Monte-Carlo. Ces algorithmes n'ont été, jusqu'alors, présentés que pour traiter des grandeurs radiatives monochromatiques.

Toutefois, quels que soient les domaines applicatifs, ce sont généralement des grandeurs intégrées sur une plage de nombres d'onde qui intéressent les spécialistes. Or, cette intégration constitue usuellement l'étape la plus limitante et la plus délicate à mettre en œuvre, à cause de la complexité qu'impliquent les dépendances spectrales des différentes propriétés optiques. Il faut en effet, pour résoudre l'équation du transfert radiatif, être capable de représenter ou de modéliser ces dépendances pour chacun des termes la composant (coefficients d'absorption, de diffusion, luminance d'équilibre, fonction de phase, *etc.*). Cette forte complexité est en particulier rencontrée lorsque l'on tente de décrire le coefficient d'absorption, qui, en plus d'avoir une dépendance spatiale (ou plutôt une dépendance aux conditions locales de température, de pression et de composition chimique), dépend de façon particulièrement prononcée du nombre d'onde (voir Chap. 2).

Aussi, l'objet de ce chapitre va être de proposer une approche permettant de traiter statistiquement, lors d'un calcul de grandeur intégrée spectralement, le coefficient d'absorption et ses dépendances spatiales et spectrales. Notre motivation est, ici encore, de reformuler le problème lié à cette forte complexité sous un aspect purement statistique et d'étudier les avantages que pourrait offrir une telle approche. Nous allons alors voir comment les algorithmes à collisions nulles permettent de repenser de façon statistique, directement au sein de l'équation du transfert radiatif, l'expression du coefficient d'absorption. Cela conduira alors au développement d'algorithmes de Monte-Carlo évaluant de façon non biaisée une observable intégrée spectralement sans nécessiter une production préalable de spectres d'absorption ou de modèles spectraux simplifiés. Les propriétés optiques seront reconstruites statistiquement au cours du calcul par un échantillonnage des transitions moléculaires, directement réalisé depuis les bases de données spectroscopiques. Ces algorithmes ne feront appel à aucune des approximations couramment utilisées et conserveront ainsi leur statut de solutions de référence.

Ce chapitre est divisé en trois parties. Dans un premier temps, un bref état de l'art relatif à la représentation spectrale des coefficients d'absorption sera présenté. Puis, nous montrerons comment il est possible de repenser de façon statistique l'idée même de coefficient d'absorption. Nous mettrons également en évidence, le problème de non-linéarité qu'entraîne cette reformulation du coefficient d'absorption, au sein de l'équation du transfert radiatif.

La seconde section, essentiellement formelle, aura pour objet de montrer comment les algorithmes à collisions nulles permettent une nouvelle fois de passer outre ce caractère non-linéaire. Un algorithme à collisions nulles, basé sur un échantillonnage des transitions depuis des bases de données spectroscopiques, sera alors proposé et une discussion des perspectives qu'entraînent cette nouvelle approche sera effectuée.

Enfin, dans la troisième partie, nous mettrons en pratique cette approche sur six cas d'étude couvrant différentes problématiques de combustion. Une partie importante de cette section sera consacrée aux choix de nombreux paramètres libres requis par l'approche proposée, n'ayant aucune incidence sur le caractère exact de la méthode, mais conditionnant de façon importante le taux de convergence de l'algorithme de Monte-Carlo.

Nous nous concentrerons pendant tout ce chapitre sur l'étude d'un milieu nondiffusant. En effet, l'ajout d'événements de diffusion n'apporterait pas d'intérêt particulier à l'approche proposée ici, ni de difficultés supplémentaires (voir Chap. 4).

# 5.1 Intégration spectrale d'observables radiatives en milieu gazeux

#### 5.1.1 Représentations usuelles du coefficient d'absorption

Lorsqu'il s'agit d'aborder des problématiques de rayonnement thermique en milieu gazeux (analyse expérimentale, simulation, inversion, *etc.*), les ingénieurs et physiciens s'appuient directement ou indirectement sur des bases de données spectroscopiques [Jacquinet-Husson *et al.*, 2011, Rothman *et al.*, 2010, Rothman *et al.*, 2013, Tashkun et Perevalov, 2011]. Ces bases de données, produites par une communauté très active de spectroscopistes, rassemblent, pour de nombreuses espèces moléculaires et pour un nombre considérable de transitions, plusieurs paramètres (voir Sec. 2.3.3) permettant de décrire les phénomènes d'absorption et d'émission d'un gaz. Toutefois, même pour les gaz les plus simples à des températures faibles, le nombre de transitions moléculaires à prendre en compte est extrêmement important (les paramètres de plus de 600 millions de transitions moléculaires sont représentés pour la seule molécule de  $CO_2$  dans la base de données CDSD-4000 [Tashkun et Perevalov, 2011]). Traiter cette quantité conséquente d'information représente alors une tâche particulièrement fastidieuse.

En effet, le coefficient d'absorption que l'on cherche à représenter à partir de ces bases, dépend à la fois de la température, de la pression, du mélange gazeux et du nombre d'onde. Pour produire un unique spectre d'absorption (c'est-à-dire pour une température, une pression et un mélange fixés), il est nécessaire de sommer de façon déterministe, en chaque nombre d'onde, l'ensemble des contributions d'absorption de chaque transition. La variation spectrale du coefficient d'absorption étant très prononcée, ce calcul doit être réalisé sur des pas spectraux très petits. On considère généralement, qu'à pression atmosphérique, la résolution d'un spectre d'absorption doit être de  $0.01cm^{-1}$  pour décrire correctement ces variations. Cela signifie que la production d'un spectre d'absorption couvrant tout le domaine infrarouge nécessite entre  $10^6$  et  $10^7$  calculs de coefficients d'absorption (chacun

consistant à sommer plusieurs milliers, voire plusieurs millions de participations de raies). De tels spectres sont qualifiés de spectres haute-résolution. Dans le but de rendre cette somme plus aisée, le modèle spectroscopique est souvent simplifié afin d'avoir à sommer en chaque nombre d'onde une quantité plus faible de transitions (ex : prise en compte uniquement des transitions ayant une intensité supérieure à un seuil donné, troncature des ailes de raie,*etc.*). Cependant, même avec ces allègements, la production de spectres haute-résolution demeure très coûteuse et nécessite d'être reproduire à chaque changement de modèle de raie, d'hypothèse spectrale, ou encore à chaque nouvelle version de base de données spectroscopique.

Une fois ces spectres d'absorption haute-résolution produits, deux pratiques sont couramment rencontrées pour prendre en compte leur information spectrale dans le calcul d'une observable radiative. La première consiste à simplifier ces spectres par des modèles approchés. Un grand nombre de modèles spectraux ont été développés au cours des dernières décennies, devenant de plus en plus précis et de plus en plus performants. Néanmoins, le passage d'un spectre haute-résolution à un spectre simplifié se traduit nécessairement par une perte d'information qui n'est pas acceptable lorsqu'il s'agit de proposer des solutions de référence. La seconde pratique consiste à extraire, directement lors du calcul d'une observable radiative, les coefficients d'absorption contenus dans ces spectres; on parle alors d'approche raie-par-raie. Ces approches, beaucoup plus lourdes en termes de mise en œuvre que les modèles spectraux simplifiés, sont aujourd'hui considérées comme solutions de référence. Toutefois, lors du calcul radiatif, il est nécessaire, pour obtenir la valeur du coefficient d'absorption en un point donné, de recourir à une interpolation selon un jeu de pressions, de températures, de concentrations moléculaires et de nombres d'onde. Cette étape peut, si la résolution du jeu de spectres (relative aux conditions thermodynamiques ou aux nombres d'onde) est trop faible, conduire à un léger biais de l'estimation de la grandeur d'intérêt. Une autre solution consisterait à calculer rigoureusement, au fil du calcul, le coefficient d'absorption à partir des bases de données spectroscopiques. Les incertitudes dues aux procédures d'interpolation disparaîtraient alors. En pratique, cette solution n'est jamais adoptée car les temps de calcul deviennent très vite excessifs. On préfère généralement, dans des motivations de calcul de référence, l'utilisation de spectres haute-résolution qui offrent l'avantage supplémentaire de pouvoir être réutilisés d'une simulation à l'autre.

La quantité conséquente d'information contenue dans ces bases de données a toujours motivé la communauté de la spectroscopie moléculaire à proposer des représentations statistiques. Les exemples les plus significatifs correspondent au développement de modèles statistiques qui permettent l'évaluation de transmissivités moyennées par bande spectrale, à partir de pondérations des intensités ou des largeurs de raies. Cependant, en pratique cette relation directe entre statistiques de raies et transmissivités moyennes s'est perdue rapidement. L'idée d'utiliser des modèles statistiques est restée, notamment avec les travaux de Malkmus ([Malkmus, 1967]), mais ces modèles se sont de plus en plus appuyés sur les spectres d'absorption haute-résolution et non sur les paramètres de transition eux-mêmes. Plus tard, le développement des k-distributions [Lacis et Oinas, 1991, Taine et Soufiani, 1999] a poursuivi cette même logique : les approches restent statistiques mais elles sont désormais uniquement basées sur des spectres haute-résolution, calculés de façon déterministe.

Nous soutenons ici que l'on peut attendre d'importants bénéfices, tant numériques qu'en termes d'analyse, si l'on supprime cette étape déterministe de production de spectres haute-résolution. Une part de ces bénéfices est illustrée dans [Feldick et Modest, 2011, Ren et Modest, 2013], où il est montré que la complexité liée à l'intégration spectrale par échantillonnage des nombres d'onde est mieux traitée en s'appuyant sur les paramètres de transitions plutôt qu'en restant au niveau des spectres d'absorptions [Modest, 1992].

### 5.1.2 Reformulation statistique du coefficient d'absorption

En négligeant les effets de "line-mixing" (voir Sec. 2.3.3.1), le coefficient d'absorption  $k_{a,\eta}(\mathbf{x})$  pour un nombre d'onde  $\eta$ , au point  $\mathbf{x}$  s'exprime comme la somme des contributions  $h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})$  de l'ensemble des transitions énergétiques i de toutes les espèces moléculaires m en présence :

$$k_{a,\eta}(\mathbf{x}) = \sum_{m=1}^{N_m} \sum_{i=1}^{N_i(m)} h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})$$
(5.1)

où  $N_m$  est le nombre d'espèces moléculaires et  $N_i(m)$  est le nombre de transitions pour une espèce m donnée. Puisque cette expression ne constitue qu'une double somme, il est possible de l'exprimer comme une espérance par l'introduction de probabilités arbitraires associées à chaque espèce moléculaire  $\mathcal{P}_m(\mathbf{x}) \equiv \mathcal{P}_{m,\eta}(\mathbf{x})$  et à chaque transition  $\mathcal{P}_i(\mathbf{x}) \equiv \mathcal{P}_{m,i,\eta}(\mathbf{x})$  d'une espèce moléculaire donnée :

$$k_{a,\eta}(\mathbf{x}) = \sum_{m=1}^{N_m} \mathcal{P}_m(\mathbf{x}) \sum_{i=1}^{N_i(m)} \mathcal{P}_i(\mathbf{x}) \left[ \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})}{\mathcal{P}_m(\mathbf{x})\mathcal{P}_i(\mathbf{x})} \right] = \mathbb{E} \left[ \frac{h_{a,\mathcal{M},\mathcal{I},\eta}(\mathbf{x})}{\mathcal{P}_M(\mathbf{x})\mathcal{P}_{\mathcal{I}}(\mathbf{x})} \right]$$
(5.2)

Les indices m des espèces moléculaires ainsi que les indices i des transitions constituent alors des variables aléatoires discrètes, respectivement notées  $\mathcal{M}$  et  $\mathcal{I}$ , définies par les probabilités  $\mathcal{P}_m$  et  $\mathcal{P}_i$ .

L'essentiel de la proposition faite dans ce chapitre réside dans cette simple reformulation statistique. Une conséquence directe de cette reformulation est qu'il devient possible, en pratique, d'estimer le coefficient d'absorption  $k_{a,\eta}(\mathbf{x})$  pour un nombre d'onde donné ou même de reconstruire un spectre (voir Fig. 5.1) de façon totalement stochastique par un algorithme de Monte-Carlo. Cet algorithme consisterait à réaliser un grand nombre  $N_{mc}$  de fois et de manière indépendante les étapes suivantes :



FIGURE 5.1 – Spectres d'absorption calculés avec une approche raie-par-raie et par un algorithme de Monte-Carlo (valeurs données avec leurs intervalles de confiance obtenus avec 1000 réalisations indépendantes). Le mélange considéré est composé de CO<sub>2</sub> et de H<sub>2</sub>O (de fractions molaires respectives  $\chi_{CO_2} = 2.87E - 4$  et  $\chi_{H_2O} = 2.25E - 2$ ) à une température de 294K et une pression de l*atm*. Les bases de données spectroscopiques CDSD1000 et HITEMP ont été utilisées pour réaliser ce calcul.

#### - Algorithme

- 1. Échantillonner une molécule  $m_i$  parmi l'ensemble des  $N_m$  molécules selon les probabilités discrètes  $\mathcal{P}_m(\mathbf{x})$  associées à chacune des molécules
- 2. Échantillonner une transition  $\iota_i$  parmi l'ensemble des  $N_i(m_i)$  transitions de la molécule  $m_i$  selon les probabilités discrètes  $\mathcal{P}_i(\mathbf{x})$  associées à chacune des transitions de la molécule  $m_i$
- **3.** Calculer le poids de Monte-Carlo :  $w_i = h_{a,m_i,\iota_i,\eta}(\mathbf{x})/\mathcal{P}_{m_i}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{\iota_i}(\mathbf{x})$  en accord avec le modèle de raie considéré, directement à partir des paramètres de transitions contenus dans la base spectroscopique d'intérêt.

L'estimation du coefficient d'absorption par cet algorithme est alors donnée par la moyenne arithmétique des  $N_{mc}$  poids  $w_i$ . Il est également possible d'estimer l'écart-type associé à cette estimation. En d'autres termes, il n'est pas nécessaire de prendre en compte l'ensemble des transitions pour estimer  $k_{a,\eta}(\mathbf{x})$ , mais d'en échantillonner un nombre suffisant pour lesquelles on calcule au fil de la simulation les contributions  $h_{a,m_i,\iota_i,\eta}(\mathbf{x})$  à partir des bases de données spectroscopiques retenues. La convergence de l'algorithme sera alors entièrement conditionnée par le choix des  $\mathcal{P}_m(\mathbf{x})$  et des  $\mathcal{P}_i(\mathbf{x})$  (qui devront être attribuées à chaque espèce et à chaque transition avant ou pendant le calcul).

Les éléments de physique statistique nous permettent de considérer que l'ensemble des molécules et l'ensemble des transitions énergétiques sont représentés en  $\mathbf{x}$  avec des probabilités de présence plus ou moins importantes. Les images physiques associées à cet exercice de reformulation résident alors simplement dans le fait de sélectionner de

façon aléatoire plusieurs molécules ayant des états énergétiques donnés pour estimer le coefficient d'absorption global  $k_{a,\eta}$ .

#### 5.1.3 Non-linéarité du terme d'extinction

Si l'on s'arrêtait à ce stade, l'intérêt de considérer statistiquement les coefficients d'absorption demeurerait limité. Notre souhait est d'introduire directement dans l'équation du transfert radiatif une description statistique des coefficients d'absorption pour permettre une intégration spectrale ne requérant ni approximation (liée à une éventuelle interpolation), ni calcul préalable de spectres d'absorption haute-résolution.

Pour mettre en évidence les difficultés qu'entraîne cette introduction, considérons la luminance  $L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0)$ , intégrée spectralement entre  $\eta_{\min}$  et  $\eta_{\max}$  dans un milieu infini, non-diffusant et homogène (le coefficient d'absorption est uniforme). Dans ces conditions, cette luminance peut être exprimée comme :

$$L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0) = \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} d\eta \int_0^{+\infty} dl \ k_{a,\eta} \exp\left(-k_{a,\eta}l\right) L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}_0 - l\mathbf{u}_0)$$
(5.3)

Reformuler cette équation comme une expression statistique ne pose pas de problème majeur dès lors que l'on considère les nombres d'onde comme une variable aléatoire à laquelle on associe une densité de probabilité arbitraire  $p_H(\eta)$ . Il vient alors :

$$L(\mathbf{x}_{0}, \mathbf{u}_{0}) = \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} p_{H}(\eta) d\eta \int_{0}^{+\infty} p_{\mathcal{L}}(l) dl \frac{L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}_{0} - l\mathbf{u}_{0})}{p_{H}(\eta)}$$
$$= \mathbb{E}\left[\frac{L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}_{0} - l\mathbf{u}_{0})}{p_{H}(\eta)}\right]$$
(5.4)

où  $p_{\mathcal{L}}(l) = k_{a,\eta} \exp(-k_{a,\eta}l)$  est la densité de probabilité des libres parcours  $\mathcal{L}$ .

La transposition de cette expression en un algorithme de Monte-Carlo est donc aisée. Chacune de ses réalisations indépendantes consiste à échantillonner un nombre d'onde  $\eta_i$  selon  $p_H(\eta)$  et un libre parcours  $l_i$  selon  $p_{\mathcal{L}}(l)$ ; le poids de Monte-Carlo de la réalisation indépendante *i* est alors donné par  $w_i = L_{\eta_i}^{eq}(\mathbf{x}_0 - l_i \mathbf{u}_0)/p_H(\eta_i)$ . Toutefois, en l'état, l'Eq. 5.3 et son algorithme correspondant, imposent que la valeur de  $k_{a,\eta}$  soit connue pour tout nombre d'onde  $\eta$ . La mise en œuvre pratique de cet algorithme nécessiterait de façon classique la production rigoureuse d'un spectre d'absorption défini à haute-résolution pour les conditions de température, de pression et de composition chimique du cas d'étude. Celui-ci devrait alors être interpolé spectralement pour obtenir la valeur du coefficient d'absorption pour un nombre d'onde  $\eta_i$  donné. Si les propriétés du milieu n'étaient pas uniformes, il serait nécessaire de produire un nombre suffisant de spectres pour couvrir ces hétérogénéités de température, de pression et de composition moléculaire. Pour remonter à la valeur de  $k_{a,\eta}(\mathbf{x})$  pour un point et un nombre d'onde donnés, il serait alors nécessaire d'interpoler ce jeu de spectres à la fois spectralement mais également spatialement (ou selon la pression, la température et les fractions molaires d'espèces).

Mais nous soutenons ici, qu'il est possible de se passer de cette production rigoureuse de spectres haute-résolution par un traitement statistique de l'expression des coefficients d'absorption. Il est possible de remplacer dans l'Eq. 5.3 les coefficients d'absorption  $k_{a,\eta}$  par leur expression statistique donnée à l'Eq. 5.2. Il vient alors :

$$L(\mathbf{x}_{0}, \mathbf{u}_{0}) = \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} d\eta \int_{0}^{+\infty} dl \sum_{m=1}^{N_{m}} \mathcal{P}_{m} \sum_{i=1}^{N_{i}(m)} \mathcal{P}_{i} \frac{h_{a,m,i,\eta} L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}_{0} - l\mathbf{u}_{0})}{\mathcal{P}_{m} \mathcal{P}_{i}}$$

$$\times \exp\left(-\sum_{m'=1}^{N_{m}} \mathcal{P}_{m'} \sum_{i'=1}^{N_{i}(m)} \mathcal{P}_{i'} \frac{h_{a,m',i',\eta} l}{\mathcal{P}_{m'} \mathcal{P}_{i'}}\right)$$
(5.5)

Pour passer à une expression de la luminance  $L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0)$  sous forme d'espérance, il est nécessaire d'introduire deux densités de probabilité arbitraires :  $p_H(\eta)$  associée aux nombres d'onde et  $\tilde{p}_{\mathcal{L}}(l)$  associée aux libres parcours. On obtient alors

$$L(\mathbf{x}_{0}, \mathbf{u}_{0}) = \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} p_{H}(\eta) d\eta \int_{0}^{+\infty} \tilde{p}_{\mathcal{L}}(l) dl \sum_{m=1}^{N_{m}} \mathcal{P}_{m} \sum_{i=1}^{N_{i}(m)} \mathcal{P}_{i} \frac{h_{a,m,i,\eta} L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}_{0} - l\mathbf{u}_{0})}{p_{H}(\eta) \tilde{p}_{\mathcal{L}}(l) \mathcal{P}_{m} \mathcal{P}_{i}}$$
$$\times \exp\left(-\sum_{m'=1}^{N_{m}} \mathcal{P}_{m'} \sum_{i=1}^{N_{i}(m)} \mathcal{P}_{i'} \frac{h_{a,m',i',\eta}l}{\mathcal{P}_{m'} \mathcal{P}_{i'}}\right)$$
(5.6)

qui, sous forme d'espérance, donne

$$L(\mathbf{x}_{0}, \mathbf{u}_{0}) = \mathbb{E}\left[\frac{h_{a, \mathcal{M}, \mathcal{I}, H} L_{H}^{eq}(\mathbf{x}_{0} - \mathcal{L}\mathbf{u}_{0})}{p_{H}(H) \tilde{p}_{\mathcal{L}}(\mathcal{L}) \mathcal{P}_{m} \mathcal{P}_{i}} \exp\left(-\mathbb{E}\left[\frac{h_{a, \mathcal{M}', \mathcal{I}', H} \mathcal{L}}{\mathcal{P}_{m'} \mathcal{P}_{i'}}\right]\right)\right]$$
(5.7)

Nous nous retrouvons alors exactement dans la même configuration que lorsque nous souhaitions traiter les hétérogénéités des propriétés radiatives du milieu (voir Sec. 4.1.3) : l'extinction exponentielle introduit une non-linéarité dans l'expression statistique de la luminance. Cette non-linéarité ne nous permet donc pas de proposer directement un unique algorithme de Monte-Carlo pour estimer  $L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0)$ . Il serait en effet nécessaire d'effectuer une simulation complète pour estimer l'épaisseur optique  $\mathbb{E}\left[(h_{a,\mathcal{M}',\mathcal{I}',H}l) / (\mathcal{P}_{m'}\mathcal{P}_{i'})\right]$  à chacune des  $N_{mc}$  réalisations indépendantes de l'algorithme estimant  $L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0)$  (ce qui se traduirait par des temps de calcul excessifs).

Toutefois, le chapitre précédent a mis en évidence que les algorithmes à collisions nulles permettent, par la définition d'un champ d'extinction arbitraire  $\hat{k}_{\eta}$ , de contourner la non-linéarité causée par cette fonction exponentielle. En effet, dans ce type d'algorithme, le terme d'extinction ne dépend plus du coefficient d'absorption mais simplement de  $\hat{k}_{\eta}$  qui, lui, est totalement arbitraire. Nous proposons donc de recourir, à nouveau, aux algorithmes à collisions nulles pour décomposer, directement dans l'équation du transfert radiatif, le coefficient d'absorption comme une somme statistique des participations  $h_{a,m,i,\eta}$  de chaque transition. Cela ouvre la voie à des algorithmes de Monte-Carlo permettant de traiter les dépendances spatiales et spectrales des coefficients d'absorption sans avoir à recourir ni à un maillage volumique ni à des spectres d'absorption haute-résolution.

# 5.2 Algorithmes à collisions nulles avec échantillonnage des transitions moléculaires

## 5.2.1 Représentation statistique du coefficient d'absorption dans l'équation du transfert radiatif

Dans le cas d'un milieu infini, hétérogène et non-diffusant, l'introduction d'un coefficient de collision nulle  $k_{n,\eta}(\mathbf{x})$  dans le champ d'extinction (désormais défini comme  $\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}) = k_{a,\eta}(\mathbf{x}) + k_{n,\eta}(\mathbf{x})$ ) conduit à la formulation intégrale de la luminance  $L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0)$  suivante :

$$L(\mathbf{x}_{0}, \mathbf{u}_{0}) = \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} d\eta \int_{0}^{+\infty} dl_{1} \, \hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{1}) \exp\left(-\int_{0}^{l_{1}} \hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{0} - l_{1}'\mathbf{u}_{0}) dl_{1}'\right) \\ \times \left[\frac{k_{a,\eta}(\mathbf{x}_{1})}{\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{1})} L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}_{1}) + \frac{k_{n,\eta}(\mathbf{x}_{1})}{\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{1})} L_{\eta}(\mathbf{x}_{1}, \mathbf{u}_{0})\right]$$
(5.8)

avec  $\mathbf{x}_{j+1} = \mathbf{x}_j - l_{j+1}\mathbf{u}_0$  (sans diffusion, la direction  $\mathbf{u}_0$  reste inchangée) et où le terme récursif  $L_\eta(\mathbf{x}_j, \mathbf{u}_0)$  est défini par :

$$L_{\eta}(\mathbf{x}_{j}, \mathbf{u}_{0}) = \int_{0}^{+\infty} dl_{j+1} \, \hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{j+1}) \exp\left(-\int_{0}^{l_{j+1}} \hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{j} - l'_{j+1}\mathbf{u}_{0}) dl'_{j+1}\right) \\ \times \left[\frac{k_{a,\eta}(\mathbf{x}_{j+1})}{\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{j+1})} L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}_{j+1}) + \frac{k_{n,\eta}(\mathbf{x}_{j+1})}{\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{j+1})} L_{\eta}(\mathbf{x}_{j+1}, \mathbf{u}_{0})\right]$$
(5.9)

On note alors que grâce à l'introduction des collisions nulles, les coefficients d'absorption ne sont désormais présents que dans les expressions de l'albédo d'absorption  $k_{a,\eta}(\mathbf{x}_j)/\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_j)$  et de l'albédo de collision nulle  $k_{n,\eta}(\mathbf{x}_j)/\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_j)$  (par l'intermédiaire du coefficient de collision nulle  $k_{n,\eta}(\mathbf{x}_j) = \hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_j) - k_{a,\eta}(\mathbf{x}_j)$  qui n'est jamais explicitement calculé). Le problème de non-linéarité qu'entraînait le terme d'extinction a ainsi été surmonté.

Il devient alors possible de décomposer les coefficients d'absorption en somme de participations de chaque transition :

$$k_{a,\eta}(\mathbf{x}) = \sum_{m=1}^{N_m} \sum_{i=1}^{N_i(m)} h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})$$
(5.10)

De la même façon, il est possible de décomposer le coefficient arbitraire de collision

nulle en une somme de participations de chaque transition à ce coefficient :

$$k_{n,\eta}(\mathbf{x}) = \sum_{m=1}^{N_m} \sum_{i=1}^{N_i(m)} h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})$$
(5.11)

où  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})$  est la participation de la transition *i* de la molécule *m* au coefficient de collision nulle  $k_{n,\eta}(\mathbf{x})$ . On peut également définir un coefficient

$$\hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x}) = h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}) + h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})$$
(5.12)

qui correspondrait au coefficient d'extinction associé à une transition *i* particulière et qui validerait donc  $\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}) = \sum_{m=1}^{N_m} \sum_{i=1}^{N_i(m)} \hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x})$ . La décomposition de ces propriétés radiatives est illustrée par la Fig. 5.2. Les choix de  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})$  et  $\hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x})$ sont totalement libres, à la seule condition qu'ils valident respectivement les Eq. 5.11 et 5.12.



FIGURE 5.2 – Décomposition du champ de  $\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x})$  en une somme de  $\hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x})$  définis pour chaque transition moléculaire *i* de chaque espèce *m*. Le coefficient  $\hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x})$  est lui-même divisé en une composante d'absorption  $h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})$  (calculable directement à partir de bases de données spectroscopiques) et d'une contribution au coefficient de collision nulle  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})$  arbitraire. Cette figure illustre le cas fictif, d'un gaz monomoléculaire ne comportant que deux transitions (numérotées 1 et 2) pour un nombre d'onde  $\eta$  donné.

#### · NOTE : Reformulation de l'équation locale du transfert radiatif -

Si l'on se ramène à l'écriture différentielle de l'équation du transfert radiatif, la décomposition des coefficients d'absorption et de collision nulle en une somme de participations de chaque transition moléculaire consiste à transformer l'Eq. 4.13 rappelée ci-dessous pour un cas non-diffusant :

$$\mathbf{u}.\boldsymbol{\nabla}L_{\eta}(\mathbf{x},\mathbf{u}) = -\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x})L_{\eta}(\mathbf{x},\mathbf{u}) + k_{a,\eta}(\mathbf{x})L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}) + k_{n,\eta}(\mathbf{x})\int_{4\pi}\delta(\mathbf{u}-\mathbf{u}')L_{\eta}(\mathbf{x},\mathbf{u}')d\mathbf{u}'$$
(5.13)

en

$$\mathbf{u} \cdot \boldsymbol{\nabla} L_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = -\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}) L_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}) + \sum_{m=1}^{N_m} \sum_{i=1}^{N_i(m)} \left[ h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}) L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}) + h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}) \int_{4\pi} \delta(\mathbf{u} - \mathbf{u}') L_{\eta}(\mathbf{x}, \mathbf{u}') d\mathbf{u}' \right]$$
(5.14)

Dans cette expression, le terme d'extinction  $-k_{\eta}(\mathbf{x})L_{\eta}(\mathbf{x},\mathbf{u})$  ne dépend plus de  $k_{a,\eta}$  mais du champ arbitraire d'extinction  $\hat{k}_{\eta}$ . C'est cette propriété qui, une fois l'équation du transfert radiatif exprimée sous sa forme intégrale, permet de rendre le terme exponentiel d'extinction analytiquement calculable, et permettra de traiter la non-linéarité exposée à la Sec. 5.1.3.

Cette décomposition des coefficients d'absorption et de collision nulle conduit donc, avec l'introduction de probabilités arbitraires  $\mathcal{P}_m(\mathbf{x})$  et  $\mathcal{P}_i(\mathbf{x})$  (respectivement associées à chaque espèce moléculaire m et à chaque transition i), à l'expression suivante :

$$L(\mathbf{x}_{0}, \mathbf{u}_{0}) = \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} d\eta \int_{0}^{+\infty} \hat{p}_{\mathcal{L}_{1}}(l_{1}) dl_{1} \sum_{m=1}^{N_{m}} \mathcal{P}_{m}(\mathbf{x}_{1}) \sum_{i=1}^{N_{i}(m)} \mathcal{P}_{i}(\mathbf{x}_{1})$$

$$\times \left[ \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}_{1})}{\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{1})\mathcal{P}_{m}(\mathbf{x}_{1})\mathcal{P}_{i}(\mathbf{x}_{1})} L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}_{1}) + \frac{h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}_{1})}{\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{1})\mathcal{P}_{m}(\mathbf{x}_{1})\mathcal{P}_{i}(\mathbf{x}_{1})} L_{\eta}(\mathbf{x}_{1}, \mathbf{u}_{0}) \right]$$
(5.15)

où  $\hat{p}_{\mathcal{L}_j}(l_j) = \hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_j) \exp\left(-\int_0^{l_j} \hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{j-1} - l'_j \mathbf{u}_0) dl'_j\right)$  est la densité de probabilité des libres parcours  $\mathcal{L}_j$  et où le terme récursif  $L_{\eta}(\mathbf{x}_j, \mathbf{u}_0)$  est donné par :

$$L_{\eta}(\mathbf{x}_{j}, \mathbf{u}_{0}) = \int_{0}^{+\infty} \hat{p}_{\mathcal{L}_{j+1}}(l_{j+1}) dl_{j+1} \sum_{m=1}^{N_{m}} \mathcal{P}_{m}(\mathbf{x}_{j+1}) \sum_{i=1}^{N_{i}(m)} \mathcal{P}_{i}(\mathbf{x}_{j+1}) \\ \times \left[ \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}_{j+1})}{\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{j+1})\mathcal{P}_{m}(\mathbf{x}_{j+1})} L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}_{j+1}) + \frac{h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}_{j+1})}{\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{j+1})\mathcal{P}_{m}(\mathbf{x}_{j+1})} L_{\eta}(\mathbf{x}_{j+1}, \mathbf{u}_{0}) \right]$$
(5.16)

On retrouve alors une expression très proche de celle des algorithmes à collisions nulles usuels. En posant

$$\hat{h}_{\eta}(\mathbf{x}) = \hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_j) \mathcal{P}_m(\mathbf{x}_j) \mathcal{P}_i(\mathbf{x}_j), \qquad (5.17)$$

les termes  $h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})/[\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{m}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{i}(\mathbf{x})]$  et  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})/[\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{m}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{i}(\mathbf{x})]$  correspondent alors respectivement à l'équivalent d'albédos d'absorption et de collision nulle, mais ici associés à la seule transition *i* de l'espèce *m*. Dans la mesure où  $\sum_{m=1}^{N_{m}} \mathcal{P}_{m}(\mathbf{x}) \sum_{i=1}^{N_{i}(m)} \mathcal{P}_{i}(\mathbf{x}) = 1$ , cette expression valide bien la condition imposée par les Eq. 5.11 et 5.12. Ce choix fait pour l'expression de  $\hat{h}_{\eta}(\mathbf{x})$  présente un avantage supplémentaire : seuls le champ de  $\hat{k}_{\eta}$  et les différentes probabilités devront être

définies au préalable de façon arbitraire, évitant ainsi de devoir proposer pour chaque transition, pour chaque nombre d'onde et chaque position une valeur de  $h_{n,\eta}(\mathbf{x})$  validant l'Eq. 5.11.

De la même manière qu'au Chap. 4, il est possible d'exprimer sous forme statistique ces albédos en introduisant dans l'Eq. 5.15

- une probabilité d'absorption  $\mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x}) \equiv \mathcal{P}_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}) = \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})}{\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{m}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{i}(\mathbf{x})} = \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})}{\hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x})}$
- une probabilité de collision nulle  $\mathcal{P}_{n,i}(\mathbf{x}) = 1 \mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x})$

• ainsi qu'une densité de probabilité des nombres d'onde  $p_H(\eta)$  arbitraire.

Il vient alors :

$$L(\mathbf{x}_{0}, \mathbf{u}_{0}) = \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} p_{H}(\eta) \frac{1}{p_{H}(\eta)} d\eta \int_{0}^{+\infty} \hat{p}_{\mathcal{L}_{1}}(l_{1}) dl_{1} \sum_{m=1}^{N_{m}} \mathcal{P}_{m}(\mathbf{x}_{1}) \sum_{i=1}^{N_{i}(m)} \mathcal{P}_{i}(\mathbf{x}_{1}) \\ \times \left[ \mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x}_{1}) L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}_{1}) + (1 - \mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x}_{1})) L_{\eta}(\mathbf{x}_{1}, \mathbf{u}_{0}) \right]$$
(5.18)

où le terme récursif  $L_{\eta}(\mathbf{x}_j, \mathbf{u}_0)$  est donné par :

$$L_{\eta}(\mathbf{x}_{j}, \mathbf{u}_{0}) = \int_{0}^{+\infty} \hat{p}_{\mathcal{L}_{j+1}}(l_{j+1}) dl_{j+1} \sum_{m=1}^{N_{m}} \mathcal{P}_{m}(\mathbf{x}_{j+1}) \sum_{i=1}^{N_{i}(m)} \mathcal{P}_{i}(\mathbf{x}_{j+1}) \\ \times \left[ \mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x}_{j+1}) L_{\eta}^{eq}(\mathbf{x}_{j+1}) + (1 - \mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x}_{j+1})) L_{\eta}(\mathbf{x}_{j+1}, \mathbf{u}_{0}) \right]$$
(5.19)

Toutefois, la définition de la probabilité  $\mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x})$  impose que  $h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}) < \hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x})$ pour qu'elle soit bien comprise entre 0 et 1. Il est donc nécessaire que pour toute transition moléculaire le coefficient  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})$  soit positif pour tout nombre d'onde  $\eta$  et en toute position  $\mathbf{x}$ . Nous retrouvons ainsi les mêmes conclusions que pour les algorithmes à collisions nulles usuels (voir Sec. 4.2.4). Nous reviendrons sur cet élément limitant dans la Sec. 5.2.3 et proposerons à l'instar de la Sec. 4.2.4 une alternative permettant d'autoriser localement des occurrences négatives de  $h_{n,m,i,\eta}$ .

La formulation intégrale récursive de l'Eq. 5.18 nous permet alors d'exprimer la luminance  $L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0)$  comme une simple espérance :

$$L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0) = \mathbb{E}\left[\frac{L^{eq}(\mathbf{X}^*)}{p_H(\eta)}\right]$$
(5.20)

où la variable aléatoire  $\mathbf{X}^*$  correspond aux positions d'émission et peut être définie comme :

$$\mathbf{X}^* = \sum_{j=1}^{+\infty} \mathbf{X}_j A_j \prod_{q=1}^{i-1} (1 - A_q)$$
(5.21)

avec  $A_j \equiv A_{j,m,i,\eta}(\mathbf{x}_j)$  la variable aléatoire associée aux événements d'absorption. Tout comme pour les algorithmes à collisions nulles usuels, elle vaut 1 avec une probabilité  $\mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x}_j)$ , 0 sinon, mais elle dépend désormais, en plus de la position  $\mathbf{X}_j$  des indices d'espèces moléculaires  $\mathcal{M}$  et des indices de transitions  $\mathcal{I}$ .

On constate alors l'intérêt qu'offre cette reformulation. Celle-ci ne dépend plus du coefficient d'absorption, mais seulement des participations  $h_{a,m,i,\eta}$  de chaque transition présentes dans les probabilités d'absorption et du champ arbitraire  $\hat{k}_{\eta}$ . L'information, habituellement portée par le coefficient d'absorption dans les approches statistiques usuelles, est maintenant reconstruite de façon stochastique par une combinaison de transitions moléculaires. Les algorithmes à collisions nulles permettent de réaliser cette tâche grâce aux propriétés suivantes :

- l'unique fonction exponentielle de l'équation du transfert radiatif, présente dans l'expression de  $\hat{p}_{\mathcal{L}_j}(l_j)$  ne dépend plus que du coefficient d'extinction  $\hat{k}_{\eta}$  qui est choisi arbitrairement;
- $k_{a,\eta}$ , apparaît uniquement et de façon linéaire dans les probabilités d'absorption et de collision nulle;
- grâce à cette linéarité,  $k_{a,\eta}$  peut être remplacé par une expression statistique de transitions (comme proposé dans [Feldick et Modest, 2011, Ren et Modest, 2013]);
- la non-linéarité de l'exponentielle est reconstruite par la récursion associée aux événements de diffusion vers l'avant que constituent les collisions nulles [Longo, 2002, Galtier *et al.*, 2013].

Puisqu'exprimée sous la forme d'une simple espérance, la luminance  $L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0)$  peut alors être estimée sans biais par un simple algorithme de Monte-Carlo, composé de  $N_{mc}$  réalisations indépendantes (indicées *i* et schématisées à la Fig. 5.3), chacune composée des étapes suivantes :

#### - Algorithme

- **1.** L'indice de collision est initialisé : j = 0;
- 2. On échantillonne un nombre d'onde  $\eta_i$  entre  $\eta_{\min}$  et  $\eta_{\max}$  selon la densité de probabilité arbitraire  $p_H(\eta)$ ;
- **3.** On échantillonne un libre parcours d'extinction  $l_{i,j+1}$  entre 0 et  $+\infty$  selon la densité de probabilité arbitraire  $\hat{p}_{\mathcal{L}}(l)$  et on calcule la position de collision :  $\mathbf{x}_{i,j+1} = \mathbf{x}_{i,j} l_{i,j+1}\mathbf{u}_{i,j}$ ;
- 4. On échantillonne une espèce moléculaire  $m_{i,j}$  parmi l'ensemble des espèces  $N_m$ , selon les probabilités discrètes  $\mathcal{P}_m(\mathbf{x}_{i,j+1})$  associées à chacune des molécules;
- 5. On échantillonne une transition moléculaire  $\iota_{i,j+1}$  parmi l'ensemble des transitions  $N_i(m_{i,j+1})$  de l'espèce  $m_{i,j+1}$ , selon les probabilités discrètes  $\mathcal{P}_i(\mathbf{x}_{i,j+1})$ ;
- 6. On effectue un test de Bernoulli pour déterminer le type de collision. Pour cela on échantillonne uniformément un nombre  $r_{i,j+1}$  entre 0 et 1.

- 6a. Si  $r_{i,j+1} < \mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x}_{i,j+1})$ , il s'agit d'une absorption et la récursion s'arrête. Le poids de Monte-Carlo de la réalisation indépendante *i* est alors donné par :  $w_i = Leq_n(\mathbf{x}_{j+1})/p_H(\eta_i)$ .
- **6b.** Si  $r_{i,j+1} > \mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x}_{i,j+1})$ , il s'agit d'une collision nulle, l'algorithme boucle alors à l'étape 3, avec un indice de collision incrémenté  $j \equiv j+1$ .



FIGURE 5.3 – Algorithme à collisions nulles avec échantillonnage des transitions permettant d'estimer la luminance  $L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0)$  dans un milieu infini non-diffusant. Outre l'ajout d'un échantillonnage des nombres d'onde  $\eta$  permettant d'intégrer spectralement la luminance d'intérêt, cet algorithme est très proche d'un algorithme à collisions nulles usuel. Seules deux étapes d'échantillonnage de l'espèce moléculaire m et de la transition i sont rajoutées.

Cet algorithme est alors très similaire aux algorithmes usuels de diffusion multiple (voir Fig. 3.6), à la seule différence qu'une espèce moléculaire et qu'une transition sont échantillonnées à chaque collision. Toutefois, la proposition de reformulation statistique faite dans ce chapitre mène à de nouvelles images physiques. Ces dernières consistent à suivre depuis  $\mathbf{x}_0$  dans la direction  $-\mathbf{u}_0$  des photons de nombres d'onde  $\eta$  compris entre  $\eta_{\min}$  et  $\eta_{\max}$ , jusqu'à ce qu'ils collisionnent en  $\mathbf{x}_1$  avec une molécule donnée, d'espèce m et d'état énergétique correspondant à la transition i. Il y a une probabilité  $\mathcal{P}_{a,i}$  que cette collision soit une absorption, auquel cas le suivi s'arrête. La collision peut également être une collision nulle (avec une probabilité  $1 - \mathcal{P}_{a,i}$ ), auquel cas, les photons poursuivent leur chemin dans la direction  $-\mathbf{u}_0$  jusqu'à un second point de collision  $\mathbf{x}_2$  où il peut y avoir absorption ou collision nulle. Le suivi est alors stoppé lorsqu'une absorption est rencontrée.

### 5.2.2 Perspectives numériques et analytiques offertes par cette approche

Avec cette approche, toute observable radiative peut ainsi être vue comme l'espérance d'une variable aléatoire, définie uniquement à partir de propriétés des transitions moléculaires. La complexité du transfert radiatif en milieu hétérogène ainsi que celle liée aux transitions moléculaires ont ainsi pu être réduites à un simple problème d'estimation d'espérance, grâce à l'introduction de ces collisions nulles.

Comme cela va être illustré par la suite, la proposition faite ici a des conséquences numériques immédiates. Il n'est plus nécessaire, pour réaliser un calcul de référence de produire rigoureusement des spectres de haute-résolution, suffisamment nombreux pour couvrir les hétérogénéités du milieu. A fortiori, ces jeux de spectres ne doivent pas être recalculés à chaque changement de configuration d'étude ou d'hypothèse relative au modèle spectral (profil de raie, troncature, bases de données spectroscopiques utilisées, *etc.*).

De plus, les étapes d'interpolations spatiales et spectrales, permettant d'obtenir la valeur locale d'un coefficient d'absorption à partir d'un jeu de spectres précalculés, ne sont plus nécessaires. Les estimations ne sont alors plus susceptibles d'être affectées par d'éventuels biais dus à ces procédures d'interpolations. À chaque collision, une transition est échantillonnée et sa contribution  $h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})$  est calculée pour les conditions exactes de température, de pression et de fractions molaires au point  $\mathbf{x}$ .

Il devient ainsi imaginable, sans avoir à chaque fois à produire un jeu de spectres à haute-résolution spectrale, de comparer des valeurs d'observables radiatives obtenues avec différentes bases de données spectroscopiques ou avec différentes hypothèses spectrales (ex: profil de Voigt ou de Lorentz, sélection des raies les plus intenses, troncature d'ailes de raie, etc.). La prise en compte de nouvelles versions de bases de données spectroscopiques devient elle aussi directe.

Outre ces avantages numériques, la proposition faite ici offre des perspectives intéressantes en termes d'analyse. En effet, elle peut servir de point de départ pour des études plus théoriques. Il devient en particulier possible de calculer, par un algorithme de Monte-Carlo, la sensibilité d'une observable radiative, comme proposé dans [De Guilhem De Lataillade *et al.*, 2002a, Roger *et al.*, 2005, Dauchet *et al.*, 2013, De La Torre *et al.*, 2014], mais cette fois par rapport à un paramètre du coefficient d'absorption. Par exemple l'Eq. 5.18 peut être dérivée par rapport à un paramètre  $\varpi$  du coefficient  $h_{a,m,n,\eta}(\mathbf{x})$ . La sensibilité paramétrique qui en résulte (dont la démonstration est fournie en Annexe B) est donnée par :

$$\partial_{\varpi} L(\mathbf{x}_{0}, \mathbf{u}_{0}) = \mathbb{E} \begin{bmatrix} \frac{L_{\eta}^{eq}(\mathbf{X}^{*})}{p_{H}(H)} \sum_{j=1}^{+\infty} \left( A_{j} \prod_{q=1}^{j-1} (1 - A_{q}) \right) \\ \times \left[ \partial_{\varpi} \ln(\mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{X}_{j})) + \sum_{n=1}^{j-1} \partial_{\varpi} \ln(1 - \mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{X}_{n})) \right] \end{bmatrix}$$
(5.22)

Le pouvoir d'analyse qu'offre cette nouvelle approche pourrait ouvrir des perspectives intéressantes dans différents domaines. Pour des applications de type atmosphérique ou astrophysique [Lewis *et al.*, 1999, Eymet *et al.*, 2009, Lebonnois et al., 2010, il serait possible de calculer la sensibilité d'une grandeur radiative à des variables d'état thermodynamiques (ex: à la pression du sol pour une prise en compte des effets orographiques), ou à la concentration d'une espèce moléculaire (ex : le calcul de la sensibilité du flux radiatif émis par la Terre et son atmosphère vers l'espace aux concentrations de divers gaz à effets de serres tels que le  $CO_2$ , l'H<sub>2</sub>O ou le  $CH_4$ ). Ces apports pourraient également trouver une résonance en spectroscopie moléculaire. Il devient en effet possible de calculer la sensibilité de n'importe quelle grandeur radiative à un paramètre du modèle de raie. Nous pensons par exemple à l'élargissement des raies dû aux autres espèces du gaz considéré. Dans les bases de données spectroscopiques, seules les largeurs de raies dues à l'espèce elle-même et à un mélange caractéristique de l'air terrestre sont fournies. Il serait ainsi possible d'évaluer le degré de confiance que l'on peut accorder à ces paramètres dès que les mélanges gazeux considérés s'éloignent de la composition de l'air terrestre (chambres de combustion aéronautiques, atmosphères de planètes ou d'exoplanètes, etc.).

#### 5.2.3 Gestion des coefficients négatifs de collision nulle

Comme souligné dans la Sec. 5.2.1, le choix fait pour la probabilité d'absorption

$$\mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x}) = \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})}{\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{m}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{i}(\mathbf{x})} = \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})}{\hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x})} = \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})}{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}) + h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})}$$
(5.23)

impose que  $0 < h_{a,m,\iota,\eta}(\mathbf{x}) < \hat{h}_{m,\iota,\eta}(\mathbf{x})$  pour que la probabilité  $\mathcal{P}_{a,\iota}$  soit bien comprise entre 0 et 1. En d'autres termes, le coefficient de collision nulle  $h_{n,m,\iota,\eta}(\mathbf{x}) = \hat{h}_{m,\iota,\eta}(\mathbf{x}) - h_{a,m,\iota,\eta}(\mathbf{x})$  de la transition  $\iota$  de l'espèce moléculaire mdoit être positif. Les constats sont donc identiques à ceux rencontrés à la Sec. 4.2.4, mais cette fois à l'échelle d'une transition moléculaire.

Il est alors possible, de la même façon qu'à la Sec. 4.2.4, d'introduire une nouvelle probabilité  $\tilde{\mathcal{P}}_{a,i}(\mathbf{x})$  permettant de pouvoir gérer d'éventuelles occurrences négatives du coefficient de collision nulle  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})$ . Nous proposons l'expression :

$$\tilde{\mathcal{P}}_{a,i}(\mathbf{x}) = \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})}{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}) + |h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})|}$$
(5.24)

L'expression de la luminance  $L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0)$  de l'Eq. 5.20 est alors modifiée en :

$$L(\mathbf{x}_{0}, \mathbf{u}_{0}) = \mathbb{E}\left[\frac{L^{eq}(\mathbf{X}^{*})}{p_{H}(\eta)} \sum_{j=1}^{\infty} A_{j} \prod_{q=1}^{j-1} (1 - A_{q}) \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}_{q})}{\hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x}_{q})\tilde{\mathcal{P}}_{a,i}(\mathbf{x}_{q})}\right]$$
$$= \mathbb{E}\left[\frac{L^{eq}(\mathbf{X}^{*})}{p_{H}(\eta)} \sum_{j=1}^{\infty} A_{j} \prod_{q=1}^{j-1} (1 - A_{q}) \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}_{q}) + |h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}_{q})|}{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}_{q}) + h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}_{q})}\right]$$
(5.25)
$$= \mathbb{E}\left[\tilde{W}(\mathbf{X}^{*})\right]$$

Ce choix de probabilité présente l'avantage de n'entraîner aucune modification algorithmique si  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}) > 0$ , et modifie le poids de Monte-Carlo en conséquence si  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}) < 0$ .

Ici encore, les coefficients négatifs de collision nulle  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})$  se traduiront par une augmentation de la variance de la variable aléatoire  $W(\mathbf{X}^*)$ . En effet à chaque collision nulle pour laquelle  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}) < 0$ , la valeur absolue du produit  $\prod_{q=1}^{j-1} (1-A_q) \frac{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}_q)+|h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}_q)|}{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}_q)+h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}_q)}$  croîtra, alors qu'elle resterait fixée à 1 si  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})$ était positif en tout point. Si un nombre important de collisions nulles caractérisées par des coefficients négatifs se produit au sein d'une même réalisation de Monte-Carlo, alors la valeur de l'échantillon de la variable  $\tilde{W}(\mathbf{X}^*)$  sera susceptible d'être très importante, augmentant alors la variance de l'estimation de  $L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0)$ .

Dans le Chap. 4, il était préférable que le champ arbitraire de  $k_{\eta}(\mathbf{x})$  majore, quel que soit  $\mathbf{x}$ , celui du coefficient réel d'extinction. Il suffisait alors d'augmenter localement la valeur de  $\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x})$  pour éviter des occurrences négatives du coefficient de collision nulle. Avec la proposition faite ici,  $\hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x})$  doit désormais majorer autant que possible  $h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})$  pour tout nombre d'onde  $\eta$ , tout point  $\mathbf{x}$ , toute espèce moléculaire m et toute transition i. Il est donc beaucoup plus complexe, en pratique, d'assurer strictement l'inéquation  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}) > 0$ ; d'autant plus que  $\hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x})$  est défini comme égal à  $\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{m}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{i}(\mathbf{x})$  dont chacun de ses trois termes résulte d'un choix arbitraire. Les choix du champ de  $\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x})$  et des deux probabilités ( $\mathcal{P}_{m}(\mathbf{x})$  et  $\mathcal{P}_{i}(\mathbf{x})$ ) pourront donc avoir une incidence sur le respect ou non de la condition  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}) > 0$  pour tout  $\eta$ ,  $\mathbf{x}$ , m et i et ainsi avoir de sérieuses conséquences sur la convergence du calcul. Une proposition concernant ces trois termes arbitraires sera faite à la Sec. 5.3.3.

#### 5.2.4 Proposition d'améliorations algorithmiques

Nous proposons, pour la suite de ce chapitre, de réviser l'algorithme introduit à la Fig. 5.3, à travers trois modifications présentées ci-dessous.

- Autoriser d'éventuelles occurrences négatives du coefficient de collision nulle  $h_{n,m,\iota,\eta}(\mathbf{x})$  par l'introduction de la probabilité  $\tilde{\mathcal{P}}_{a,\iota}(\mathbf{x})$  proposée à la Sec. 5.2.3.
- Prendre en compte d'éventuelles parois noires (voir Sec. 3.3.3 et 3.4.4) par l'introduction d'un test permettant de savoir si la collision a lieu dans le milieu

 $\mathcal{V}$  en  $\mathbf{x}_j$  (le test  $\mathcal{H}(\mathbf{x}_j \in \mathcal{V})$  doit alors être validé) ou à la paroi en  $\mathbf{x}_{w,j}^{-1}$  (si le test  $\mathcal{H}(\mathbf{x}_j \notin \mathcal{V})$  est validé).

Implémenter une procédure d'energy-partitioning (voir Sec. 3.4.2 et 4.3.3) dans laquelle le type de collisions est géré de façon déterministe dans un premier temps pour augmenter les taux de convergence. Un seuil arbitraire ζ est également défini pour qu'une fois le terme d'extinction ξ<sub>j</sub> = Π<sup>j-1</sup><sub>q=1</sub> h<sub>n,m,i,η</sub>(**x**<sub>q</sub>)/ĥ<sub>m,i,η</sub>(**x**<sub>q</sub>) inférieur à ζ, l'algorithme bascule vers une branche où le type de collision est traité par des tests de Bernoulli, ceci dans le but de mettre fin à la récursivité. Si ζ = 1, l'ensemble des collisions seront traitées par un test de Bernoulli et si ζ = 0 celles-ci seront traitées de façon déterministe. Dans ce cas, seule une collision à une paroi noire pourra mettre fin à la récursivité.

Ces trois modifications étant présentées en détail dans les Chap. 3 et 4, nous ne reviendrons pas ici sur le formalisme mathématique qu'elles impliquent. Toutefois, l'algorithme résultant de cette révision est rigoureusement schématisé à la Fig. 5.4.

## 5.3 Mise en pratique dans un benchmark et choix des paramètres libres

Dans la section précédente, nous avons donc proposé une approche originale qui permet une description statistique des coefficients d'absorption directement au sein de l'équation du transfert radiatif. D'un point de vue encore formel, cette proposition semble offrir des perspectives numériques et analytiques intéressantes. Il est donc désormais nécessaire de voir comment cette approche se traduit en pratique, une fois implémentée.

Toutefois, dans un premier temps, il est nécessaire de définir un nombre important de grandeurs arbitraires. Certaines d'entre-elles ont déjà été définies au cours des paragraphes précédents :

- La densité de probabilité des libres parcours a été définie comme  $\hat{p}_{\mathcal{L}_j}(l_j) = \hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_j) \exp\left(-\int_0^{l_j} \hat{k}_{\eta}(\mathbf{x}_{j-1} l'_j \mathbf{u}_0) dl'_j\right)$  (telle qu'elle est définie pour les algorithmes à collisions nulles standards).

$$\mathcal{P}_{a,i}(\mathbf{x}) = \frac{a_{i,n,i,\eta}(\mathbf{x})}{h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x}) + |h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})|}$$

• Le coefficient d'extinction  $h_{m,i,\eta}(\mathbf{x})$  arbitraire pour une transition donnée a également été posé comme égal  $\hat{k}_{\eta}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{m}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{i}(\mathbf{x})$ .

Nous ne reviendrons pas ici sur ces trois propositions arbitraires. Néanmoins, plusieurs paramètres libres restent encore à être définis, c'est le cas :

<sup>1.</sup> Le point  $\mathbf{x}_{w,j}$  correspond à la première intersection entre la paroi  $\mathcal{B}$  et la demi-droite définie par le point  $\mathbf{x}_{j-1}$  et la direction  $-\mathbf{u}_0$ .



FIGURE 5.4 – Algorithme à collisions nulles avec échantillonnage des transitions permettant d'estimer la luminance  $L_{\mathbf{x}_0,\mathbf{u}_0}$  au point  $\mathbf{x}_0$  dans la direction  $\mathbf{u}_0$ au sein d'un milieu gazeux non-diffusant entouré par des parois noires. Cet algorithme est constitué d'une branche où les collisions sont traitées de façon déterministe (procédure d'energy-parititoning, voir Sec. 3.4.2 et 4.3.3) qui permute vers une branche où elles sont traitées de façon stochastique par un test de Bernoulli. Enfin, cet algorithme permet de traiter des coefficients négatifs de collision nulle  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x}) < 0$  sans créer de biais.

- du champ d'extinction arbitraire  $k_{\eta}(\mathbf{x})$ ;
- de la densité de probabilité des nombres d'onde  $p_H(\eta)$ ;
- de la probabilité  $\mathcal{P}_m(\mathbf{x})$  associée à chaque espèce moléculaire;
- de la probabilité  $\mathcal{P}_i(\mathbf{x})$  associée à chaque transition *i* pour une espèce moléculaire *m* donnée;
- du seuil  $\zeta$  à partir duquel l'algorithme dans lequel les collisions sont traitées par *energy-partitioning* permute à une branche où elles sont traitées par un test de Bernouilli.

Ces choix ne sont pas anodins dans la mesure où ils vont conditionner le comportement et le taux de convergence de l'algorithme présenté à la Fig. 5.4. Il s'agira en particulier de s'assurer, autant que possible, que le coefficient  $\hat{h}_{m,i,\eta}(\mathbf{x}) = \hat{k}_{\eta}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{n}(\mathbf{x})\mathcal{P}_{i}(\mathbf{x})$ soit supérieur à  $h_{a,m,i,\eta}(\mathbf{x})$ , pour tout nombre d'onde, toute espèce moléculaire, toute transition et toute position, afin d'éviter une définition de coefficients négatifs de collision nulle  $h_{n,m,i,\eta}(\mathbf{x})$  qui, comme nous l'avons vu au Chap. 4, sont susceptibles d'induire une importante augmentation de la variance.

Pour attester de la faisabilité de l'approche proposée et pour définir ces choix de paramètres libres, nous nous sommes appuyés sur un benchmark proposé par F. André et R. Vaillon dans l'article [André et Vaillon, 2010]. Un important travail a été fait pour parvenir à des choix de paramètres assurant une bonne convergence dans chacun des cas d'intérêt (voir Sec. 5.3.3). Cette démarche, relevant plus de l'essai-erreur, que d'une réelle optimisation basée sur la physique du transfert radiatif et de la spectroscopie moléculaire, s'est appuyée sur une approche par variance nulle dont les résultats seront présentés à la Sec. 5.3.2.

Nous pensons que les propositions faites ici permettent de traiter de façon sûre des cas d'études proches de ceux rassemblés dans le benchmark d'intérêt, mais qu'elles ne constituent certainement pas des choix optimaux. Notre motivation n'était pas d'arriver à des paramètres arbitraires idéalement choisis ou à un algorithme particulièrement performant, mais de montrer la faisabilité pratique de l'approche faisant l'objet de ce chapitre. Les résultats obtenus sont présentés à la Sec. 5.3.4.

#### 5.3.1 Présentation des six configurations d'étude

Le benchmark considéré ici, tiré de [André et Vaillon, 2010], est composé de six configurations d'étude couvrant une grande variété de problématiques rencontrées en combustion (de la chambre de combustion à la signature infrarouge de panaches chauds).

Ces six cas d'étude consistent à estimer la luminance  $L(\mathbf{x}_0, \mathbf{u}_0)$  émise par une colonne finie de milieu gazeux non-diffusant définie de 0 à  $\mathbf{x}_0^2$ . Seules les dimensions de la colonne de gaz et les champs de propriétés (température, compositions moléculaires)

<sup>2.</sup> Cela consiste d'un point de vue algorithmique à considérer une paroi noire absorbante de température T=0K en  $\mathbf{x} = 0$ .

les distinguent. Leurs propriétés respectives sont schématisées à la Fig. 5.5. Dans chacun de ces six cas, la pression considérée est définie comme égale à la pression atmosphérique.

Les deux premiers cas, respectivement notés C1 et C2 sont tirés de l'article [Soufiani *et al.*, 1985]. La colonne de gaz est composée d'une zone chaude et d'une zone froide, chacune homogène et isotherme, de dimensions et de températures respectives 10cm / T = 1500K et 1m / 500K. Dans le cas C1, le mélange de gaz est composé de CO<sub>2</sub> à 50% dans la zone chaude et à 5% dans la zone froide. Pour le cas C2, ces fractions molaires sont conservées, mais l'espèce participante est de la vapeur d'eau.

Les cas C3, C4 et C5 sont quant à eux inspirés de l'article [Liu *et al.*, 2001]. La dimension de la colonne est de 8m, le profil de température est linéaire par morceaux : croissant de 400K à 2400K entre 0m et 1.5m puis décroissant de 2400Kà 800K de 1.5m à 8m. Le cas C3 est composé d'un mélange de 20% de CO<sub>2</sub> et de 10% de H<sub>2</sub>O. Dans le cas C4, seul le CO<sub>2</sub> est pris en compte (avec une fraction molaire de 20%) et dans le cas C5, seule la vapeur d'eau est représentée (avec une fraction molaire de 10%).

Enfin, le cas C6, tiré de la publication [Rivière *et al.*, 1992], est constitué d'une zone chaude de 40cm dont la température et les fractions molaires d'H<sub>2</sub>O sont uniformes par morceaux (voir Fig. 5.5) ainsi que d'une zone froide de 200m séparant le point d'observation et la zone chaude. Ce dernier cas d'étude constitue généralement une configuration très difficile à prendre en compte (ces difficultés sont en particulier rencontrées lors d'utilisation de modèles spectraux simplifiés de types k-corrélés).

Le fait que les hétérogénéités de ces six cas d'étude soient suffisamment simples pour que l'on puisse calculer analytiquement les épaisseurs optiques, ne limite en rien l'étude de faisabilité présentée ici. Il ne s'agit pas d'utiliser les algorithmes à collisions nulles pour tester leur comportement vis-à-vis des hétérogénéités (cela a été fait au Chap. 4), mais pour étudier ce qu'implique d'un point de vue numérique l'échantillonnage des transitions moléculaires.

# 5.3.2 Approche par variance nulle afin d'orienter le choix des probabilités

Comme précisé en introduction de cette section, plusieurs grandeurs arbitraires doivent encore être déterminées. C'est en particulier le cas de trois probabilités : la densité de probabilité des nombres d'onde  $p_H(\eta)$ , la probabilité  $\mathcal{P}_m(\mathbf{x})$  associée à chaque espèce moléculaire et la probabilité  $\mathcal{P}_i(\mathbf{x})$  associée à chaque transition *i* pour une espèce moléculaire *m* donnée.

Pour orienter ces choix, nous avons recouru à une approche par variance nulle (voir Sec. 3.3.4.2), en partant de l'Eq. 5.18 dans laquelle nous avons libéré les choix de toutes les probabilités et densités de probabilité (à savoir  $p_H(\eta)$ ,  $\hat{p}_{\mathcal{L}_i}(l_i)$ ,  $\mathcal{P}_m(\mathbf{x}_i)$ ,